

科技部補助專題研究計畫成果報告 期末報告

中南半島生質燃燒與東北季風傳輸對於恆春地區空氣品質與大氣 輻射的衝擊

計畫類別：個別型計畫
計畫編號：MOST 103-2111-M-040-002-
執行期間：103年08月01日至104年07月31日
執行單位：中山醫學大學公共衛生學系（所）

計畫主持人：張士昱
共同主持人：陳韡鼎
計畫參與人員：碩士班研究生-兼任助理人員：楊佳興
大專生-兼任助理人員：蔡羽貞
博士班研究生-兼任助理人員：陳瑀婕

報告附件：出席國際會議研究心得報告及發表論文

處理方式：

1. 公開資訊：本計畫涉及專利或其他智慧財產權，2年後可公開查詢
2. 「本研究」是否已有嚴重損及公共利益之發現：否
3. 「本報告」是否建議提供政府單位施政參考：否

中華民國 104 年 10 月 30 日

中文摘要：本計劃在2013-2015年3月至4月於恆春海生館進行大氣污染物逐時觀測，以逐時PM_{2.5}水溶性陰陽離子與氣膠垂直分佈等數據，配合氣象因子(溫濕度、風向與風速)、氣態污染物(O₃、SO₂、CO與NO₂)與粒狀污染物(PM₁₀與PM_{2.5})濃度進行同步觀測，並使用逐時氣象因子與氣流軌跡模式(HYSPLIT)來區分不同傳輸事件，並以PMF源解析模式進行污染來源的分類。

依據不同風向了解高屏地區人為污染，其結果表示PM_{2.5}質量濃度在西北風發生時為濃度最高時期，平均為23.6gm⁻³，相較於其他風向影響高出了10gm⁻³。主要的污染排放源為交通污染及工廠所排放。以PMF模擬逐時量測結果可辨別出四次生質燃燒高濃度污染的事件，配合現址光達(LIDAR)的氣膠垂直分佈觀測與氣象模式(WRF)的垂直風場剖面模擬，進一步可判別出中南半島生質燃燒經由下沖氣流影響恆春地區大氣環境的時間分布。利用同步的地面逐時生質燃燒指標污染濃度可區別生質燃燒經由下沖傳輸、東北季風境外傳輸與鄰近排放的氣膠特徵差異，且下沖傳輸的過程中對於恆春地區PM_{2.5}的貢獻則可高達10 ug^m-³左右。

中文關鍵詞：中南半島、生質燃燒、下沖氣流、PMF源解析模式

英文摘要：Hourly measurements of meteorological parameters (temperature, relative humidity, wind direction and wind speed), particulate and gaseous pollutants (PM₁₀, PM_{2.5}, O₃, SO₂, CO and NO₂), chemical compositions of PM_{2.5} (water soluble ions and carbonaceous materials), and vertical distribution of aerosols were made from March to April during 2013 to 2015 at Hungchen in Taiwan. The HYSPLIT and hourly measurements of meteorological parameters were applied to distinguish the weather condition. And the sources of pollution and their contributions were estimated using the positive matrix factorization (PMF) model. In this work, according to the four types of air masses were identified as Anthropogenic emissions from Kaohsiung and Pingtung area. As the result, the highest concentration occurred in the period of Northwest wind, the average of PM_{2.5} is 23.6 gm⁻³, and the contributed more than 10gm⁻³ within the other type, whereas pollution emissions from diesel and gasoline vehicles and industrial emissions. The biomass burning achieved its higher source contribution on four periods by PMF model to identify pollutant characteristics. The downwash processes were verified that the occurrence of peak in biomass burning tracer concentration was consistency with the period of downwash transport in the ground station. The vertical distribution of aerosols measured from the in situ LIDAR and the vertical wind section simulated from the meteorological model were used to define the period of the downwash transport. The biomass burning pollutants from the Indo-China Peninsula were regarded as the tracer to observe the

downwash transport of the upper atmosphere. The contributed increased approximately $10\mu\text{g m}^{-3}$ of the mass concentration of PM_{2.5}.

英文關鍵詞：Indo-China Peninsula, biomass burning, downwash, positive matrix factorization (PMF) model

科技部補助專題研究計畫成果報告

(期中進度報告/期末報告)

(計畫名稱)

中南半島生質燃燒與東北季風傳輸

對於恆春地區空氣品質與大氣輻射的衝擊

計畫類別：個別型計畫 整合型計畫

計畫編號：MOST 103-2111-M-040-002

執行期間：103年08月01日至104年07月31日

執行機構及系所：中山醫學大學、中央研究院

計畫主持人：張士昱

共同主持人：陳韡鼎

計畫參與人員：楊佳興、蔡羽貞、陳瑤婕

本計畫除繳交成果報告外，另含下列出國報告，共__1__份：

執行國際合作與移地研究心得報告

出席國際學術會議心得報告

期末報告處理方式：

1. 公開方式：

非列管計畫亦不具下列情形，立即公開查詢

涉及專利或其他智慧財產權，一年二年後可公開查詢

2. 「本研究」是否已有嚴重損及公共利益之發現：否 是

3. 「本報告」是否建議提供政府單位施政參考 否 是，_____（請列舉提供之單位；本部不經審議，依勾選逕予轉送）

中華民國 104 年 10 月

摘要

本計劃在 2013-2015 年 3 月至 4 月於恆春海生館進行大氣污染物逐時觀測，以逐時 PM_{2.5} 水溶性陰陽離子與氣膠垂直分佈等數據，配合氣象因子(溫濕度、風向與風速)、氣態污染物(O₃、SO₂、CO 與 NO₂)與粒狀污染物(PM₁₀ 與 PM_{2.5})濃度進行同步觀測，並使用逐時氣象因子與氣流軌跡模式(HYSPLIT)來區分不同傳輸事件，並以 PMF 源解析模式進行污染來源的分類。

依據不同風向了解高屏地區人為污染，其結果表示 PM_{2.5} 質量濃度在西北風發生時為濃度最高時期，平均為 23.6 $\mu\text{g}\text{m}^{-3}$ ，相較於其他風向影響高出了 10 $\mu\text{g}\text{m}^{-3}$ 。主要的污染排放源為交通污染及工廠所排放。以 PMF 模擬逐時量測結果可辨別出四次生質燃燒高濃度污染的事件，配合現址光達(LIDAR)的氣膠垂直分佈觀測與氣象模式(WRF)的垂直風場剖面模擬，進一步可判別出中南半島生質燃燒經由下沖氣流影響恆春地區大氣環境的時間分布。利用同步的地面逐時生質燃燒指標污染濃度可區別生質燃燒經由下沖傳輸、東北季風境外傳輸與鄰近排放的氣膠特徵差異，且下沖傳輸的過程中對於恆春地區 PM_{2.5} 的貢獻則可高達 10 $\mu\text{g}\text{m}^{-3}$ 左右。

關鍵字：中南半島、生質燃燒、下沖氣流、PMF 源解析模式

Abstract

Hourly measurements of meteorological parameters (temperature, relative humidity, wind direction and wind speed), particulate and gaseous pollutants (PM_{10} , $\text{PM}_{2.5}$, O_3 , SO_2 , CO and NO_2), chemical compositions of $\text{PM}_{2.5}$ (water soluble ions and carbonaceous materials), and vertical distribution of aerosols were made from March to April during 2013 to 2015 at Hungchen in Taiwan. The HYSPLIT and hourly measurements of meteorological parameters were applied to distinguish the weather condition. And the sources of pollution and their contributions were estimated using the positive matrix factorization (PMF) model.

In this work, according to the four types of air masses were identified as Anthropogenic emissions from Kaohsiung and Pingtung area. As the result, the highest concentration occurred in the period of Northwest wind, the average of $\text{PM}_{2.5}$ is $23.6 \mu\text{g m}^{-3}$, and the contributed more than $10 \mu\text{g m}^{-3}$ within the other type, whereas pollution emissions from diesel and gasoline vehicles and industrial emissions. The biomass burning achieved its higher source contribution on four periods by PMF model to identify pollutant characteristics. The downwash processes were verified that the occurrence of peak in biomass burning tracer concentration was consistency with the period of downwash transport in the ground station. The vertical distribution of aerosols measured from the in situ LIDAR and the vertical wind section simulated from the meteorological model were used to define the period of the downwash transport. The biomass burning pollutants from the Indo-China Peninsula were regarded as the tracer to observe the downwash transport of the upper atmosphere. The contributed increased approximately $10 \mu\text{g m}^{-3}$ of the mass concentration of $\text{PM}_{2.5}$.

Keywords: Indo-China Peninsula, biomass burning, downwash, positive matrix factorization (PMF) model

目錄

摘要.....	I
Abstract.....	II
目錄.....	III
圖目錄.....	IV
表目錄.....	IV
一、前言.....	1
二、研究目的.....	1
三、文獻探討.....	2
3.1 氣膠來源的特徵與辨別.....	2
3.2 中南半島生質燃燒氣膠傳輸至台灣的相關研究.....	3
3.3 台灣本島污染與大陸污染傳輸.....	4
3.4 二次衍生氣膠生成的影響因子.....	7
四、研究方法.....	9
4.1 觀測時間與地點.....	9
4.2 觀測設備與方法.....	9
4.3 大氣環境類型判定.....	10
4.4 PMF 受體模式.....	11
4.5 統計軟體、方法及繪圖軟體.....	11
五、結果與討論.....	12
5.1 逐時趨勢.....	12
5.2 2013-2015 年污染來源辨別與其對於 PM _{2.5} 貢獻	15
5.2.1 PMF 分析結果---2013 年.....	15
5.2.2 PMF 分析結果---2014 與 2015 年.....	17
5.3. 高屏地區污染對於下風處的影響.....	20
5.4 生質燃燒下沖傳輸辨別.....	22
5.4.1 以氣相污染物變化及 PMF 辨別下沖傳輸時期.....	22
5.4.2 下沖傳輸期間高空氣膠垂直掃描與逆軌跡污染物傳輸途徑確認.....	22
六、結論.....	26
七、致謝.....	26
八、參考文獻.....	26

圖目錄

Fig. 1 光達(Lidar).....	10
Fig. 2 A. In-situ IC 系統示意圖。B.為大氣組成量測系統(In-situ Air Composition Measuring Equipment, ACME)包含 In-situ IC 系統與水溶性有機物量測系統。.....	10
Fig. 3 氣象條件與污染物逐時變化趨勢	13
Fig. 4 PM _{2.5} 逐時水溶性離子分析結果	14
Fig. 5 2013 年 PMF 源解析結果	16
Fig. 6 2013 年各污染源對 PM _{2.5} 質量濃度的貢獻	16
Fig. 7 2014 年 PMF 源解析結果	18
Fig. 8 2014 年各污染源對 PM _{2.5} 質量濃度的貢獻	18
Fig. 9 2015 年 PMF 源解析結果	19
Fig. 10 2015 年各污染源對 PM _{2.5} 質量濃度的貢獻	19
Fig. 11 生質燃燒污染物貢獻高值的氣膠垂直分布圖	24
Fig. 12 生質燃燒第 III 時期垂直風場剖面圖	24
Fig. 13 第一次下沖事件 PM _{2.5} 中化學組成濃度變化(μgm^{-3}).....	25
Fig. 15 第二次下沖事件 PM _{2.5} 中化學組成濃度變化(μgm^{-3}).....	25
Fig. 14 火點及逆軌跡模擬結果	25

表目錄

Table 1. $[\text{NO}_3^-]/[\text{SO}_4^{2-}]$ 當量濃度比之相關文獻.....	3
Table 2. 不同風向的氣象因子及污染物濃度比較.....	21
Table 3. 不同風向的 PM _{2.5} 離子組成	21

一、前言

先前研究指出每年百噸的生質燃燒造成大量的氣態污染物以及氣膠的增加，而大氣氣膠中有機物為普遍存在的物質(Kanakidou et al., 2005)，氣膠中有機物的組成受到不同環境及時間的影響而改變(Zhang et al., 2007)，有機氣膠中絕大部分為水溶性有機物，水溶性有機物會**直接影響雲凝結核的屬性**及核凝結的能力(Jacobson, 2001; Seinfeld and Pandis, 2006)，並對於氣候變遷及水循環皆有**重要的影響**。Jaffrezo et al. (2005)的研究顯示水溶性有機物佔有機物的比例在都市地區為 10%，而在鄉村則為 70~80%，水溶性有機物在不同區域與氣象條件下佔有機物的比例有所差異，且潮解氣膠的異相化學反應中仍有諸多未確定的反應過程(Pathak et al., 2011)。Cheng et al. (2014)指出生質燃燒期間氣膠中各化學物質成份均增加 2 至 7 倍，而且硫酸鹽與液相物質的氧化反應在不同相對濕度下對於水溶性有機物生成有相當重要的影響，因此生質燃燒污染物及其衍生污染物對於氣候的影響是極為重要的問題。Streets et al. (2003)指出亞洲地區生質燃燒量估計每年約有 730 Tg，包含人為與自然來源，其中有森林、農作廢棄物及草原等燃燒類型，而亞洲各國生質燃燒貢獻量依序為，中國佔總數的 25%，印度佔總數的 18%，印尼佔總數的 13% 以及緬甸佔總數的 8%。台灣除了本島所產生的本地污染物質，在盛行季風的天氣系統下，高污染事件發生的原因極可能來自中國大陸污染物與沙塵的長程傳輸，以及隨著上層西風所夾帶的東南亞生質燃燒污染。若能了解在不同的天氣系統下，污染物質的來源及組成，將有利於評估空氣品質及確立優先改善的污染來源。

近年來台灣南部地區春季降雨的頻率與強度並不穩定，常有面臨乾旱的危機或遭遇強降雨的危害。台灣南部地區的春季降雨受到大陸冷高壓強度與南移範圍有密切關聯，而中南半島生質燃燒污染物中含有大量可參與雲凝結反應所需的物種，在兩者的交互影響下，即便原本大陸冷高壓強度與南移範圍足以達到降雨的條件，此時若受境外污染傳輸而增加雲凝結核的濃度，可能導致降雨機率降低或強降雨的發生。先前的觀測可發現下沖氣流傳輸發生在大陸冷高壓與中南半島生質燃燒氣流的交會處，但下沖傳輸至地表的時間僅維持數小時，若能分析此數小時內的氣膠成分特徵變化，將有助於瞭解人為污染物對於降雨的影響。但目前為止，受限於觀測數據的時間解析與空間分佈，相關的觀測數據並不足以提供探討此一現象。

二、研究目的

1. 辨別高屏地區污染物對於恆春地區傳輸的氣膠組成特徵與污染源貢獻。
2. 藉由衛星火點觀測、氣象模擬、氣膠垂質分佈與水溶性離子的逐時變化，驗證中南半島生質燃燒污染物經下沖氣流傳輸的現象。

三、文獻探討

本研究以了解中南半島生質燃燒下沖現象為出發點，探討本地污染與跨境傳輸間的交互作用，並利用已發表的文獻定義氣膠來源、氣膠年齡與污染物質傳輸的遠近，以下與本計畫有關的研究情況共分為(1) 氣膠來源的特徵與辨別；(2) 中南半島生質燃燒氣膠傳輸至台灣的相關研究；(3) 台灣本島污染與大陸污染傳輸。

3.1 氣膠來源的特徵與辨別

「氣膠」(Aerosol)是懸浮在空氣中的液態或固態粒狀物質，也常被稱為「氣溶膠」或「懸浮微粒」。大氣懸浮氣膠依據來源大致可區分為自然與人為來源，氣膠因為其來源、形成條件及傳播途徑的不同，而具有不同的物理和化學性質。若依據氣膠在大氣中生成機制的差異，大致上可分為原生(primary)與二次衍生(secondary)氣膠。原生氣膠主要源自於污染源的直接排放，例如風蝕揚塵、海水飛沫、火山爆發所釋出的火山灰或燃煤電廠等大型燃燒器所排出的煙塵等，原生微粒的粒徑分佈較廣，但大部份分布在粒徑大於 $2.5\mu\text{m}$ 的粗粒徑範圍內；二次衍生氣膠則主要由於氣態分子在大氣中經由物理及化學反應所衍生，這些氣態分子稱為二次氣膠的「前驅物」(precursor)，例如：酸鹼氣體的中和反應、膠凝與凝結反應等，二次衍生氣膠的粒徑分佈則主要分佈在細粒徑的範圍內。氣膠化學組成可提供探討氣膠來源及對於環境影響最直接的訊息，氣膠主要組成包括無機水溶性離子、有機碳與元素碳、金屬元素與水等物種。

許多的研究探討氣膠水溶性物種組成與氣膠來源特性的關係，氣膠水溶性物種的時間與空間分佈受到氣相污染物與大氣狀況的影響。農廢燃燒可產生大量的 K^+ 與 Cl^- (Park et al., 2004; Allen et al., 2004)以及有機物質的增加(Bae et al., 2014)。都會區的二次氣膠含有大量的 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 與 NH_4^+ (Grosjean, 1989)，在高溫高濕、低風速與無降雨的大氣環境下，二次氣膠生成與氣相前驅物(SO_2 、 NO_x 與 NH_3)有關聯(Pio et al., 1996; Chow et al., 1998)。氣膠內的 Mg^{2+} 與 Ca^{2+} 主要來自地殼元素(Allen et al., 2004)，在沙塵影響期間， Ca^{2+} 與 PM_{10} 有一致的濃度遽增變化，且 Ca^{2+} 對於氣膠物種組成的貢獻度增加(Hatakeyama et al., 2004; Topping et al., 2004)，Funasaka et al. (2003)以 Ca^{2+} 量測濃度高於月平均濃度的1.05倍定義沙塵影響時間。海鹽氣膠主要含有 Na^+ 、 Cl^- 與 Mg^{2+} ，且其大氣濃度深受風速與風向的影響(Kocak et al., 2004)。而粗粒徑微粒中的succinic acid、 Na^+ 及 NO_3^- 之間的相關性高，表示三者均與海洋氣膠有關，其中succinic acid為海洋所排放的不飽和脂肪酸經過光化分解後的產物(Hsieh et al., 2007)。氣膠 NO_2^- 可來自交通工具與生質能燃燒的直接排放，亦可來自二次污染物的生成，其反應為 NO_x 在潮濕地表與氣膠表面經由異相反應生成 HNO_2 ， HNO_2 可在氣相與氣膠間快速達到平衡，氣膠可視為大氣中 HNO_2 的主要儲存場所。然而， HNO_2 在日間因光解反應可快速生成 OH^- 與 NO ，其濃度高值皆發生在夜間 (Rondon and Sanhueza, 1989; Kurtenbach et al., 2001; Rubio et al., 2002)。

Mogan et al. (2010)與Frenney et al. (2011)利用CO/NO_x的比值判斷氣膠傳輸為新生氣膠或老化氣膠，當比值為5-10代表為都市來源，10-50為臨近污染源，比值>50則為遠離污染源。Henning et al. (2003)則使用NO₃⁻/SO₄²⁻當量比來判斷鄰近污染源與遠離污染源，如表3-1 所示，主要有兩個因素影響此比值的大小，NO_x相較於SO₂氧化的速率更快，在鄰近污染源時產生的NO₃⁻濃度較高，所以比值較高；而遠離污染源，氣膠經長距離傳輸會造成硝酸銨的揮發，致使比值偏低。

Table 1. [NO₃⁻]/[SO₄²⁻]當量濃度比之相關文獻

類型	採樣地區	NO ₃ ⁻ /SO ₄ ²⁻	參考文獻
鄰近污染源	瑞士-蘇黎世	0.7	Hueglin (2000)
鄰近污染源	義大利-米蘭	1.1	Putaud et al. (2002)
鄰近污染源	英國-韋伯恩	1.6	Yeatman et al. (2001a)
遠離污染源	阿爾卑斯山	0.3	Preunkert et al. (2002)
遠離污染源	喜馬拉雅山	0.2	Shrestha et al. (1997)
遠離污染源	冒納羅亞山	0.2	Galasyn et al. (1987)
遠離污染源	少女峰	0.2	Krivacsy et al. (2001a) Henning et al. (2003)

在特定地點的氣膠特性量測結果，可顯示氣膠的可能來源與所歷經的大氣物化反應，增進鄰近地區大氣污染物特性的了解，更有助於辨別外來污染物輸送與本地污染排放對於環境的影響。許多研究根據不同天氣系統與污染事件下單一採樣點的量測結果，以受體模式與統計方法配合氣流逆軌跡與大氣狀況模擬判斷該採樣區域的大氣污染物來源，此一方式雖常用於推估大氣污染源特性的研究，但對於外來污染物傳輸量與本地污染排放量的差異卻無法準確區分，尤其對於探討二次衍生氣膠來源的研究而言，本地二次硫酸鹽氣膠與外來傳輸硫酸鹽氣膠具有相同化學組成與粒徑分佈的特性，此一原因往往限制評估本地二次硫酸鹽氣膠貢獻量與生成機制的研究。

3.2 中南半島生質燃燒氣膠傳輸至台灣的相關研究

每年春季(2至4月)中南半島及亞洲地區生質燃燒事件發生頻率最高，先前的研究指出中南半島生質燃燒污染物會藉由熱浮力傳輸至高層西風帶，其生質燃燒所產生污染物會隨盛行季風與高層西風往東傳輸至東亞下風處，進而影響台灣地區的空气品質與生態環境(Streets et al., 2003; Wang et al., 2012)。Lin et al. (2009)指出除了熱浮力的傳輸機制外，透過氣象模式的模擬結果指出在天氣條件適合下，中南半島地形的背風面會形成背風槽造成生質燃燒污染物上升至高層西風帶，為相當重要的傳輸機制之一。

在中南半島生質燃燒源區的研究顯示，Tsai et al. (2012) 在泰國清邁於生質燃燒期間進行PM₁₀的氣膠特性研究，結果發現當生質燃燒事件發生時，PM₁₀濃度高達140 μg m⁻³遠高於非生質燃燒事件，而事件發生時，其化學組成中K⁺與左旋葡萄糖(Levogluconan)具有高度相關性，顯示此兩種物質來自相同的來源，

且先前的文獻指出 K^+ 與左旋葡萄糖為生質燃燒的重要指標(Zhang et al., 2010)。Chuang et al. (2012)於 2010 年 3~4 月在鄰近東南亞生質燃燒源區的北印度及柬埔寨進行 $PM_{2.5}$ 與 PM_{10} 氣膠特性分析，其 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 的比例達 0.73 ± 0.09 ，顯示生質燃燒活動產生較多的 $PM_{2.5}$ ，其中 K^+ 離子佔 $PM_{2.5}$ 比例高達 2.51%，相較於其他生質燃燒研究有較高比例，而 $PM_{2.5}$ 中 OC 與 EC 的相關性分析顯示兩者具有高度相關($R^2=0.84$)，代表此兩種物質皆由生質燃燒活動直接貢獻。

在中南半島生質燃燒傳輸的下風處研究結果則顯示，Chuang et al. (2012)分析七海計畫中東沙群島的量測結果，由於東沙群島環境周圍並無明顯污染源，因此適合觀測不同氣流的影響，藉由氣流軌跡模式回推氣流的來源，將觀測期間分成亞洲大陸氣流、菲律賓氣流及西太平洋氣流，結果發現亞洲大陸氣流與菲律賓氣流的 $PM_{2.5}$ 氣膠特性類似，可能與人為污染有關，而亞洲大陸氣流會挾帶亞洲沙塵暴，在沙塵暴影響期間 $PM_{2.5-10}$ 中 Ca^{2+} 也有較高的情形。但在東沙群島實驗中並無明顯觀測到中南半島生質燃燒的影響，可能與污染物為經高層大氣傳輸有關。

就生質燃燒的氣流軌跡而言，台灣的地理位置相對於東沙群島為更下風處，但台灣因有高海拔山脈可觀測生質污染物隨大氣高層西風帶的傳輸。鹿林山測站位於台灣中部山區，由於海拔高度(2,862 公尺)較高，受到本地污染的干擾較小，適合觀測長程傳輸污染物的氣膠特性。Lee et al. (2011)在鹿林山測站研究結果發現， $PM_{2.5}$ 平均濃度在中南半島生質燃燒影響期間為 $17.5 \mu g m^{-3}$ ，其中最大日平均值可達 $40 \mu g m^{-3}$ ，此時氣膠中 K^+ 濃度顯著高於平日時期的濃度，顯示來自於中南半島生質燃燒污染物可經由氣流傳輸影響鹿林山。Yen et al. (2012)在 2010 年 3 至 4 月分析恆春海生館密集觀測的數據，藉由氣象模式推論中南半島生質燃燒活動產生強烈的熱浮力，可將污染物往上抬至 850 hPa 以上的西風帶，經西風將大量的生質燃燒污染物往東傳輸至台灣，當遇到大陸冷高壓南移過程中，可能經由下沖氣流影響地表環境的空氣品質。

3.3 台灣本島污染與大陸污染傳輸

台灣位處中國大陸東南外海，大氣環境深受陸地與海洋季風的影響，在每年秋季至春季，盛行季風自亞洲內陸地區向東南太平洋傳輸，同時亦將中國大陸的污染物向外傳輸至韓國、日本與台灣等地區(Chang et al., 2006a; 2006b; Bae et al., 2014)；當季風影響減弱時，台灣本地的污染排放往往是造成大氣污染的主要原因(Tsung et al., 2003)。台灣地區空氣品質受天氣型態影響，秋末與冬季時期，中南部地區因位於中央山脈背風面，風速微弱且日照較強，清晨近地面極易形成逆溫層，不利於污染物的擴散，空氣品質較差(環保署, 2005)。

一般都會地區 PM_{10} 、CO 及 NO_x 多來自機動車輛，三種污染物濃度會因氣象條件變化而受到影響，彼此存有高度相關性(Smith et al., 2001)。然而 PM_{10} 污染除來自機動車輛的直接排放，張順欽和李崇德(2005)研究 1994 年至 2003 年台北市空氣品質監測結果，發現台北都會地區在高光化活性下，二次生成氣膠

亦占 PM_{10} 重要比例。張順欽等(2005)分析環保署新莊超級測站資料顯示，強烈光化活性下二次氣膠增量相當顯著，二次氣膠高值發生時間約與 O_3 高值同時或落後 1 至 2 小時。在高臭氧污染事件日時，增加的二次氣膠濃度可佔 PM_{10} 的 38%；或佔 $PM_{2.5}$ 的 48%。Chang et al. (2010)收集 2002-2008 年台灣北部微粒超級測站資料，利用每日 $O_{3,max}$ 來進行分層分析，當每日 $O_{3,max}$ 大於 100 ppb 相較於每日 $O_{3,max}$ 小於 40 ppb 的 $PM_{2.5}$ 、EC、OC、 NO_3^- 及 SO_4^{2-} ，其濃度增幅分別為 124%、78%、72%、130% 及 127%，且 CO 濃度也增加 35%，此結果證明強烈的大氣光化學反應生成更多的衍生性氣膠。Park et al. (2013)利用 CO/ NO_x 及氣流軌跡模式去判斷污染來源及氣流來源，將採樣期間分成兩種事件，事件一為南中國生質燃燒長程傳輸事件，其污染特性為高 CO/ NO_x 及高濃度 K^+ ，且 OC 對於 EC 與 K^+ 間存在高度相關，顯示 K^+ 與含碳物質有相同的來源；事件二則為本地污染事件，其污染特性為低 CO/ NO_x ，且觀察到 EC、OC 及 NO_3^- 的濃度變化趨勢相同。Cheng et al. (2013)在南京、蘇州、杭州、寧波與上海的長三角區域研究中，生質燃燒為霧霾事件的主要貢獻源，生質燃燒所排放的物質佔了 $PM_{2.5}$ 的 37%，在 OC 與 EC 中則分別佔了 70% 及 61%，且氣膠中的非塵土 K^+ 與含碳物質劇增。且進一步利用逆軌跡與衛星火點圖探討生質燃燒污染來源，其來源除了當地燃燒排放的污染外，還包含了安徽、江蘇、浙江與其他區域，表示開放式的生質燃燒污染物會經由空氣的流通傳輸到其他地區。在 Bae et al. (2014)在韓國濟州島的冬季研究顯示，亞洲大陸的生質燃燒污染物質會經由冬季季風的長程傳輸影響韓國，使得污染物質中的 OC 與 EC 濃度增加。Yu et al.(2013)以 PMF (Positive Matrix Factorization)受體模式判斷北京 2010 年的空氣中微量元素的來源，其來源與對於 $PM_{2.5}$ 質量濃度的貢獻、比例與特徵元素分別為：二次硫化物(S)- $13.8 \mu g m^{-3}$ (26.5%)、汽機車排放(Cu、Zn、Mn、Br、Pb 與 Ba) $8.9 \mu g m^{-3}$ (17.1%)、石化燃料燃燒過程(Cl, Se, V, Ni, As, and Pb)- 8.3 mgm^{-3} (16%)、道路揚塵(Si、Fe、Al、Ca、Cr、Ni、Cu、Zn、As、Ba 與 Pb)- $6.6 \mu g m^{-3}$ (12.7%)、生質燃燒(K)- $5.8 \mu g m^{-3}$ (11.2%)、塵土揚塵(Mg, Al, Si, Ti, Ca, and Fe) - $5.4 \mu g m^{-3}$ (10.4%) 與金屬加工過程(Fe, Mn, Al, V, and Cr)- $3.1 \mu g m^{-3}$ (6.0%)。而在春秋冬季的污染來源以“燃燒”所產生微量元素 K、Cl、Se、V、Ni、As 與 Pb 為主。

Fang et al.(2004)量測台中市郊與台中工業區的總懸浮微粒組成，主成分統計分析顯示工業製程與交通污染排放為工業區的主要微粒污染來源，土壤塵土與交通排放則為市郊地區的主要微粒污染來源。以模式探討台中地區污染物來源，粗粒徑微粒在事件日與非事件日下無顯著差異，約有 60-66% 來自面源污染。當污染事件發生時，點源的污染排放為 $PM_{2.5}$ 微粒主要來源，約貢獻全部 $PM_{2.5}$ 微粒質量的 27%；但在非事件日時， $PM_{2.5}$ 微粒的主要污染源通常來自外來污染物經長距離的傳輸。此外，海陸風對流效應在事件日下增強，沿海電廠所排放的污染物經由對流效應對於都會區的危害將增大。在微粒粒徑分佈的分析結果顯示， Cl^- 、 NO_3^- 、 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 與 Fe 主要分佈在粗粒徑範圍， SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 、Zn、Pb 與 Ni 則主要分佈在細粒徑範圍(Tsuang et al., 2003)，而日夜微粒的變化顯示

Cl 與 Na⁺ 在下午受到海風傳輸影響而濃度增加(Fang et al., 2002b)。Cheng et al. (2009) 在台中地區的研究發現農廢燃燒期間 PM_{2.5} 與 PM_{2.5-10} 濃度分別為 123.6 與 31.5 μg m⁻³，且當農廢期間 PM_{2.5} 中 Cl⁻、K⁺ 及 NO₃⁻ 分別高於非農廢期間 11.0、6.7 and 5.5 倍，研究中以鉀離子在細粒徑中的濃度(FK)與鉀離子在粗粒徑中的濃度(CK)的比例來判斷生質燃燒的指標，結果顯示農廢期間與非農廢期間 FK/CK 分別為 10.7 與 3.9。Ryu et al. (2007) 指出氣膠組成中 FK/CK 大於 9.2，表示有受到生質燃燒的影響。

2004 年 9-11 月台南郊區所做的研究中表示，非高污染時期平均混合層高度為 320.2±273.8m，而高污染時期平均混合層高度為 277.0±176.8 m，顯示在高污染時期大氣混合層轉低，導致區域性的污染物無法達到擴散而累積在當地。無論是高污染時期或非高污染時期，從各成分的濃度表現仍可看出一致的趨勢 SO₄²⁻ > NO₃⁻ > NH₄⁺，在主要無機鹽 Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺、Cl⁻、NO₃⁻ 和 SO₄²⁻ 成分都較高，乃因為台南地區靠海，沿岸有魚塭的存在，而氣膠 NH₄⁺、K⁺ 和 Cl⁻ 濃度上升趨勢顯示，高污染時期的污染來源主要為農廢燃燒所引起，且二元酸的成分幾乎完全偏向較細微粒的粒徑範圍，因而在細微粒部分的濃度都有明顯的偏高(黃香儒, 2005；Hsieh et al., 2008)。探討台灣高雄屏東的城市/工業/農業綜合無機離子分佈，發現在懸浮微粒增加的事件當中以 0.1-1.0 μm 細微粒為主要增加對象。其中氣相的 NO₂ 及 SO₂ 分別為氣膠中硝酸鹽及硫酸鹽的前驅物質，並且轉換後以 0.1μm 超細粒徑的氣膠為主。Lin et al. (2012) 研究屏東地區的露天農廢燃燒，發現 PM_{2.5}/PM₁₀ 在燃燒前、燃燒期間及燃燒後分別為 0.57、0.90 及 0.55，顯示燃燒活動產生較多的細粒徑微粒，而燃燒期間 OC 與 K⁺ 為濃度增幅最大的物種，且此兩物種佔 PM_{2.5} 分別為 70.5% 與 2.28%，代表 OC 與 K⁺ 為農廢燃燒的重要指標物種。Wang et al. (2008) 利用 CMB 受體模式(Chemical mass balance, CMB) 分析屏東市(都市)與潮州鎮(鄉村)的污染貢獻源，結果顯示屏東市主要污染來源為移動污染源(49.3-62.4%)與衍生性鹽類(31.2-37.8%)，而潮州鎮則以農廢露天燃燒(25.3-50.4%)、衍生性鹽類(27.2-34.3%)及移動污染源(12.0-26.9%)為主要污染來源，代表不同的城市類型，污染來源也會有所不同。

亞洲大陸的污染傳輸事件的研究中，大陸污染可在 12 小時內經由長程傳輸影響台灣，在台灣北部持續可長達 36 小時，而由於天氣系統的變化，約 3-12 小時後測得台灣東部與西部地區污染濃度增加(Liu et al., 2006)。Chang et al. (2010) 以台灣空氣品質監測站數據分析亞洲大陸的污染傳輸，數據包含 CO、氮氧化物(NO_x = NO + NO₂)、SO₂、O₃、與微粒的質量濃度(PM₁₀ and PM_{2.5})，長時間數據分析中 2006 年 3 月發生高污染物件，利用逆軌跡來源辨別判定為長程傳輸事件，長程傳輸過程中，台灣測站的微粒濃度數據由北至南有依序增加的趨勢，且 SO₂、O₃ 與 CO 均隨東北季風傳輸影響台灣地區，NO_x 在同段時間中沒有明顯增加，可能的原因為傳輸過程中已反應成硝酸鹽類。Lin et al. (2005) 評估 2000-2001 年冬季季風影響下的空氣污染物來自於亞洲大陸，在長程傳輸的影響下 PM₁₀ 濃度

約增加了 $30\mu\text{gm}^{-3}$ ，CO 與 SO_2 的貢獻分別為 230 與 0.5ppb，以沿海地區受到的衝擊較都會地區高，其範圍包括台灣北部和東部地區，以及小部分的西部平原。

3.4 二次衍生氣膠生成的影響因子

Galindo et al. (2008)在地中海西部沿海地區的量測結果顯示，夏季因太陽輻射強， SO_2 可快速被氧化形成硫酸鹽，使得硫酸鹽相較於其他季節在 PM_{10} 與 $\text{PM}_{2.5}$ 氣膠中皆佔有最大比例。但夏季時硝酸鹽僅在粗粒徑氣膠組成所佔比例略為增加，硝酸鹽在細粒徑氣膠中不管是濃度或是質量百分比組成皆偏低。Kumar et al. (1998)在美國 Fresno 地區的冬季氣膠量測結果顯示二次衍生硝酸銨為 $\text{PM}_{2.5}$ 氣膠質量組成中佔有最大比例的化學物種，在都會區 $\text{PM}_{2.5}$ 氣膠質量組成中通常含有超過 50% 的二次衍生硝酸銨，在非都會區二次硝酸銨所佔比例甚至更高，在冬季因為充裕的氮氣與低溫有利於由氣相趨向固相反應，氣相的硝酸氣體約僅佔總硝酸鹽 10-20% 的比例。有機碳與元素碳在都會區大約佔 $\text{PM}_{2.5}$ 氣膠質量組成的 20-40%，但在非都會區 $\text{PM}_{2.5}$ 氣膠中的有機碳與元素碳比例略低。 $\text{PM}_{2.5}$ 氣膠中其餘組成為硫酸銨與懸浮性塵土物質。在地表風速低、日照時數少、太陽仰角低與太陽輻射被雲與霧遮蔽下，雖然光化反應所產生的硝酸與臭氧反應速率較慢，但其所導致的二次衍生硝酸銨氣膠在廣達 64000 km^2 地區皆出現濃度均一的高污染事件。Watson 與 Chow (2002)在同一地區由每日變化的量測結果更進一步說明，冬季逆溫層可導致二次衍生氣膠高濃度的污染事件，此外，許多原生性氣膠在冬季夜間與清晨的污染排放呈現累積現象，當地表受太陽照射而溫度增加時，原生性污染物如黑炭與 PAH 的濃度將快速遞減，但須分析時間解析度為 5-10 分鐘的量測技術才足以觀測其變化。

Chu (2004)分析 2000-2002 Speciation Trends Network 的 $\text{PM}_{2.5}$ 污染事件，發現雖然 $\text{PM}_{2.5}$ 高污染事件在每一季節皆可能發生，但在夏季的污染事件中，酸性的硫酸鹽氣膠為主導高濃度 $\text{PM}_{2.5}$ 的主要組成，且其最高濃度並非發生在太陽輻射最強的時候。Wang et al. (2005)分析北京地區 2001-2003 三年的 $\text{PM}_{2.5}$ 逐日氣膠化學組成，多數離子分別在冬季與夏季有最高與最低大氣濃度，但與二次衍生氣膠相關的硫酸鹽與硝酸鹽在夏季與冬季皆有高值發生，其中發生夏季高值的原因為潮濕與強太陽輻射使得二次衍生氣膠轉換生成增加，冬季高值的原因則是因大氣擴散不佳的情況下燃煤增加導致 SO_2 排放不易移除，此一結果顯示二次衍生氣膠中硫酸鹽與硝酸鹽氣膠分別受到溫度與銨鹽分布的影響。Calvert 與 Stockwell(1984)指出在氣體均相反應中，硫酸與硝酸的重要來源為 OH 與二氧化硫及二氧化氮的反應，其中 OH 的來源可能是都會環境下的臭氧與甲醛的光化反應所產生，DeMore et al. (1983)的研究結果顯示 OH 與二氧化氮反應速率為 OH 與二氧化硫反應速率的 10 倍，因此在氣相反應中，二氧化氮的轉化速率較二氧化硫為快。Stein 與 Lamb (2003)探討在光化反應下氮氧化物對於二次衍生硫酸鹽與硝酸鹽氣膠的生成影響，發現當大氣中氮氧化物濃度較低(通常為夏季期間)，此時自由基的生成速率較氮氧化物的排放速率高，氮氧化物可經由形成硝酸而自大氣中移除，大氣中所殘留超量的自由基可進一步形成過氧化物，高度氧化狀態

的大氣環境有利於二次衍生硫酸鹽氣膠的生成。當大氣中氮氧化物濃度高(通常為冬季)，此時自由基的生成量不足以提供去除所有的氮氧化物，氮氧化物的累積導致大氣中過氧化物生成減少，二次衍生硫酸鹽氣膠因大氣環境氧化能力降低而不利於生成。其結果顯示氮氧化物的排放與太陽輻射通量的改變可影響大氣自由基的生成速率，進而影響後續二次衍生硫酸鹽反應途徑的進行。

四、研究方法

4.1 觀測時間與地點

本計畫的觀測時間為 2013-2015 年連續三年的 3 月至 4 月，中南半島在每年 3~4 月易觀測到嚴重的生質燃燒排放，此一時期中南半島的氣流經由高層西風傳輸可到達台灣地區高空，此一時期亦常發生大陸冷高壓南移通過台灣地區。

本計畫觀測地點位於台灣南部屏東縣國立海洋生物博物館內的臨海空地 (22.06N, 120.70E, 7m)，海生館位居恆春半島上墾丁國家公園的西北端，東邊與北邊連接恆春縱谷平原與中央山脈，西邊鄰近台灣海峽；西北方則為污染較為嚴重的高屏地區。Yen et al. (2012) 利用衛星火點觀測與氣象場觀測及模擬，發現受到大陸冷高壓南移過程的影響下，來自中南半島生質燃燒的污染物亦可能經由下沖氣流影響地表環境，進而影響空氣品質。此採樣點附近並無明顯的重大污染源，因此是一個觀測生質燃燒下沖氣流影響的最佳地點，且因此受到本地污染干擾較小，適合觀測外來傳輸污染物對恆春地區氣膠的影響以及高屏地區污染物對於恆春地區傳輸的氣膠組成特徵與污染源貢獻。

4.2 觀測設備與方法

本計畫觀測項目為大氣氣膠垂直分佈結構及大氣氣膠化學物種量測，採用中央研究院環境變遷中心陳韡鼎博士提供的光達系統(Lidar, Light Detection And Range)，進行大氣氣膠的垂直分析結構分析，如 Fig. 1 所示。而使用現址式空氣組成量測設備(In-situ Air Composition Measuring Equipment, In-situ ACME)進行大氣氣膠化學物種量測，此套系統為串聯計畫主持人於 2003 年所發展現址式水溶性離子氣膠連續量測(Chang et al., 2007) 與 2013 年的氣膠水溶性有機物逐時量測，量測物質包含 F^- 、 Cl^- 、 NO_2^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 Li^+ 、 Na^+ 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 與 Ca^{2+} 共 11 種水溶性離子及含碳物質的 20 分鐘濃度，In-situ ACME(如 Fig. 2 所示) 包含氣膠粒徑篩分單元、氣體捕捉單元(denuder)、濾紙收集單元、氣膠成長捕捉單元與氣膠化學物種分析單元。在入口氣膠採樣流量為 16.7 lpm 下，可依據量測需求選擇氣膠採樣入口的粒徑篩分器進行 $PM_{2.5}$ 或 PM_{10} 氣膠收集。經粒徑篩分後的採樣氣流加以分流，其中 10 lpm 採樣氣流先經由 denuder 收集氣相酸鹼物質，其餘 6.7 lpm 通入濾紙收集組中，可依照欲分析氣膠化學組成選擇合適材質的濾紙加以收集氣膠。10 lpm 採樣氣流通入氣膠成長捕捉器中，經由高溫吸濕成長與冷凝過飽和成長，以慣性衝擊方式將氣膠自空氣中移除，並通入 D.I. Water 將衝擊板上的氣膠沖洗帶出，氣態與粒狀樣品經由除泡過濾後注入離子層析儀(Chang et al., 2007)。此外，以氣膠成長捕捉單元所收集的樣品亦可與濕式氧化法有機碳分析儀(Aurora Model 1030W)分別分析氣膠中含碳物質的濃度。

另外本計畫中氣象、氣狀及粒狀污染物資料取自於環保署位於恆春海生館之移動監測站，主要為 PM_{10} 、 $PM_{2.5}$ 、 O_3 、 SO_2 、 NO_2 、 CO 、溫度、相對濕度、風速、風向、降雨等每日小時觀測值，以及使用 NOAA air Resources Laboratory 研

發的 HYSPLIT 模式 (Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory Model) 進行逆溯氣流軌跡繪製(Draxler and Rolph, 2010)。HYSPLIT 模式可直接利用個人電腦進行運作，只需選擇繪製軌跡線的區域經緯度、高度、時間等，即按照使用者的設定進行運算並繪製軌跡線。本研究以 HYSPLIT 模式模擬恆春海生館當地在不同高度的三天前氣流軌跡線來觀察氣流來源。



Fig. 1 光達(Lidar)

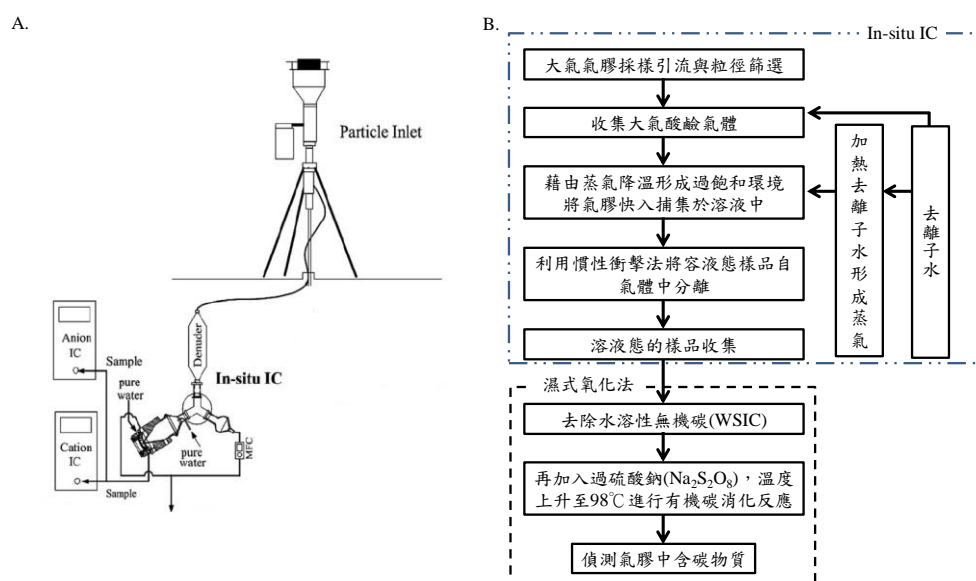


Fig. 2 A. In-situ IC 系統示意圖。B. 為大氣組成量測系統(In-situ Air Composition Measuring Equipment, ACME)包含 In-situ IC 系統與水溶性有機物量測系統。

4.3 大氣環境類型判定

首先依據風速與風向將觀測期間分類成為海陸風、西風、西北風及東北風等不同類型的氣象場，接著利用氣流軌跡模式分析不同氣流來源，將四種氣象場區分成鄰近地區污染與長程傳輸污染等傳輸類型，再來使用光達(Lidar)觀測氣膠

垂直移動的變化，以用來判斷有無氣膠下沉傳輸現象。

在微弱冬季季風影響下，日間風場受到海陸溫差形成的當地環流所主導，盛行風向為來自海洋的西北風，海風傳輸在中午過後因海陸溫差增大而更加明顯。盛行風場在中午過後轉為較高風速的西北風(海風)，傍晚至隔日中午前，盛行風場為低風速的東北風(陸風)，由於海風與陸風的污染物濃度變化差異極大，若將海風與陸風合併一起探討，會稀釋掉兩種氣流類型所表現出的污染特性，因此將海陸風傳輸畫分成海風與陸風等兩種傳輸類型。在微弱夏季季風影響的天氣類型下，大氣盛行風場為無日夜變化的西風，平均溫度與相對溼度皆相較其他天氣類型高，屬於溫暖且潮溼的氣流。西北風多發生在鋒面過境時，風速較強但持續時間短，伴隨鋒面移動，風向轉為東北風且風速增強。東北風主要受到大陸冷高壓的影響，平均溫度與相對溼度較低，屬於乾冷且風速大的氣象場。

4.4 PMF 受體模式

1994 年 Paatero 與 Tapper 所發表的源解析模式 (Paatero and Tapper, 1994)，2008 年由 USEPA 簡化 PMF 模式，並提供 PMF 5.0 使用介面 (USEPA, 2014)。PMF 為一種多元因子分析工具，以最小平方加權法進行因子分析的模式，計算來源(因子)數、來源貢獻與來源指紋。模式的使用上應具有大於 100 筆樣本的物種濃度資料與數據不確定性，且濃度資料數據的極端高值需先加以移除。所分類出的不同類別需透過污染源的物質濃度、風向與物質排放資訊等，來辨別所分類出的各類別為何種污染源所貢獻。

4.5 統計軟體、方法及繪圖軟體

本計畫採用 STATISTICA 7 (windows release by Stat Soft, Inc., 2003) 進行統計分析，而繪圖與表格製作以 Microsoft Excel 2007 與 STATISTICA 7 軟體繪製。

五、結果與討論

5.1 逐時趨勢

Fig. 3 與 Fig. 4 為氣象因子(風速 WS 與風向 WD)、氣態污染物、(SO₂、O₃、NO₂ 與 CO)、PM₁₀、PM_{2.5} 以及 PM_{2.5} 中水溶性無機離子(SO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻、Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Mg²⁺與 Ca²⁺)的逐時趨勢變化。利用逐時的趨勢變化可了解不同天氣型態下的恆春地區空氣品質現況。以下為不同天氣形態下各大氣污染物的變化:

當台灣受冬季季風影響時，來自大陸冷高壓的低溫氣流沿中央山脈(平均高度 3000m)東側由北方向南方傳輸，台灣南端因缺乏高聳山脈的地形阻隔，傳輸氣流越過山脈後在恆春地區形成高風速的東北風。台灣東部無重大的污染源，且污染物因高風速導致濃度稀釋，若無外來污染長程傳輸的情況下，恆春地區污染物濃度穩定維持在低值並且無明顯日夜變化趨勢。當東北風傳輸挾帶境外污染時 PM_{2.5} 中 NH₄⁺與 SO₄²⁻濃度上升，但 NO₃⁻濃度並無增加，此時監測結果顯示境外長程傳輸的污染貢獻大於本地的污染貢獻。

在微弱冬季季風影響下，日間風場受到海陸溫差形成的當地環流所主導，盛行風向為來自海洋的西北風，海風傳輸在中午過後因海陸溫差增大而更加明顯。因高雄都會區與林園工業區位處測站西北方上風處，此時各項污染物濃度皆有增加的趨勢，其中又以 PM_{2.5}與 O₃上升的幅度最為明顯，PM_{2.5}化學物種中 K⁺、NH₄⁺、NO₃⁻與 SO₄²⁻在海風影響期間亦有明顯的濃度遞增。傍晚過後，因海陸溫差縮小，風場由微弱冬季季風所主導，夜間盛行風向轉為東北風，所有大氣污染物濃度則明顯下降。

在微弱夏季季風影響的天氣類型下，大氣盛行風場為無日夜變化的西風，平均溫度與相對溼度皆相較其他天氣類型高，屬於溫暖且潮溼的氣流。因測站西側緊鄰海洋，人為污染源的影響甚小，各項污染物濃度呈現穩定的低值，僅 Na⁺及 Cl⁻受到海洋氣流的影響而濃度上升。

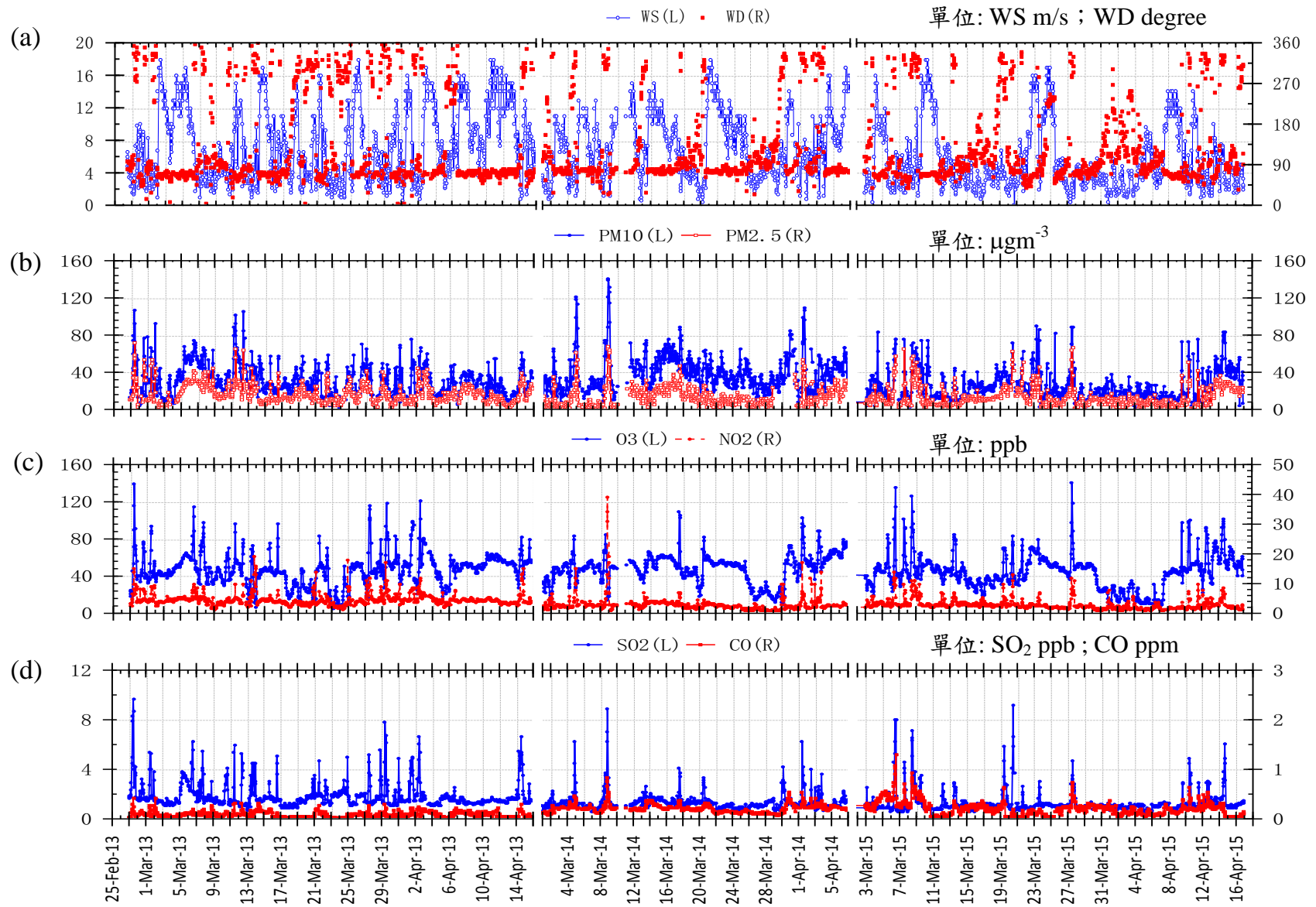


Fig. 3 氣象條件與污染物逐時變化趨勢

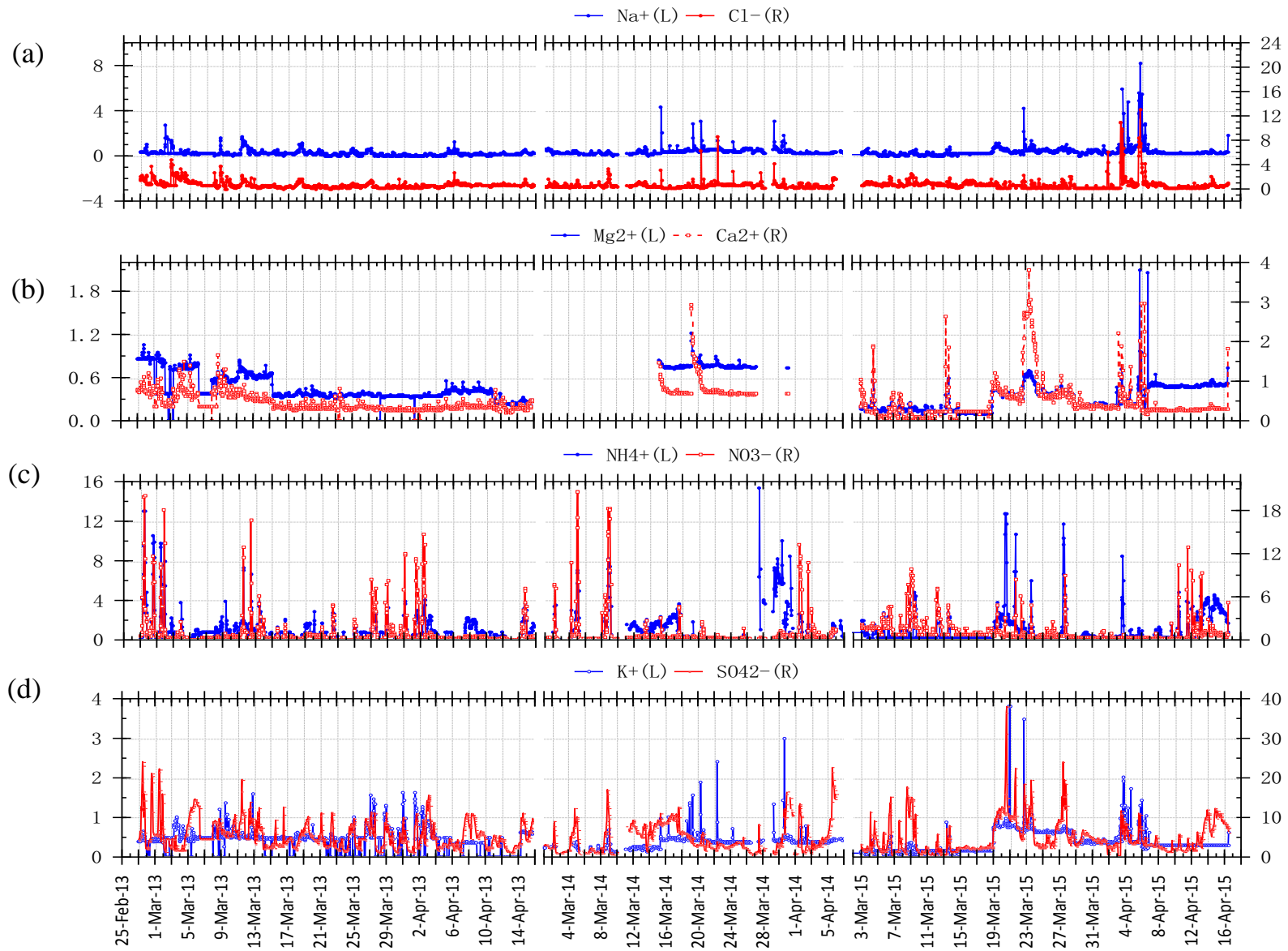


Fig. 4 PM_{2.5} 逐時水溶性離子分析結果

單位: $\mu\text{g m}^{-3}$

5.2 2013-2015 年污染來源辨別與其對於 PM_{2.5} 貢獻

依據 PM_{2.5} 中水溶性離子分析結果，進行 PMF 辨別污染來源的特徵與來源貢獻，Fig. 5 至 Fig. 10 為 2013-2015 年 PMF 的污染來源分類及各污染來源對於 PM_{2.5} 貢獻逐時圖，2013 年共分類 5 種污染來源；2014 年與 2015 年則為 6 類污染來源。

5.2.1 PMF 分析結果---2013 年

Fig. 5 與 Fig. 6 為 2013 年 PMF 源解析結果以及各污染源對 PM_{2.5} 質量濃度的貢獻，Factor 1 的特徵離子主要為 NH₄⁺, NO₃⁻，其次為 Na⁺與 SO₄²⁻。整段採樣期間均可在當地環流所主導時可觀察到 NO₃⁻與 NH₄⁺的每日清楚變化，在日間發生濃度高值；晚間的濃度漸緩。且在此時期每日最大 NH₄⁺與 NO₃⁻的相關性為 0.89，採樣地點周遭除了交通車輛行駛外無重大排放源，表示交通污染排放的 NO_x 在當地環流主導時亦與氨氣結合，並以硝酸銨 NH₄NO₃ 型態為主。硝酸的主要來源是從車輛廢氣的高溫燃燒的氮氧化物所轉化，NH₄⁺主要來源則為農業的排放和人類和動物的排泄物 (Behera et al., 2013)。

Factor 2 的分類結果中以 Na⁺與 Cl⁻為主要貢獻成分，而 Cl⁻與 Na⁺的比例為 1.26 接近為海水的成分比例，且相關性為 0.9。主要的原因為採樣地點為臨海地區，因此較易有海鹽飛沫氣膠的產生(Kocak et al., 2004)。Factor 3 分析結果以高 loading 值的 Ca²⁺ (85%)與 Mg²⁺ (86%)為主要特徵離子，且對於 PM_{2.5} 的平均貢獻為 6%，由逐時貢獻的趨勢圖中可見在高風速期間具有較高的貢獻比例，表示此污染來源為塵土及道路揚塵的貢獻(Hatakeyama et al., 2004；Topping et al., 2004)。

第四種因子清楚地辨別出 K⁺ 且與其他污染來源相比下貢獻為 94%。Park et al. (2004) and Allen et al. (2004)提出農廢燃燒可產生大量的 K⁺與 Cl⁻，表示在採樣期間 3-7 Mar, 8-14 Mar, 24-31 Mar 與 1-4 Apr 四段時期明顯受到生質燃燒影響。

第五類特徵因子為 SO₄²⁻與 Cl⁻，最高的貢獻百分比為 SO₄²⁻佔了 61%，東北季風傳輸期間為 3-6 Mar，硫酸鹽的污染貢獻自 3 Mar 開始增加至 5 Mar，6 Mar 因風速漸弱，硫酸鹽濃度逐漸下降。另一東北季風影響期間為 7-14 Apr 為，由圖中可見在此段時間 factor 5 的濃度貢獻在 7-9 Apr 有一明顯貢獻，但相較於 3-6 Mar 的貢獻程度較低。對照此段時間 EPA 測站 SO₂ 逐時變化，由台灣北部高值出現後依序為東半部在逐漸往南傳輸的現象，且 CO 濃度在東北季風傳輸期間可見濃度較其他天氣型態高。顯示在東北季風期間，硫酸鹽濃度與大陸污染傳輸有關。

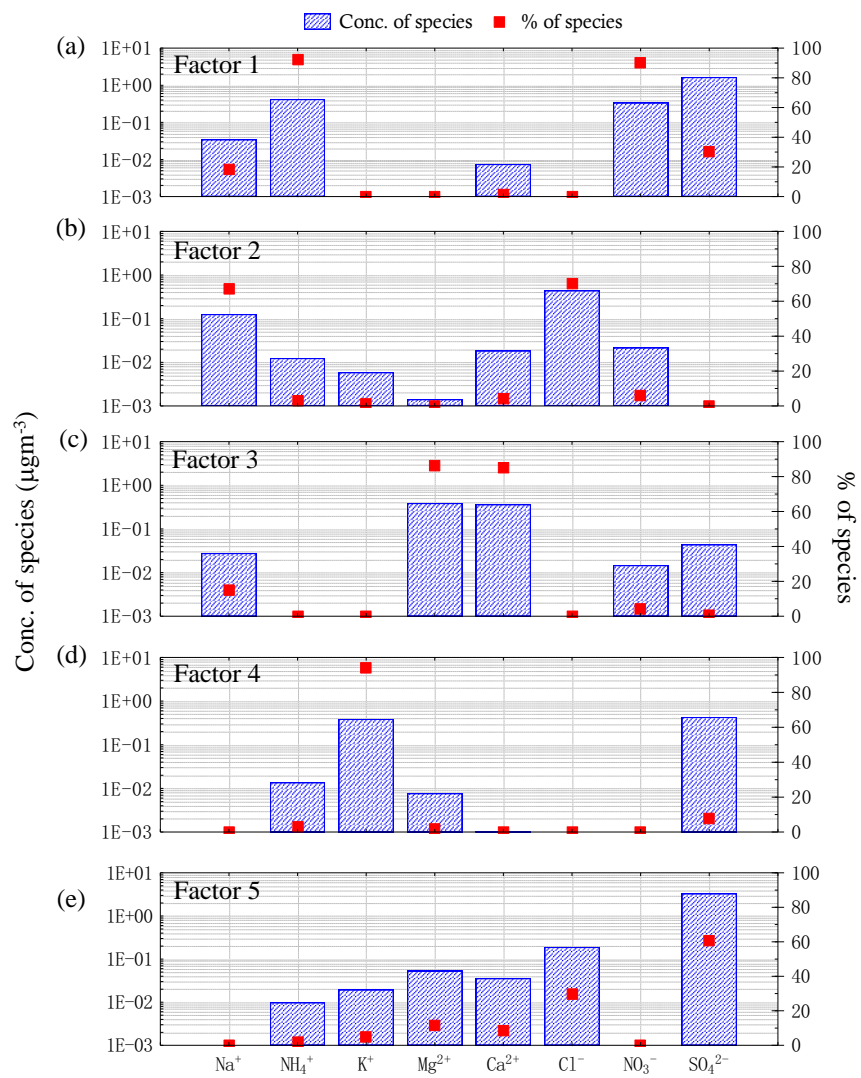


Fig. 5 2013 年 PMF 源解析結果

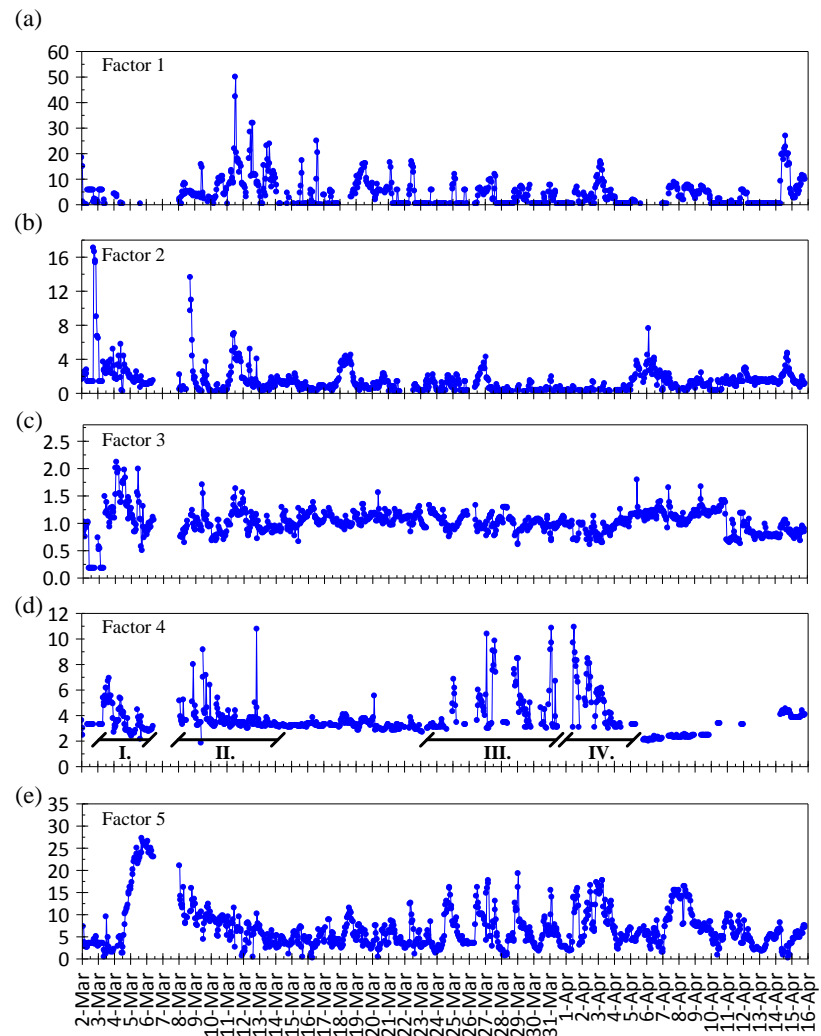


Fig. 6 2013 年各污染源對 $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度的貢獻

5.2.2 PMF 分析結果---2014 與 2015 年

2014 年分析結果中，第一類貢獻比例最高的為 NH_4^+ (90%)，其次分別為 Cl^- (29.4%)及 SO_4^{2-} (14.9%)，依據文獻表示可能的污染來源為工廠排放(Savci, 2012)，對照 $\text{PM}_{2.5}$ 逐時數據，當 $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度高於 $20\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 時，factor 1 對 $\text{PM}_{2.5}$ 的貢獻亦有增加的趨勢，且此時天氣型態為西北風為主的區域型環流所影響時期，表示可能為高屏地區近距離的傳輸污染，平均對於 $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度的貢獻約為 16%。Factor 2 的特徵組成 Na^+ 、 Cl^- 以及 SO_4^{2-} ，其主要來源為海鹽飛沫貢獻；另外 Factor 3 為塵土的貢獻來源，兩者對於 $\text{PM}_{2.5}$ 的貢獻均為穩定低值，但在 21-23 Mar 東北季風前期，受到風速較快因素導致濃度值些微增加。第四種因子的特徵成分為 K^+ 與 Na^+ ，可能受生質燃燒或海洋的影響，但 factor 4 的逐時數據相較於 2013 年 PMF 分析結果，2014 年採樣期間並無明顯的高濃度發生，而對於 $\text{PM}_{2.5}$ 的貢獻比例約 22%，根據現場採樣觀察結果可能與採樣地區周圍農作生質燃燒有關。Factor 5 的特徵離子為亞硝酸成分，為交通污染源排放所產生，高值貢獻發生於區域型環流傳輸，佔 $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度的 10%。最後一類因子為 SO_4^{2-} 及 NO_3^- ，此氣膠組成對於 $\text{PM}_{2.5}$ 貢獻最高，整個採樣期間與 $\text{PM}_{2.5}$ 逐時變化均有很好的變化趨勢且高達 36%。

Fig. 5 為 2015 年 PMF 分析結果，依據各因子的特徵離子可分類出的污染源分別為本地生成的二次氣膠(factor 1 與 factor 3)；一次交通污染源(factor 2)；長程傳輸污染物質(factor 4 與 factor 6)與海鹽氣膠飛沫貢獻(factor 5)。微弱冬季季風期間較易累積光化反應所生成的二次氣膠，與 $\text{PM}_{2.5}$ 高值發生期間一致，當天氣型態轉為冬季季風時，大氣擴散效率增加 $\text{PM}_{2.5}$ 濃度值降低，此時 $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度來源為塵土元素及硫酸鹽類，約提供 34% 的 $\text{PM}_{2.5}$ 貢獻。

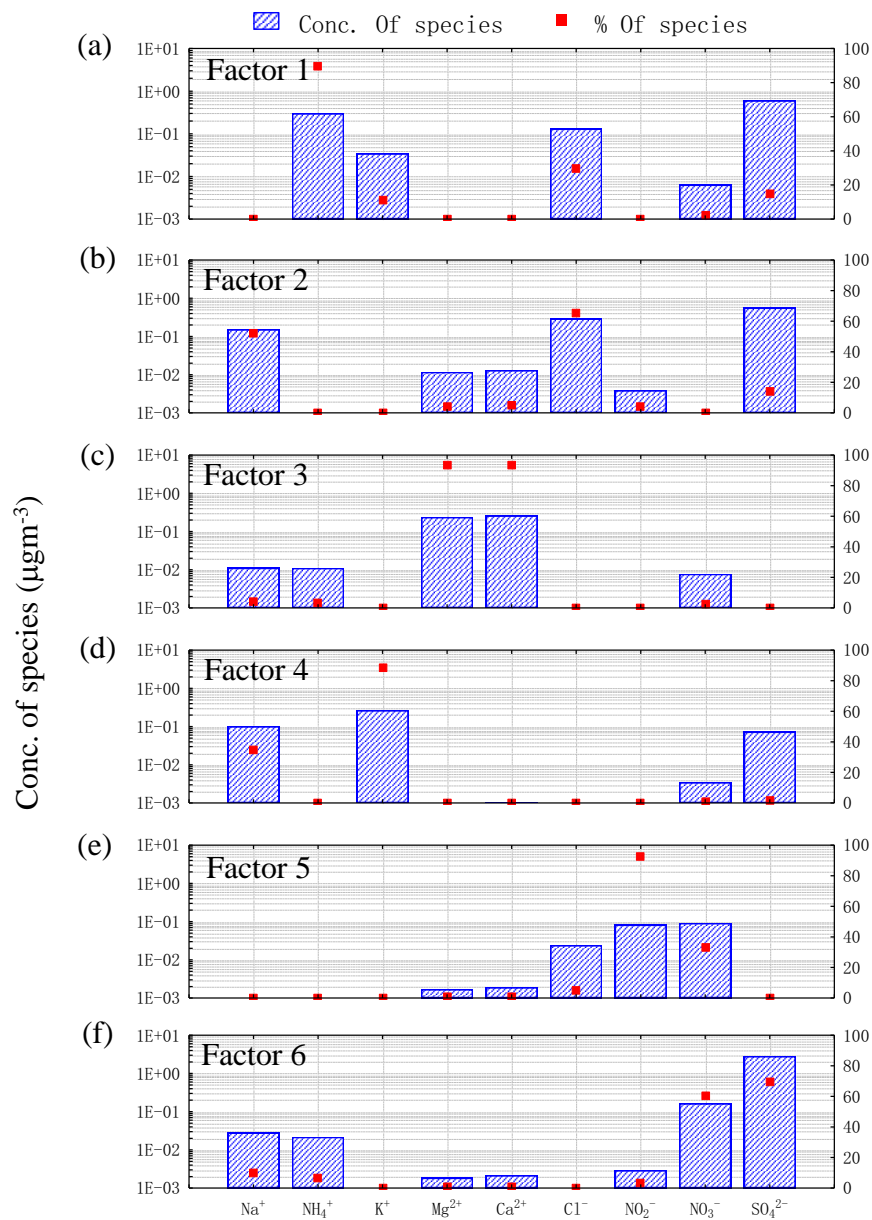


Fig. 7 2014 年 PMF 源解析結果

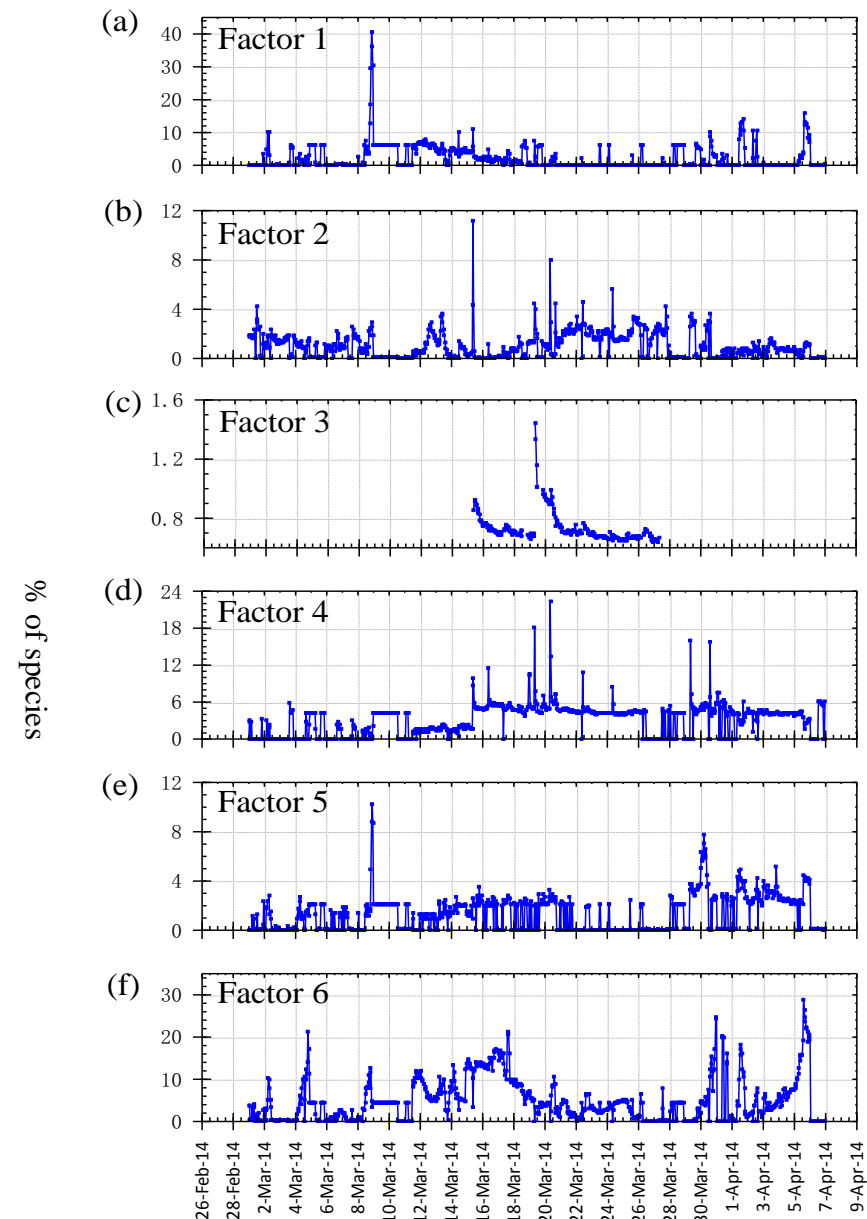


Fig. 8 2014 年各污染源對 $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度的貢獻

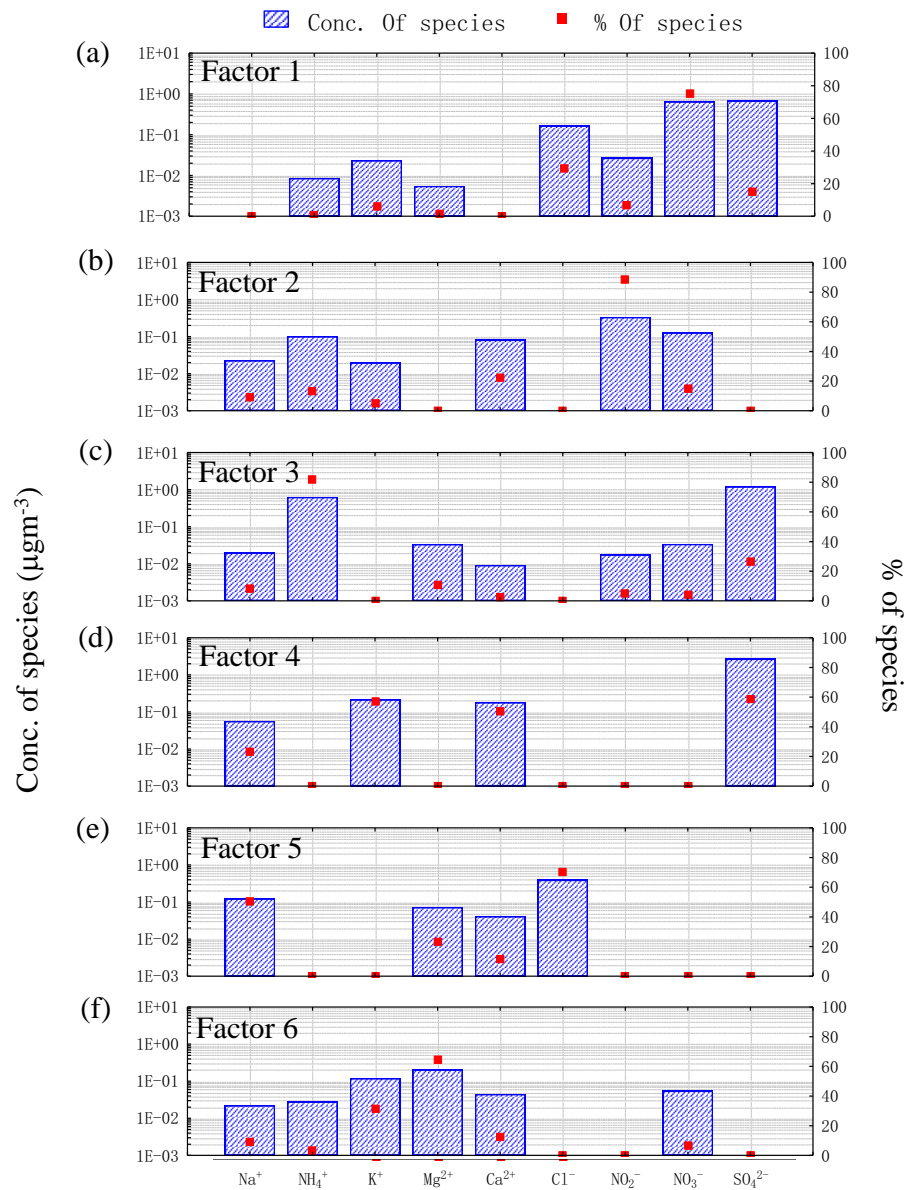


Fig. 9 2015 年 PMF 源解析結果

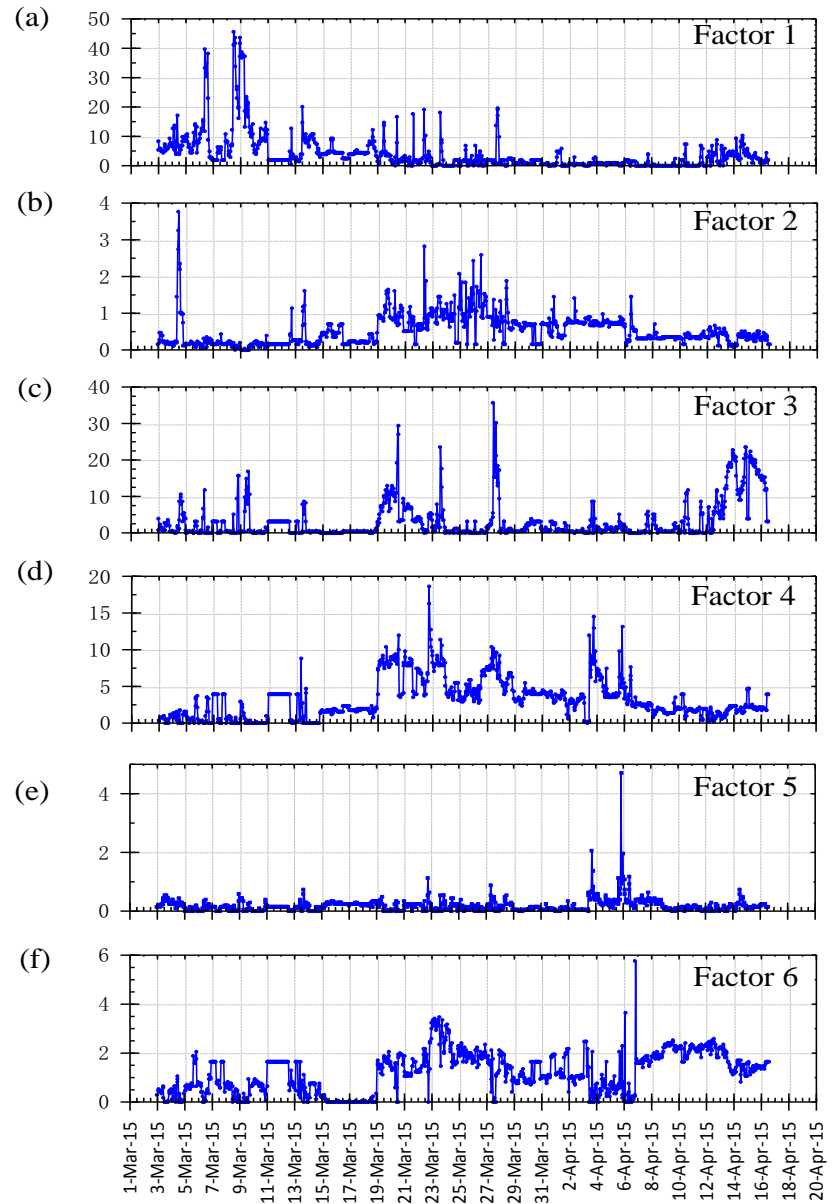


Fig. 10 2015 年各污染源對 $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度的貢獻

5.3. 高屏地區污染對於下風處的影響

藉由綜合 2013-2015 年的 $PM_{2.5}$ 逐時水溶性離子組成數據，探討在不同風向對於採樣地區的污染貢獻。採樣地區的西北方為高屏地區，因此在東北風及西北風時期採樣地區易受到高屏地區的污染排放，而採樣地區的東南方及西南方為海面及山區，因此兩者的風向傳輸污染較少。故在此節中，以西北風時期表示為非恆春地區之污染，為受高屏地區影響期間。

高屏地區人為污染主要由西北風傳輸至觀測地點，由氣象因子平均溫度及風速皆為所有事件中次高，分別為 $26.6^{\circ}C$ 及 4.9 ms^{-1} ，而在氣相及粒狀污染物方面為所有事件中濃度最高，其中 O_3 濃度高達 54.5 ppb，以及水溶性離子 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 及 NH_4^+ 的濃度亦較所有事件最高且。Fang et al. (2011) 指出高濃度 O_3 事件會造成衍生性離子濃度增加的情形，與光化學反應生成有關，高屏都會區排放的污染物可經由盛行的西北風傳輸至恆春地區，前驅氣體在高 O_3 環境下傳輸可進一步因光化反應生成更多的衍生性污染物。海風及西北風傳輸類型中受到混合著原生性與衍生性污染來源的貢獻，造成污染物濃度偏高的現象，導致恆春地區空氣品質的加劇惡化。由 Table 3 為不同風向 $PM_{2.5}$ 質量濃度平均與各離子佔 $PM_{2.5}$ 的百分比組成，表示 $PM_{2.5}$ 質量濃度在西北風發生時為濃度最高時期，平均為 $23.7\mu\text{gm}^{-3}$ ，相較於其他風向影響高出了 $10\mu\text{gm}^{-3}$ 。而各離子組成中，增加的物質為交通污染源所排放的氣膠組成 NH_4^+ 與 NO_3^- 。

另外，東北季風傳輸影響期間的溫度最低 ($24.6^{\circ}C$)，其平均風速為所有事件最高 (8.8 ms^{-1})，表示東北季風傳輸期間受大陸冷高壓影響導致溫度低且風速高的現象，在本計畫中受東北季風影響的時間佔觀測期間中最大部分，因此恆春地區主要受東北季風影響為主，而水溶性離子佔 $PM_{2.5}$ 比例為 66%，其中 SO_4^{2-} 及 NH_4^+ 比例較高分別為 36% 及 6%，顯示 SO_4^{2-} 及 NH_4^+ 為東北季風期間影響 $PM_{2.5}$ 逐時變異的主要物種組成，表示可能為遠距離的傳輸或高屏地區工廠排放所導致的濃度增加。

Table 2. 不同風向的氣象因子及污染物濃度比較

	東北	東南	西南	西北
TEMP	24.64	26.67	27.13	26.60
RH	71.98	78.02	75.25	75.86
WS	8.79	3.28	5.13	4.91
PM ₁₀	28.06	26.99	27.34	43.44
PM _{2.5}	12.78	12.83	13.84	23.66
O ₃	49.10	32.90	39.92	54.50
NO ₂	3.32	2.78	2.78	5.55
SO ₂	1.31	1.25	1.52	2.65
CO	0.16	0.15	0.12	0.21
Na ⁺	0.30	0.37	0.62	0.33
NH ₄ ⁺	0.72	0.87	0.92	1.99
K ⁺	0.36	0.40	0.47	0.48
Mg ²⁺	0.45	0.39	0.38	0.42
Ca ²⁺	0.49	0.52	0.54	0.45
Cl ⁻	0.64	0.66	0.89	0.72
NO ₂ ⁻	0.18	0.27	0.28	0.18
NO ₃ ⁻	0.62	0.87	0.73	2.64
SO ₄ ²⁻	4.63	4.44	4.44	7.31

Table 3. 不同風向的 PM_{2.5} 離子組成

	N	PM _{2.5} mass	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	Cl ⁻	NO ₂ ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
東北	1729	12.78	2%	6%	3%	3%	4%	5%	1%	5%	36%
東南	646	12.83	3%	7%	3%	3%	4%	5%	2%	7%	35%
西南	171	13.84	4%	7%	3%	3%	4%	6%	2%	5%	32%
西北	522	23.66	1%	8%	2%	2%	2%	3%	1%	11%	31%

5.4 生質燃燒下沖傳輸辨別

5.4.1 以氣相污染物變化及 PMF 辨別下沖傳輸時期

逐時數據中，在西北風影響期間，可測得高濃度的 PM₁₀ 與 PM_{2.5}，且 PM_{2.5} 中主要水溶性離子(NH₄⁺、NO₃⁻與 SO₄²⁻)的逐時濃度皆有顯著增加，K⁺濃度增加幅度相較其他天氣類型為高；但不同於微弱冬季季風下的海風傳輸，O₃ 濃度並未有增加的趨勢。此一天氣類型所發現的氣象因子與氣態污染物的逐時變化趨勢與先前文獻(Yen et al., 2013)指出恆春地區受到中南半島生質燃燒下沖傳輸影響時的現象一致。可辨別出的發生時段分別 2013 年 3/1-2, 3/10-11, 3/13-14, 3/20-21, 3/24-25, 3/27, 3/29-30, 4/2-3, 4/14-15，受到鋒面通過的影響，恆春地區的風場由持續數小時的強勁西北風轉為東北風(Fig. 3)。

由 PMF 污染來源辨別中僅在 2013 年的 factor 4 以 K⁺為特徵 且有明顯的生質燃燒貢獻。生質燃燒來源對於 PM_{2.5} 的貢獻為 21%，且與其他污染來源相比下解釋量為 94%，表示為生質燃燒主要貢獻來源，Park et al. (2004) and Allen et al. (2004)提出農廢燃燒可產生大量的 K⁺與 Cl⁻。在因子對於 PM_{2.5} 的逐時貢獻中，採樣期間 3-7 Mar, 8-14 Mar, 24-31 Mar 與 1-4 Apr 四段時期明顯受到生質燃燒影響(Fig. 6)。

5.4.2 下沖傳輸期間高空氣膠垂直掃描與逆軌跡污染物傳輸途徑確認

根據 PMF 所推測出可能為中南半島生質燃燒下沖傳輸事件，以化學成分結果配合 lidar 作為高空氣膠垂直掃描，確認是否在高空氣流中具有東南半島生質燃燒的傳輸，以氣流場垂直分布驗證，並以逆軌跡與火點確認中南亞地區的燃燒活動及污染物傳輸途徑。

Fig. 11 為四次生質燃燒污染物貢獻高值的氣膠垂直分布圖，由圖中可見僅生質燃燒貢獻第 III 時期顯示 24 Mar. 11 P.M.前地面風向多以西風與西北風為主，而 Fig. 11(c)在氣膠垂直分佈圖發現這段期間內 3-4 公里左右的高空 backscattering ratio 有兩氣團碰撞的跡象，但訊號強度不大，同時，Fig. 12 為第 III 時期垂直風場剖面圖，可以發現高空風場從 24 Mar. 中午開始出現向下氣流，直到 11 P.M.最接近地面，並開始在邊界層內量測到較高的空氣污染濃度，Fig. 13 氣膠化學組成中的鉀離子在向下氣流發生時可量測到濃度值增加，且其他化學物質也有增加的趨勢，表示兩氣團的交會作用所產生的下沖傳輸現象，使得生質燃燒污染物由高空傳輸至地表。25 Mar 6 A.M 後，由氣膠垂直分佈圖中觀測到此段時間的氣膠再次分為高空與低空的氣膠，另利用地面風向資料配合垂直風場剖面圖可得知高空風場與低空風場的風向不同，高空風場仍以西風為主，低空風場則為東北風，結果顯示高空氣流下沖現象後受到東北季風的影響後，會再次形成分層現象。

本研究將 24 Mar.to 25 Mar.分成下沖發生前(24 Mar.0 A.M. to 10 P.M.)、中(24 Mar.11 P.M. to 25 Mar. 5 A.M.)、後(25 Mar.6 A.M. to 11 P.M.)。由 Fig. 14(b-d) HYSPLIT 模擬結果顯示下沖發生時高空氣流(3,000 公尺)軌跡源自於中南半島，且根據衛星火點觀測到明顯火點訊號(Fig. 14 a)，顯示此時有生質燃燒活動發生，

故代表這段時間內高空氣團有挾帶生質燃燒污染物。另外，低空氣流(500 公尺)在三段期間內分別源自於不同的來源，下沖發生前源自於太平洋，屬於較乾淨的氣流，下沖發生中可能受到南邊氣團北移與大陸冷高壓南移的過程中，造成低空氣流軌跡在台灣附近滯留，下沖發生後氣流源自於黃海，顯示此時已受到大陸冷高壓的影響。

由氣膠垂直分佈高度圖、垂直風場剖面圖與氣流軌跡模式(fig.14)均可重複驗證第二次下沖現象的發生(3月28日20:00~3月29日4:00)。Fig. 11(c) 在28 Mar可見高空500-4000公尺為一個大範圍的污染物分布，但向下氣流強度不足，因此兩次的下沖事件發生的程度以第一次(24 Mar)較強且明確。由逐時離子組成從PM_{2.5}中化學組成變化來看，主要的水溶性離子如 Fig. 15 所示，3月28日20:00以前，只偵測到SO₄²⁻的濃度，NH₄⁺、K⁺與NO₃⁻的濃度在多數時段皆低於偵測極限，因此這段時間內的PM_{2.5}濃度偏低。直到3月28日20:00後開始發生變化，此時為第一次高濃度污染事件發生時段，當PM_{2.5}濃度升高時，NH₄⁺、NO₃⁻與SO₄²⁻濃度都有明顯上升，且K⁺濃度也有增加的情形，且在PM_{2.5}組成百分比中多了3-6%，此現象持續到3月29日4:00濃度才明顯下降，同時風向也從西北風轉變為東北風，顯示西北風傳輸挾帶高屏都會區的衍生性污染物外，也會帶有該地區的生質燃燒污染物。且生質源對於PM_{2.5}的貢獻則可高達10μgm⁻³左右(Fig. 6-d)。

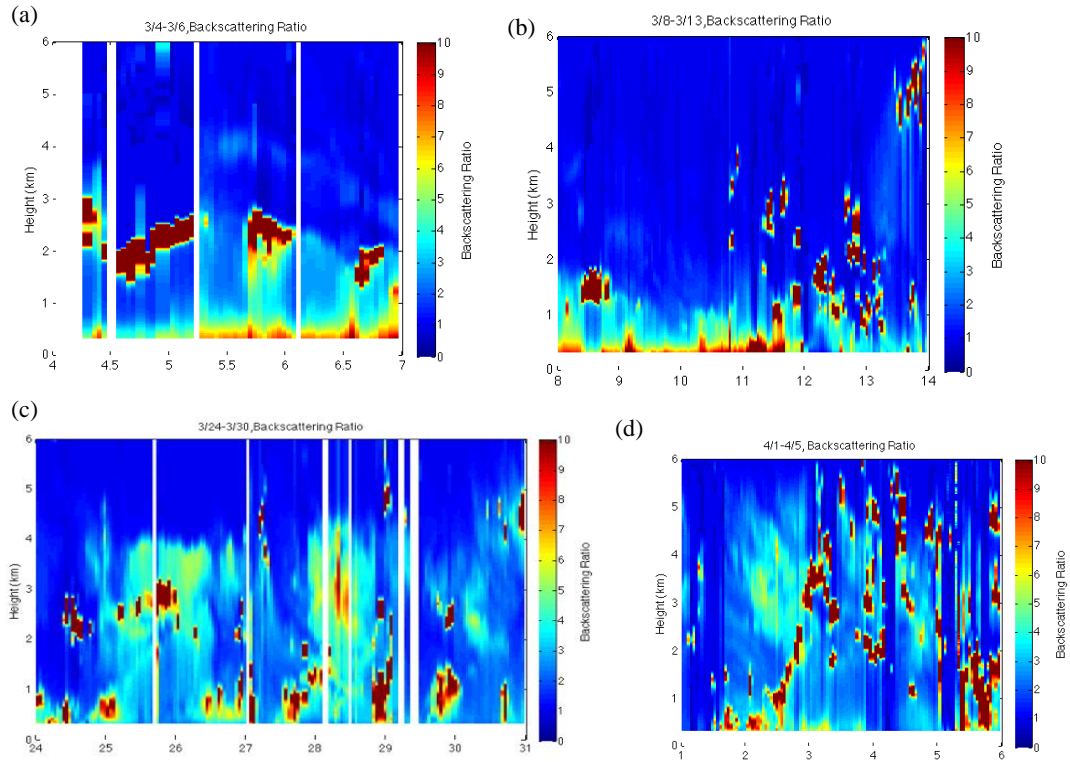


Fig. 11 生質燃燒污染物貢獻高值的氣膠垂直分布圖

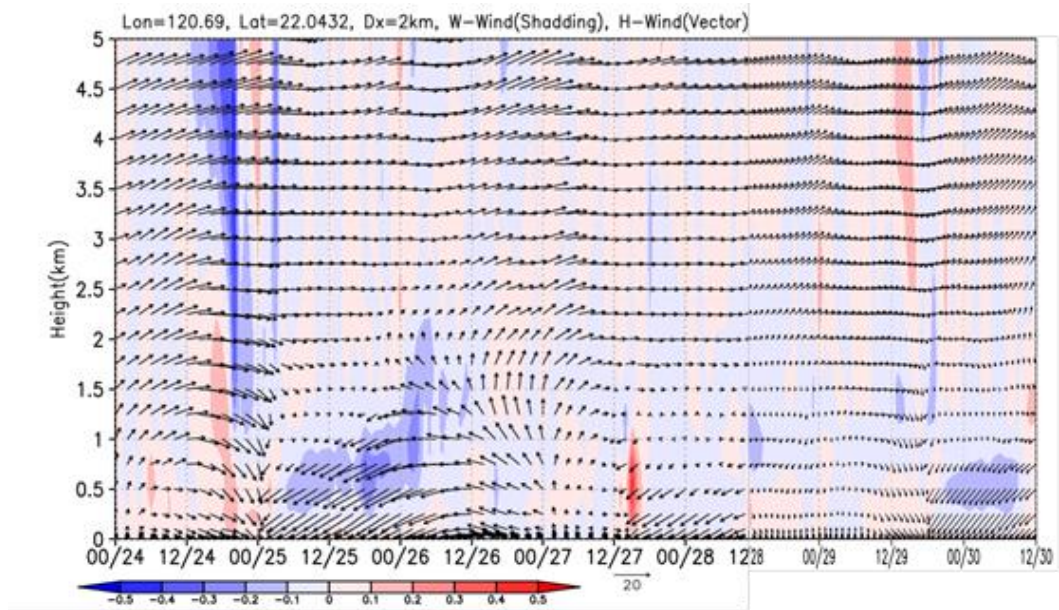


Fig. 12 生質燃燒第 III 時期垂直風場剖面圖

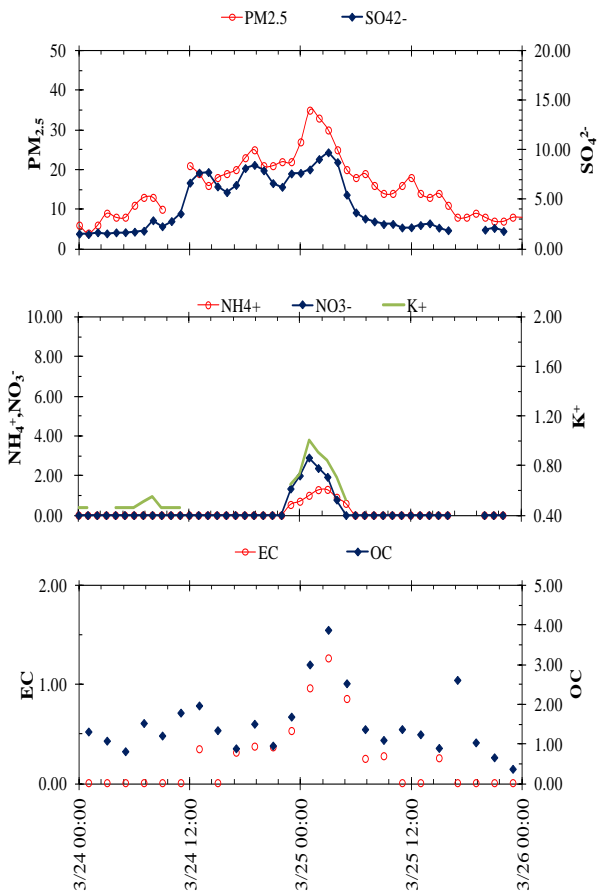


Fig. 13 第一次下沖事件 PM_{2.5} 中化學組成濃度變化(μg m⁻³)

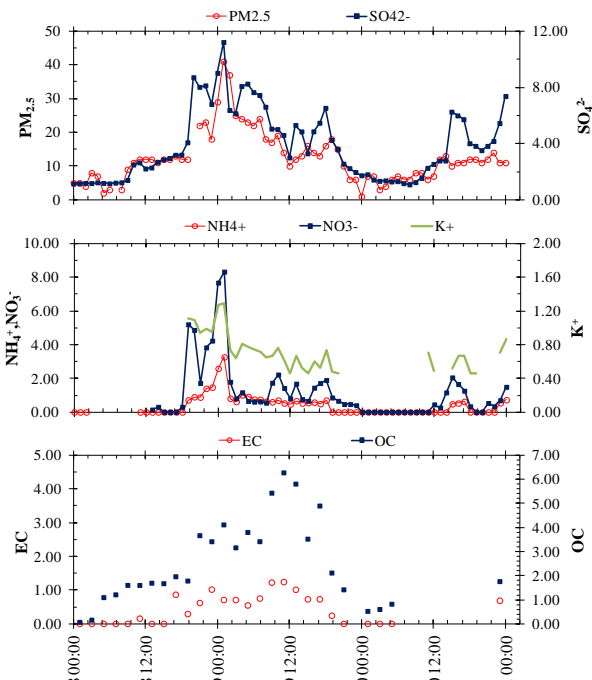
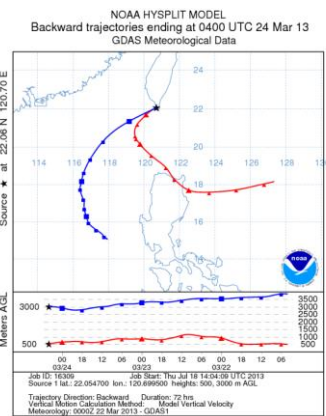


Fig. 15 第二次下沖事件 PM_{2.5} 中化學組成濃度變化(μg m⁻³)

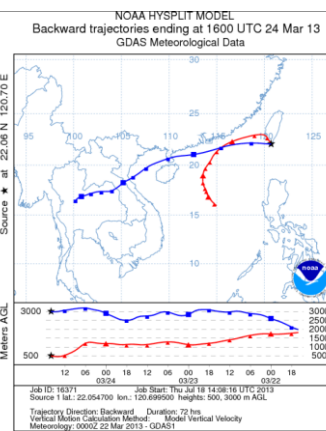
(a)



(b)



(c)



(d)

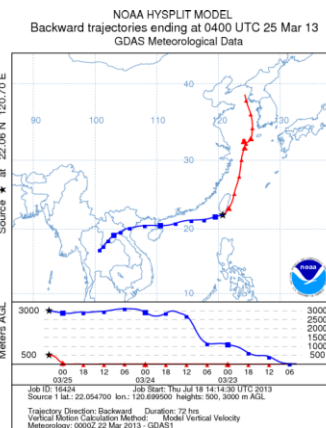


Fig. 14 火點及逆軌跡模擬結果

六、結論

本計劃在 2013-2015 年 3 月 4 月於恆春海生館進行大氣污染物逐時觀測，以逐時 PM_{2.5} 水溶性離子數據配合氣象因子、氣態污染物與粒狀污染物的同步觀測，本計畫以逐時風速風向變化區分四種傳輸類型事件作為探討，分別為東北季風攜帶大陸污染傳輸、高屏地區人為污染傳輸、陸風傳輸及西風傳輸事件，在觀測期間東北季風攜帶大陸污染傳輸事件發生次數較多，發生期間受到大陸冷高壓所影響使平均溫度較低且平均風速較大，污染物逐時濃度因風速較大、大氣混合度高而稀釋，以 SO₄²⁻ 及 NH₄⁺ 為東北季風期間影響 PM_{2.5} 逐時變異的主要物種組成，而受高屏地區人為污染傳輸為污染情況最為嚴重的類型，觀測期間以人為污染物 (PM_{2.5}、O₃、SO₄²⁻、NO₃⁻ 及 NH₄⁺) 濃度較高，東南風及西南風的傳輸因恆春地區無明顯污染源貢獻，污染物濃度比高屏地區人為污染傳輸較低，西南風傳輸主要來自於海洋氣流，其所攜帶各項污染濃度皆不高，唯有海洋離子 (Na⁺) 為最高且 Cl/Na⁺ 質量濃度比與文獻值接近。本計劃並以 PMF 源解析模式辨別恆春地區污染來源，並以氣膠光學分析以及垂直氣象場模擬驗證恆春地區於 2013 年受到中南半島生質燃燒排放的下沖傳輸。且下沖傳輸的過程中對於恆春地區 PM_{2.5} 的貢獻則可高達 10μgm⁻³ 左右。

七、致謝

承蒙科技部提供計畫經費補助(計畫編號：MOST 103-2111-M-040 -002)，使本研究得以順利進行，謹致由衷謝忱。

八、參考文獻

- Allen, G.A., Cardoso, A.A., Rocha, G.O. da, 2004. Influence of sugar cane burning on aerosol soluble ion composition in Southeastern Brazil. *Atmospheric Environment*
- Bae, M.S., Shin, J.S., Lee, K.Y., Lee, H.K., Kim, Y.J., 2014. Long-range transport of biomass burning emissions based on organic molecular markers and carbonaceous thermal distribution. *Science of the Total Environment* 466–467, 56–66
- Behera, S.N., Sharma, M., Aneja, V.P., Balasubramanian, R., 2013. Ammonia in the atmosphere: a review on emission sources, atmospheric chemistry and deposition on terrestrial bodies. *Environmental Science and Pollution Research* 20, 8092-8131.
- Calvert, J.G., Stockwell, W.R., 1984. The mechanism and rates of the gas-phase oxidations of sulfur dioxide and the nitrogen oxides in the atmosphere. In: Calvert, J.G. (ED.), *Acid Precipitation: SO₂, NO and NO₂ Oxidation Mechanisms Atmospheric Considerations*. Ann Arbor Science Publishers, Ann Arbor, MI, 1-62.
- Chang, S.C., Chou, C.C.K., Chan, C.C., Lee, C.T., 2010. Temporal characteristics from continuous measurements of PM_{2.5} and speciation at the Taipei Aerosol Supersite from 2002 to 2008. *Atmospheric Environment* 44, 1088-1096.
- Chang, S.Y., Fang, G.C., Chou, C.C.K., Chen, W.N., 2006a. Source identifications of

- PM₁₀ aerosols depending on hourly measurements of soluble components characterization among different events in Taipei Basin during spring season of 2004. *Chemosphere* 65, 792-801.
- Chang, S.Y., Fang, G.C., Chou, C.C.K., Chen, W.N., 2006b. Chemical compositions and radiative properties of dust and anthropogenic air masses study in Taipei Basin, Taiwan, during spring of 2004. *Atmospheric Environment* 40, 7796-7809.
- Chang, S.Y., Lee, C.T., Chou, C.C.K., Liu, S.C., Wen, T.X., 2007. The performance comparison of the In Situ IC instrument and the continuous field measurements of soluble aerosol compositions at the Taipei Aerosol Supersite, Taiwan. *Atmospheric Environment* 41, 1936-1949.
- Cheng, M.T., Horng, C.L., Su, Y.R., Lin, L.K., Lin, Y.C., Chou, C.C., 2009. Particulate matter characteristics during agricultural waste burning in Taichung City, Taiwan. *Journal of Hazardous Materials* 165, 187-192.
- Cheng, Y., Engling, G., He, K.B., Duan, F.K., Du, Z.Y., Ma, Y.L., Liang, L.L., Lu, Z.F., Liu, J.M., Zheng, M., Weber, R.J., 2014. The characteristics of Beijing aerosol during two distinct episodes: Impacts of biomass burning and fireworks. *Environmental Pollution* 185, 149-157
- Cheng, Z., Wang, S., Fu, X., Watson, J.G., Jiang, J., Fu, Q., Chen, C., Xu, B., Yu, J., Chow, J.C., Hao, J., 2011. Impact of biomass burning on haze pollution in the Yangtze River Delta, China: a case study in summer. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 13, 30687–30720, 2013
- Chow, J.C., Watson, J.G., Lowenthal, D.H., Egami, R.T., Solomon, P.A., Thuillier, R.H., Magliano, K., Ranzieri, A., 1998. Spatial and temporal variations of particulate precursor gases and photochemical reaction products during SJVAQS/AUSPEX ozone episodes. *Atmospheric Environment* 32, 2835-2844.
- Chu, S.H., 2004. PM_{2.5} episodes as observed in the speciation trends network. *Atmospheric Environment* 38, 5237-5246.
- Chuang, M.T., Chang, S.C., Lin, N.H., Wang, J.L., Sheu, G.R., Chang, Y.J., Lee, C.T., 2012a. Aerosol chemical properties and related pollutants measured in Dongsha Island in the northern South China Sea during 7-SEAS/Dongsha Experiment. *Atmospheric Environment*.
- Chuang, M.T., Chou, C.C.K., Sopajareepom, K., Lin, N.H., Wang, J.L., Sheu, G.R., Chang, Y.J., Lee, C.T., 2012b. Characterization of aerosol chemical properties from near-source biomass burning in the northern Indochina during 7-SEAS/Dongsha experiment. *Atmospheric Environment*.
- DeMore, W.B., Molina, M.J., Watson, R.T., Golden, D.M., Hampson, R.F., Kurylo, M.J., Howard, C.J., Ravishankara, A.R., 1983. Chemical kinetics and photochemical data for use in stratospheric modeling: Evaluation number 6, JPL Publ., 83-62.

- Fang, G.C., Chang, C.N., Wu, Y.S., Chen, M.H., Ho, T.T., Huang, S.H., 2004. A study of metallic elements at suburban and industrial regions in central Taiwan during 2002–2003. *Atmospheric Research* 70, 131-142.
- Fang, G.C., Chang, C.N., Wu, Y.S., Fu, P.P.C., Yang, C.J., Chen, C.D., Chang, S.C., 2002b. Ambient suspended particulate matters and related chemical species study in central Taiwan, Taichung during 1998–2001. *Atmospheric Environment* 36, 1921-1928.
- Freney, E.J., Sellegri, K., Canonaco, F., Boulon, J., Hervo, M., Weigel, R., Pichon, J.M., Colomb, A., Prévôt, A.S.H., Laj, P., 2011. Seasonal variations in aerosol particle composition at the puy-de-Dôme research station in France. *Atmospheric Chemistry and Physics* 11, 13047-13059.
- Funasaka, K., Sakai, M., Shinya, M., Miyazaki, T., Kamiura, T., Kaneco, S., Ohta, K., Fujita, T., 2003. Size distributions and characteristics of atmospheric inorganic particles by regional comparative study in Urban Osaka, Japan. *Atmospheric Environment* 37, 4957-4605.
- Galasyn, J. F., Tschudy, K. L., Huebert, B. J., 1987. Seasonal and diurnal variability of nitric-acid vapor and ionic aerosol species in the remote free troposphere at Mauna-Loa, Hawaii. *Journal of Geophysical Research* 92(D3), 3105-3113.
- Galindo, N., Nicolás, J. F., Yubero, E., Caballero, S., Pastor, C., Crespo, J., 2008. Factors affecting levels of aerosol sulfate and nitrate on the Western Mediterranean Coast. *Atmospheric Research* 88, 305–313.
- Grosjean, D., 1989. Organic acids in southern California air: ambient concentrations, mobile source emissions, in-situ formation and removal processes. *Environmental Science and Technology* 23, 1504–1506.
- Hatakeyama, S., Takami, A., Sakamaki, F., Mukai, H., Sugimoto, N., Shimizu, A., 2004. Aerial measurement of air pollutants and aerosols during 20-22 March 2001 over the East China Sea. *Journal of Geophysical Research* 109, D13304, doi:10.1029/2003JD004271.
- Henning, S., 2003. Seasonal variation of water-soluble ions of the aerosol at the high-alpine site Jungfraujoch (3580 m asl). *Journal of Geophysical Research* 108.
- Hsieh, L.Y., Chen, C.L., Wan, M.W., Tsai, C.H., Tsai, Y.I., 2008. Speciation and temporal characterization of dicarboxylic acids in PM_{2.5} during a PM episode and a period of non-episodic pollution. *Atmospheric Environment* 42, 6836–6850.
- Hsieh, L.-Y., Kuo, S.-C., Chen, C.-L., Tsai, Y.I., 2007. Origin of low-molecular-weight dicarboxylic acids and their concentration and size distribution variation in suburban aerosol. *Atmospheric Environment* 41, 6648-6661.
- Hueglin, C., 2000. Anteil des Strassenverkehrs an den PM₁₀- und PM_{2.5}-Immissionen.

EDMZ, Bern, 173.

- Jacobson, M.Z., 2001. Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols. *Nature* 409, 695-697.
- Jaffrezo, J.L., Aymoz, G., Delaval, C., Cozie, J., 2005. Seasonal variation of the water-soluble organic carbon mass fraction of aerosol in two valleys of the French Alps. *Atmospheric Chemistry and Physics* 5, 2809-2821.
- Kanakidou, M., et al., 2005. Organic aerosol and global climate modeling: a review. *Atmospheric Chemistry and Physics* 5, 1053-1123.
- Kocak, M., Kubilay, N., Mihalopoulos, N., 2004. Ionic composition of lower tropospheric aerosols at a Northeastern Mediterranean site: implications regarding sources and long-range transport. *Atmospheric Environment* 38, 2067-2077.
- Kocak, M., Kubilay, N., Mihalopoulos, N., 2004. Ionic composition of lower tropospheric aerosols at a Northeastern Mediterranean site: implications regarding sources and long-range transport. *Atmospheric Environment* 38, 2067-2077.
- Krivacsy, Z., et al., 2001a. Study on the chemical character of water soluble organic compounds in the fine atmospheric aerosol at the Jungfraujoch. *Journal of Atmospheric Chemistry* 39, 235-259.
- Kumar, N.K., Lurmann, F.W., Pandis, S.N., 1998. Analysis of Atmospheric Chemistry during 1995 Integrated Monitoring Study. Report No. STI-997214-1791-DFR. Prepared for California Air Resources Board, Sacramento, CA, by Sonoma Technology Inc., Santa Rosa, CA.
- Kurtenbach, R., Becker, K.H., Gomes, J.A.G., Kleffmann, J., Lorzer, J.C., Spittler, M., Wiesen, P., Ackermann, R., Gyer, A., Platt, U., 2001. Investigation of emissions and heterogeneous formation of HNO₂ in a road traffic tunnel. *Atmospheric Environment* 35, 3385-3394.
- Lee, C.T., Chuang, M.T., Lin, N.H., Wang, J.L., Sheu, G.R., Chang, S.C., Wang, S.H., Huang, H., Chen, H.W., Liu, Y.L., Weng, G.H., Lai, H.Y., Hsu, S.P., 2011. The enhancement of PM_{2.5} mass and water-soluble ions of biomass smoke transported from Southeast Asia over the Mountain Lulin site in Taiwan. *Atmospheric Environment* 45, 5784-5794.
- Lin, C.C., Huang, K.L., Tsai, J.H., Lee, W.J., Chen, S.J., Lin, S.K., 2012. Characteristics of water-soluble ions and carbon in fine and coarse particles collected near an open burning site. *Atmospheric Environment* 51, 39-45.
- Lin, C.Y., Hsu, H.M., Lee, Y.H., Kuo, C.H., Sheng, Y.F., Chu, D.A., 2009. A new transport mechanism of biomass burning from Indochina as identified by modeling studies. *Atmospheric Chemistry and Physics* 9, 7901-7911.
- Lin, C.Y., Liu, S.C., Choua, C.K., Huang, S.J., Liu, C.M., Kuo, C.H., Young, C.Y., 2005. Long-range transport of aerosols and their impact on the air quality of Taiwan. *Atmospheric Environment* 39, 6066-6076.

- Liu, C.M., Young, C.Y., Lee, Y.C., 2006. Influence of Asian dust storms on air quality in Taiwan. *Science of the Total Environment* 368, 884–897
- Morgan, W.T., Allan, J.D., Bower, K.N., Highwood, E.J., Liu, D., McMeeking, G.R., Northway, M.J., Williams, P.I., Krejci, R., Coe, H., (2010) Airborne measurements of the spatial distribution of aerosol chemical composition across Europe and evolution of the organic fraction. *Atmospheric Chemistry and Physics* 10, 4065-4083.
- Paatero, P., Tapper, U., 1994. Positive matrix factorization: a non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values. *Environmetrics* 5, 111-126.
- Park, S.S., Hong, S.B., Jung, Y.G., Lee, J.H., 2004. Measurements of PM₁₀ aerosol and gas-phase nitrous acid during fall season in a semi-urban atmosphere. *Atmospheric Environment* 38, 293-304.
- Park, S.S., Jung, S.A., Gong, B.J., Cho, S.Y., Lee, S.J., 2013. Characteristics of PM_{2.5} haze episodes revealed by highly time-resolved measurements at an air pollution monitoring supersite in Korea. *Aerosol and Air Quality Research* 13, 957-976.
- Pathak, R.K., Wang, T., Ho, K.F., Lee, S.C., 2011. Characteristics of summertime PM_{2.5} organic and elemental carbon in four major Chinese cities: Implications of high acidity for water-soluble organic carbon (WSOC). *Atmospheric Environment* 45, 318-325.
- Pio, C.A., Castro, L.M., Cerqueirz, M.A., Santos, I.M., Belchior, F., Salgueiro, M.L., 1996. Source assessment of particulate air pollutants measured at the Southwest European coast. *Atmospheric Environment* 30, 3309-3320.
- Preunkert, S., Wagenbach, D., Legrand, M., 2002. Improvement and characterization of an automatic aerosol sampler for remote (glacier) sites. *Atmospheric Environment* 36, 1221-1232.
- Putaud, J. P., Dingenen, R.V., Raes, F., 2002. Submicron aerosol mass balance at urban and semi-rural sites in the Milan area (Italy). *Journal of Geophysical Research* 107(D22), 8198.
- Rondon, A., Sanhueza, E., 1989. High HNO₂ atmospheric concentrations during vegetation burning in the tropical savannah. *Tellus* 41B, 474-477.
- Rubio, M.A., Lissi, E., Villena, G., 2002. Nitrite in rain and dew in Santiago city, Chile. Its possible impact on the early morning start of the photochemical smog. *Atmospheric Environment* 36, 293-297.
- Ryu, S.Y., Kwon, B.G., Kim, Y.J., Kim, H.H., Chun, K.J., 2007. Characteristics of biomass burning aerosol and its impact on regional air quality in the summer of 2003 at Gwangju, Korea. *Atmospheric Research* 84, 362-373.
- Seinfeld, J.H., Pandis, S.N., 2006. *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*, second ed. John Wiley and Sons, New York.

- Serpil Savci, An Agricultural Pollutant: Chemical Fertilizer , International Journal of Environmental Science and Development, Vol. 3, No. 1, February 2012
- Shrestha, A. B., Wake, C. P., Dibb, J. E., 1997. Chemical composition of aerosol and snow in the high Himalaya during the summer monsoon season. *Atmospheric Environment* 31, 2815-2826.
- Smith, S., Stribley, F.T., Milligan, P., Barratt, B., 2001. Factors influencing measurements of PM₁₀ during 1995–1997 in London. *Atmospheric Environment* 35, 4651-4662.
- Stein, A.F., Lamb, D., 2003. Empirical evidence for the low- and high-NO_x photochemical regimes of sulfate and nitrate formation. *Atmospheric Environment* 37, 3615-3625.
- Streets, D.G., Yarber, K.F., Woo, J.H., Carmichael, G.R., 2003. Biomass burning in Asia: Annual and seasonal estimates and atmospheric emissions. *Global Biogeochemical Cycles* 17, 1099.
- Topping, D., Coe, H., McFiggans, G., Burgess, R., Allan, J., Alfarra, M.R., Bower, K., Choularton, T.W., Decesari, S., Facchini, M.C., 2004. Aerosol chemical characteristics from sampling conducted on the Island of Jeju, Korea during ACE Asia. *Atmospheric Environment* 38, 2111-2123.
- Tsai, Y.I., Sopajaree, K., Chotruksa, A., Wu, H.C., Kuo, S.C., 2012. Source indicators of biomass burning associated with inorganic salts and carboxylates in dry season ambient aerosol in Chiang Mai Basin, Thailand. *Atmospheric Environment*.
- Tsuang, B.J., Chen, C.L., Lin, C.H., Cheng, M.T., Tsai, Y.I., Chio, C.P., Pan, R.C., Kuo, P.H., 2003. Quantification on the source/receptor relationship of primary pollutants and secondary aerosols by a Gaussian plume trajectory model: Part II. Case study. *Atmospheric Environment* 37, 3993-4006.
- Tsuang, B.J., Chen, C.L., Lin, C.H., Cheng, M.T., Tsai, Y.I., Chio, C.P., Pan, R.C., Kuo, P.H., 2003. Quantification on the source/receptor relationship of primary pollutants and secondary aerosols by a Gaussian plume trajectory model: Part II. Case study. *Atmospheric Environment* 37, 3993-4006.
- U.S. Environmental Protection Agency, 2008. EPA Positive Matrix Factorization (PMF) 3.0 ,Fundamentals & User Guide. U.S. Environmental Protection Agency Office of Research and Development Washington, DC 20460. EPA 600/R-08/108.
- U.S. Environmental Protection Agency, 2009. EPA Positive Matrix Factorization (PMF) 3.0 ,Fundamentals & User Guide. U.S. Environmental Protection Agency Office of Research and Development Washington, DC 20460. EPA 600/R-08/108.
- Wang, S.H., Tsay, S.C., Lin, N.H., Chang, S.C., Li, C., Welton, E.J., Holben, B.N.,

- Hsu, N.C., Lau, W.K.M., Lolli, S., Kuo, C.C., Chia, H.P., Chiu, C.Y., Lin, C.C., Bell, S.W., Ji, Q., Hansell, R.A., Sheu, G.R., Chi, K.H., Peng, C.M., 2012. Origin, transport, and vertical distribution of atmospheric pollutants over the northern South China Sea during the 7-SEAS/Dongsha Experiment. *Atmospheric Environment*.
- Wang, W.C., Chen, K.S., Chen, S.J., Lin, C.C., Tsai, J.H., Lai, C.H., Wang, S.K., 2008. Characteristics and receptor modeling of atmospheric PM_{2.5} at urban and rural sites in Pingtung, Taiwan. *Aerosol and Air Quality Research* 8, 112-129.
- Wang, Y., Zhuang, G., Tang, A., Yuan, H., Sun, Y., Chen, S., Zheng, A., 2005. The ions chemistry and the source of PM_{2.5} aerosol in Beijing. *Atmospheric Environment* 39, 3771-3784.
- Watson, J.G., Chow, J.C., 2002. A wintertime PM_{2.5} episode at the Fresno, CA, supersite. *Atmospheric Environment* 36, 465-475.
- Yeatman, S. G., Spokes, L. J., Dennis, P. F., Jickells, T. D., 2001a. Comparisons of aerosol nitrogen isotopic composition at two polluted coastal sites. *Atmospheric Environment* 35, 1307-1320.
- Yen, M.C., Peng, C.M., Chen, T.C., Chen, C.S., Lin, N.H., Tzeng, R. Y., Lee, Y.A., Lin, C.C., 2012. Climate and weather characteristics in association with the active fires in northern Southeast Asian and spring air pollution in Taiwan during 2012 7-SEAS/Dongsha Experiment. *Atmospheric Environment* 78, 35-50.
- Yen, M.C., Peng, C.M., Chen, T.C., Chen, C.S., Lin, N.H., Tzeng, R. Y., Lee, Y.A., Lin, C.C., 2012. Climate and weather characteristics in association with the active fires in northern Southeast Asia and spring air pollution in Taiwan during 2010 7-SEAS/Dongsha Experiment. *Atmospheric Environment*.
- Yu, L., Wang, G., Zhang, R.Z., Song, Y., Wu, B., Li, X., An, K., Chu, J., 2013. Characterization and Source Apportionment of PM 2.5 in an Urban Environment in Beijing. *Aerosol and Air Quality Research*, 13: 574–583, 2013
- Zhang, Q., et al., 2007. Ubiquity and dominance of oxygenated species in organic aerosols in anthropogenically-influenced Northern Hemisphere midlatitudes. *Geophysical Research Letters* 34. doi:10.1029/2007GL029979.
- Zhang, Z., Engling, G., Lin, C.Y., Chou, C.C.K., Lung, S.C.C., Chang, S.Y., Fan, S., Chan, C.Y., Zhang, Y.H., 2010. Chemical speciation, transport and contribution of biomass burning smoke to ambient aerosol in Guangzhou, a mega city of China. *Atmospheric Environment* 44, 3187-3195.
- 張順欽、李崇德；2005。台北都會區二次氣膠增量推估之研究。2005 年第十二屆國際氣膠科技研討會，1-10。
- 張順欽、黃薇如、李崇德；2005。光化學反應生成二次氣膠個案研究。2005 年第十二屆國際氣膠科技研討會，626-635。

黃香儒，2005。秋冬季節之大氣氣膠無機鹽類及二元酸之組成及粒徑變異研究。
嘉南藥理科技大學環境工程與科學系碩士論文。
環保署，2005。全球資訊網，<http://www.epa.gov.tw/>

科技部補助專題研究計畫出席國際學術會議心得報告

日期：104年10月23日

計畫編號	MOST 103-2111-M-040 -002		
計畫名稱	中南半島生質燃燒與東北季風傳輸對於恆春地區空氣品質與大氣輻射的衝擊		
出國人員姓名	張士昱 蔡羽貞	服務機構及職稱	中山醫學大學公共衛生學系專任教師 中山醫學大學公共衛生學系學士
會議時間	104年6月24日至104年6月27日	會議地點	日本 金澤
會議名稱	(中文)第九屆亞洲氣膠研討會 (英文)9 th Asian Aerosol Conference(9 th AAC)		
發表題目	(英文) 1. Development and Evaluation of The Novel Dry Denuder with Multiple Parallel-Plates to Remove Acid and Basic Gases from The Sampling Airflow (poster) 2. Assessing Health Risks of Air Pollutants on The Total Respiratory System Depending on A Direct and Convenient Indicator of Atmospheric Visibility (poster)		

一、參加會議經過

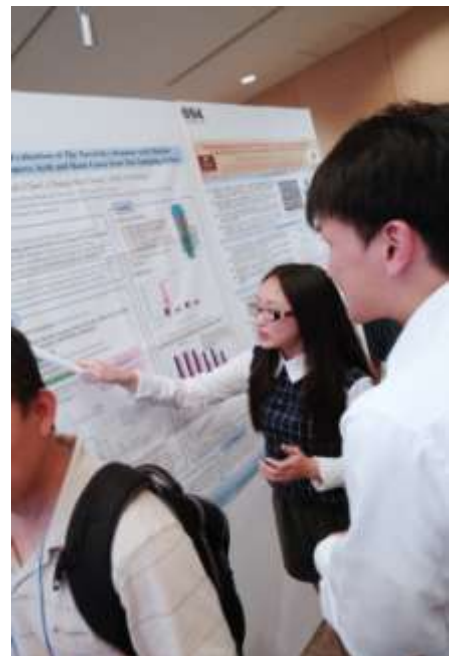
本次與計畫主持人張士昱教授共同參與 2105AAC(亞洲氣膠研討會)，由於住的地方離研討會場地，所需步行時間約 10 分鐘，因此每日皆走路至研討會地點，並於研討會結束後，到附近地區走走晃晃，體會當地文化與風情。

二、與會心得

此次第九屆亞洲氣膠研討會(9th Asian Aerosol Conference)，報告者為蔡羽貞，以海報(poster)的形式展現研究成果，題目為「」。先前我已經有與學長姐參與過國內與國外的研討會，但心情還是很緊張，因為這次參與國外研討會是第一次以第一作者的身分前往。雖然這次是以貼海報的方式參加，但在製作海報的過程中也學到很多經驗，例如：如何將海報內容濃縮至一張海報裡，以及要如何呈現，才會讓看這張海報的人一目瞭然，清楚知道我想要表達的研究內容。

在海報的時間，主辦單位會準備果汁或是水果酒給與會的專家、學者飲用，所以海報時間又像是另類的下午茶，大家手上都有一杯飲料，然後四處走走看看海報，看到有興趣的海報便停下腳步與海報作者交流、討論海報內容。整體而言，氣氛是很輕鬆與自在的，與口頭報告相較之下，因為口頭是一個人站在台上，下面有一堆的觀眾在聽報告而且有時間限制，所以海報是滿適合初次參與以英文為共同語言的研討會，而且在海報時間有更多時間可以與作者討論。

最後，真的很感謝指導老師及科技部的支持與協助，也謝謝陪伴我參與這次研討會的實驗室學姐，在我回答欠佳的時候及時幫我補充內容。特別感謝在研討會中給我們問題、建議與聆聽我們報告的學者夥伴們，也感謝 AAC 的主辦單位以及所有在場的工作人員，因為主辦單位的認真籌備與辛苦的工作人員的協助，使研討會能夠順利進行，也讓與會的我們有滿滿的收穫以及充滿著對研究的熱忱，期待下一次的報告。



三、發表論文全文或摘要

詳見附錄一。

四、建議

無。

五、攜回資料名稱及內容

此會議的摘要以網路資源呈現，並帶回紙本的會議目次。

六、其他

摘要接受函



Submission #:INS0018

Title: Development and Evaluation of The Novel Dry Denuder with Multiple Parallel-Plates to Remove Acid and Basic Gases from The Sampling Airflow

Dear Prof. Shih-Yu Chang

Thank you for submitting abstract to AAC2015 which will be held in Kanazawa, Japan from June 24 to 27, 2015.

We are pleased to inform you that your paper has been accepted as,

poster presentation

Your presentation will be arranged in the session P2 (June 25, evening).

Please check the updated version of program on the conference web site:

<http://aac2015.w3.kanazawa-u.ac.jp/>

All of the presenters should register via AAC2015 Homepage by March 31, 2015 in order to obtain the benefit of early-bird registration.

Visa information:

If you need visa for your travel, please contact the conference secretary:

aac2015@ml.kanazawa-u.ac.jp

We are looking forward to seeing you in Kanazawa!

Sincerely yours,

Yoshio Otani, Organizer of AAC2015

A handwritten signature in black ink that reads 'Yoshio Otani'.



Submission #:HRA0006

Title: Assessing Health Risks of Air Pollutants on The Total Respiratory System
Depending on A Direct and Convenient Indicator of Atmospheric Visibility

Dear Prof. Shih-Yu Chang

Thank you for submitting abstract to AAC2015 which will be held in Kanazawa, Japan
from June 24 to 27, 2015.

We are pleased to inform you that your paper has been accepted as,

poster presentation

Your presentation will be arranged in the session P2 (June 25, evening).

Please check the updated version of program on the conference web site:

<http://aac2015.w3.kanazawa-u.ac.jp/>

All of the presenters should register via AAC2015 Homepage by March 31, 2015 in
order to obtain the benefit of early-bird registration.

Visa information:

If you need visa for your travel, please contact the conference secretary:

aac2015@ml.kanazawa-u.ac.jp

We are looking forward to seeing you in Kanazawa!

Sincerely yours,

Yoshio Otani, Organizer of AAC2015

Yoshio Otani

Development and Evaluation of The Novel Dry Denuder with Multiple Parallel-Plates to Remove Acid and Basic Gases from The Sampling Airflow

Yu-Jen Tsai¹, Yu-Chieh Chen¹, Chung-Hao Cheng¹, Shih-Yu Chang^{1,2*}

¹School of Public Health, Chung Shan Medical University, Taichung 402, Taiwan

²Department of Family and Community Medicine, Chung Shan Medical University Hospital, Taichung 402, Taiwan

*Corresponding author: sychang@csmu.edu.tw

Abstract

The particles, collected by real-time and filter-based aerosol sampling, **interact with the in-coming gases and thus are changed the composition during the sampling period.** Despite several denuders have been commonly used to avoid this sampling artifact through the absorption of the acidic/basic gases, there are limits of absorption capacity, sampling flow rate, and collection efficiency especially for the hazardous air pollution in most Asian cities. In this work, the novel multiple parallel-plates dry denuder (**MPPDD**) was developed by the computational fluid dynamics (CFD) technology for connecting in series after the particle-size selector.

Methods

• **MPPDD Airflow Simulation** : Solidwork 2012

• **Comparative experiments: honeycomb denuder (HD) v.s. the multiple parallel plate dry denuder (MPPDD) v.s. Impinger**

1. Flaking test : [Na⁺]

- Acid gas adsorption : Na₂CO₃ solution
- Basic gas adsorption : Citric acid solution

2. Ammonia collection efficiency(E):

- MPPDD : Impinger 2+3
- HD : Impinger 4+5
- Impinger : Impinger 1

$$E = \frac{\text{Impinger 2+3(or 4+5)}}{\text{Impinger 1}}$$

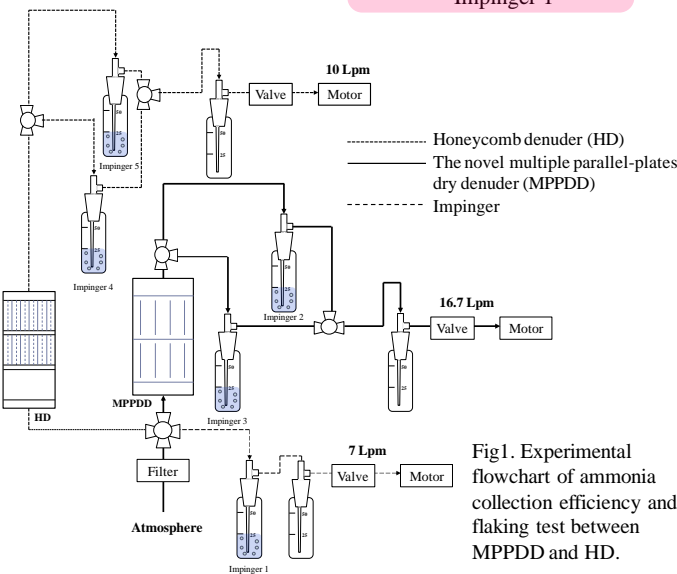


Fig1. Experimental flowchart of ammonia collection efficiency and flaking test between MPPDD and HD.

Conclusions

- Filed simulation test demonstrated that there are no turbulence in the internal MPPDD.
- The flaking test showed that MPPDD's coated layer flak not obvious.
- At high sampling volume and ammonia rich environment (13.36 μg/m³ per hour), the collection efficiency of MPPDD above 90% which maintain two days.

Results

• Airflow Simulation

1. Flow rate set at 16.7 L/ min.
2. The MPPDD can connect with VSCC.
3. Results showed no turbulence in the MPPDD.

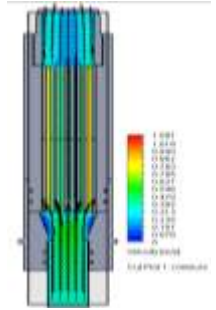


Fig2. MPPDD internal gas field simulation.

• Flaking test

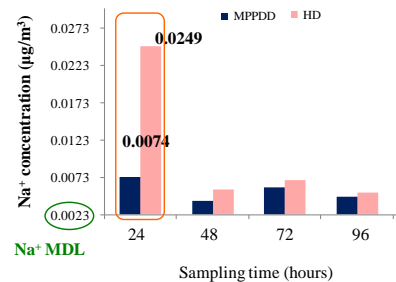


Fig3. Flaking test between MPPDD and HD.

• Ammonia collection efficiency and sampling volume

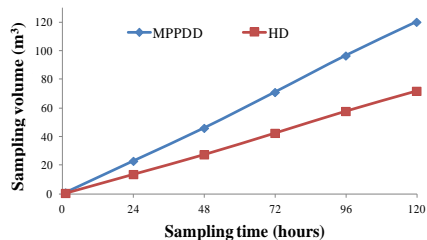
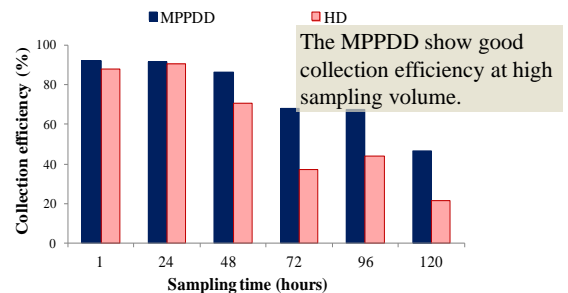


Fig4. comparison of collection efficiency and sampling volume using MPPDD system and HD.

Acknowledgements

The authors also gratefully acknowledge the Ministry of Science and Technology of Taiwan for financial support under project No. MOST 103-2111-M-040 -002

Assessing the health risks of air pollutants on the respiratory system diseases depending on a direct and convenient indicator of atmospheric visibility



Shih-Yu Chang^{1,2*}, Szu-Chieh Chen^{1,2}, Chia-Hsin Yang¹, Yu-Chieh Chen¹, Chung-Hao Cheng, Wen-Chang Tseng, Yu-Jen Tsai, Yu-Pei Wu, Guo-Chen Fang

¹School of Public Health, Chung Shan Medical University, Taiwan

²Department of Family and Community Medicine, Chung Shan Medical University Hospital, Taiwan

*Corresponding author: sychang@csmu.edu.tw

Abstract

Recently, air pollution has played an important role in causing a hazard to human health. The air quality was usually assessed with the levels of multi-pollutants from measuring instruments. However, there were limits of the spatial representation and inaccessibility of measurements, which increased the difficulty of assessing the health effects of air quality for the people in daily life. The atmospheric visibility was the aggregative indicator of air pollution and meteorological condition. Although the visibility might be regarded as a direct indicator of determining the air quality, rare studies reported the relationship between the atmospheric visibility and health risk. This work tried to investigate a direct and convenient indicator to evaluate the health risk of air pollutants according to the association between the atmospheric visibility and the respiratory system diseases (ICD-9: 460-519).

Study Area

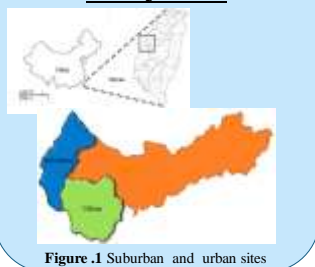


Figure 1 Suburban and urban sites

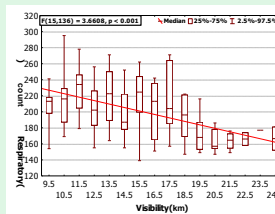
Statistical Results

Table 1 Overall summary statistics of daily clinic visits for respiratory system disease, air pollutants and meteorological data during the study period (2010).

	N	Mean	SD	Q1	Q2	Q3	P-value
Suburban	365	212.6	75.5	178.0	217.0	260.0	***
Respiratory	365	3.9	2.5	2.0	4.0	6.0	***
ARI	365	169.3	60.4	137.0	169.0	208.0	***
COPD	365	5.6	3.3	3.0	6.0	8.0	***
Visibility	365	13.4	4.3	10.3	12.7	16.0	***
PM ₁₀	365	53.1	41.6	28.0	44.8	67.4	
PM _{2.5}	365	33.3	17.9	19.6	30.1	44.1	
SO ₂	365	9.5	3.7	6.8	8.9	11.2	
NO ₂	365	30.2	12.2	21.5	27.4	35.2	***
RH	365	0.8	0.1	0.7	0.8	0.8	***
WS	365	3.5	1.7	2.3	3.1	4.3	***
TEMP	365	23.3	5.2	19.5	24.0	28.2	
Urban	365	837.8	297.5	726.0	870.0	999.0	
Respiratory	365	16.8	6.7	12.0	16.0	21.0	
ARI	365	489.4	245.4	586.0	716.0	823.0	
COPD	365	19.4	9.9	12.0	21.0	26.0	
Visibility	365	9.5	1.9	8.3	9.8	10.8	
PM ₁₀	365	58.6	37.3	36.3	51.1	74.7	
PM _{2.5}	365	36.1	17.6	22.3	32.9	47.4	
SO ₂	365	8.8	2.9	6.7	8.4	10.3	
NO ₂	365	39.8	14.4	28.5	38.7	48.0	
RH	365	0.7	0.1	0.7	0.7	0.8	
WS	365	2.7	1.3	1.8	2.2	3.1	
TEMP	365	24.0	5.1	20.0	25.2	28.4	

Respiratory = Influenza + ARI + COPD Unit : count
 PM₁₀ + PM_{2.5} + SO₂ + NO₂ Unit : µg/m³
 WS Unit : m/s · TEMP Unit : °C · Visibility Unit : km
 *** are significant at p<0.0001

(a) Suburban



(b) Urban

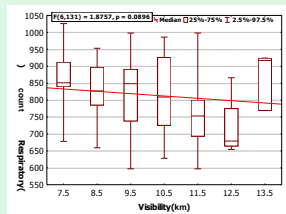
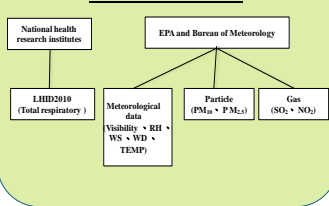


Figure 2 Relationship of visibility with clinic visits for respiratory system disease between the (a) suburban and (b) urban areas in Taichung.

Data Source



Relative Risk

Table 3 Compared relative risk with EPA PM_{2.5} standard value, Q1, Q2, and Q3.

PM _{2.5}	Suburban				Urban			
	RR	95%CI	P-value		RR	95%CI	P-value	
35 ≤	1.053	1.036-1.071	***		1.101	1.092-1.111	***	
<35	1				1			
44.1 ≤	1.119	1.090-1.150	***		1.146	1.133-1.160	***	
30.1-44.13	1.070	1.043-1.098	***		1.103	1.091-1.115	***	
19.6-30.1	1.032	1.007-1.057	0.011		1.049	1.038-1.061	***	
<19.6	1				1			

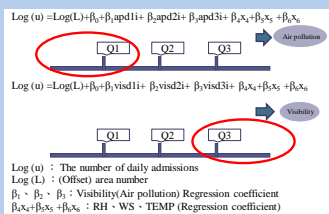
*** are significant at p<0.0001
 Q1 : 19.6 · 22.3 Q2 : 30.1 · 32.9 Q3 : 44.1 · 47.4

Table 4 Compared relative risk with 10 km, Q1, Q2, and Q3.

Visibility	Suburban			Urban			
	RR	95%CI	P-value	RR	95%CI	P-value	
<10	1.088	1.069-1.108	***	1.042	1.033-1.050	***	
10 ≤	1			1			
<10.3	1.147	1.121-1.175	***	<8.3	1.125	1.113-1.138	***
10.3-12.7	1.072	1.049-1.096	***	8.3-9.8	1.092	1.081-1.104	***
12.7-16	1.016	0.994-1.039	0.16	9.8-10.8	1.057	1.046-1.068	***
16 ≤	1			10.8 ≤	1		

*** are significant at p<0.0001
 Q1 : 10.3 · 8.3 Q2 : 12.7 · 9.8 Q3 : 16 · 10.8

Poisson Regression



Multiple Linear Regression

Table 2 Relation between visibility and air pollutants

Suburban	N=348	B	R ²	R ² Change
Intercept		17.704		
adjRHPM _{2.5}		-0.015	0.456	0.456
NO ₂		-0.111	0.482	0.026
SO ₂		0.239	0.503	0.021
adjRHPM _{2.5-10}		-0.008	0.513	0.010
		R ² =0.513	Adjusted R ² =0.507	P<0.0001
Urban	N=348	B	R ²	R ² Change
Intercept		11.857		
adjRHPM _{2.5}		-0.019	0.542	0.542
SO ₂		0.052	0.544	0.002
NO ₂		-0.008	0.545	0.002
		R ² =0.545	Adjusted R ² =0.542	P<0.0001

Unit: µg/m³ adjRHPM = PM_{2.5} / (1 - RH)
 Bold numbers are significant at p<0.0001

Conclusions

1. This study have reported a severe visibility degradation, to which particulate matter (PM), especially for fine particles (PM_{2.5}), was found to be the major contributor.
2. The results further suggested that daily clinic visits for respiratory system disease are with increasing PM_{2.5} levels.
3. Findings from our study showed that visibility degradation was associated with daily clinic visits for respiratory system disease.
4. It is reasonable to hypothesize that visibility can be used as a direct and convenient indicator for assessing the health effects of air pollution on respiratory diseases.

Acknowledgments

This work is support by Ministry of Science and Technology (Taiwan) for financial support under project MOST 103-2311-M-040-002 NSC 99-2311-M-040-002-MY3.

Development and Evaluation of The novel Dry Denuder with multiple Parallel-Plates to remove acid and basic gases from the sampling airflow

Yu-Jen Tsai¹, Yu-Chieh Chen¹, Chung-Hao Cheng¹, Shih-Yu Chang^{1,2*},

¹School of Public Health, Chung Shan Medical University, Taichung 402, Taiwan

²Department of Family and Community Medicine, Chung Shan Medical University Hospital, Taichung 402, Taiwan

*Corresponding author: sychang@csmu.edu.tw

Keywords: Honeycomb denuder, impinger, Air quality monitoring.

The particles, collected by real-time and filter-based aerosol sampling, interact with the in-coming gases and thus are changed the composition during the sampling period. Despite several denuders have been commonly used to avoid this sampling artifact through the absorption of the acidic/basic gases, there are limits of absorption capacity, sampling flow rate, and collection efficiency especially for the hazardous air pollution in most Asian cities. In this work, the novel multiple parallel-plates dry denuder (MPPDD) was developed by the computational fluid dynamics (CFD) technology for connecting in series after the particle-size selector.

The flow rate of the MPPDD was set at 16.7 LPM, which can connect in series after the FRM designated particle-size selector. The measurement of the MPPDD was evaluated with the simultaneous measurement of the impinger (flow rate: 7 LPM) for evaluating the collection efficiency. The linear regression analysis exhibited high correlation with $r^2=0.98$ between these two methods for measuring NH_3 concentration. The slope and intercept were 0.92 and -0.15, respectively. Both of the MPPDD and honeycomb denuder (flow rate: 10 LPM) systems were coated with citric acid/glycerol and sodium carbonate/glycerol to evaluate the absorption capacity. Figure 1.(a) showed the collection efficiency of the honeycomb denuder was significantly lower than that of the MPPDD after 72hr under the condition of low ammonia concentration. Figure 1.(b) showed the collection efficiency of the honeycomb denuder significantly dropped off since 48hr under the high ammonia levels condition. The absorption capacity of the MPPDD was larger than that of the honeycomb denuder.

This novel multiple parallel-plates dry denuder system has the following advantages: (1) the flow rate of 16.7 LPM can be connect in series after the FRM designated particle-size selector, like $\text{PM}_{2.5}$ vary sharp cutcyclone and wins impactor; (2) applying the CFD technology maintained the laminar flow inside the denuder; (3) this design also allowed the expansion of other material plates for absorbing a greater variety of gases; and (4) this new system is more durable and friendly for monitoring studies.

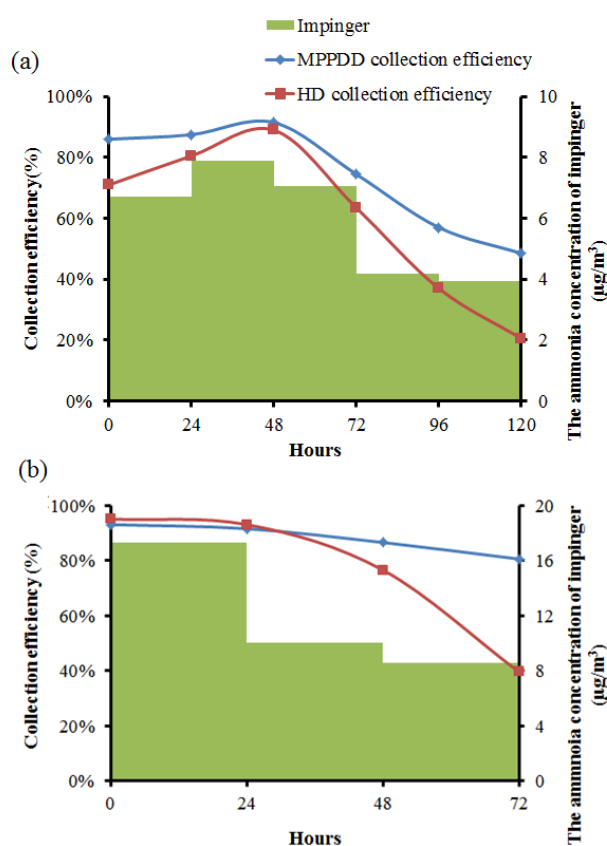


Figure 1. Collection efficiency(1-3days) of the multiple parallel plate dry denuder (MPPDD) system and honeycomb denuder (HD) under (a) the low ammonia concentration period and (b) the high ammonia concentration period.

Acknowledgements

This research was supported by the Ministry of Science and Technology of Taiwan (MOST 103-2111-M-040 -002).

References

Pathak, R.K., Chan, C.K. (2005) *Atmos. Environ.*, **39**, 1597-1607.

Assessing the health risks of air pollutants on the total respiratory system depending on a direct and convenient indicator of atmospheric visibility

Shih-Yu Chang^{1,2*}, Szu-Chieh Chen^{1,2}, Chia-Hsin Yang¹, Yu-Chieh Chen¹, Chung-Hao Cheng, Wen-Chang Tseng, Yu-Jen Tsai, Yu-Pei Wu, Guo-Chen Fang

¹School of Public Health, Chung Shan Medical University, Taiwan

²Department of Family and Community Medicine, Chung Shan Medical University Hospital, Taiwan

*Corresponding author: sychang@csmu.edu.tw

Keywords: PM_{2.5}, Relative risk, Inter-quartile range, Air quality

Recently, air pollution has played an important role in causing a hazard to human health. The air quality was usually assessed with the levels of multi-pollutants from measuring instruments. However, there were limits of the spatial representation and inaccessibility of measurements, which increased the difficulty of assessing the health effects of air quality for the people in daily life. The atmospheric visibility was the aggregative indicator of air pollution and meteorological condition. Although the visibility might be regarded as a direct indicator of determining the air quality, rare studies reported the relationship between the atmospheric visibility and health risk (Huang *et al.*, 2009). This work tried to investigate a direct and convenient indicator to evaluate the health risk of air pollutants according to the association between the atmospheric visibility and the total respiratory diseases (ICD-9: 460-519).

Daily measurements of air pollutants from the Taiwan Environmental Protection Administration monitoring stations, atmospheric visibility with the naked eye from the Taiwan Central Weather Bureau as well as all cause and cause-specific consultation rates from the Taiwan's National Health Insurance Research Database Access in Taichung were obtained for the period of one year in 2010. Poisson regression analysis was used, with adjustment for potential confounding including the meteorological factors and spatial variances and types of air pollution, to evaluate the relationship between the atmospheric visibility and the total respiratory consultation rate.

The primary results indicated that air pollution and visibility degradation were both more serious in the urban area than that in the suburban area. There were significantly relative health risks of 1.09 in the suburban area and 1.04 in the urban area under the hazard periods of atmospheric visibility ≤ 10 kilometers. Figure 1 illustrated relationships between visibility and consultation rates outcomes in the urban and suburban areas. Although the consultation rates do not increase monotonically with decreased visibility, the exposure-response curves presented negative, linear relationships with $P < 0.05$ in the suburban area. Because exposure data obtained from a single monitoring station might not well represent population exposure risks in the urban area with a dense urban population, the similar relationships between the visibility and total consultation rate were observed with P of 0.212 in the

urban area. The relative risks of 0.07 (95% CI) and 0.127 (95%CI) increase of total respiratory consultation were significantly associated with one inter-quartile range of 2.5 and 5.7 km decrease in the urban and suburban areas.

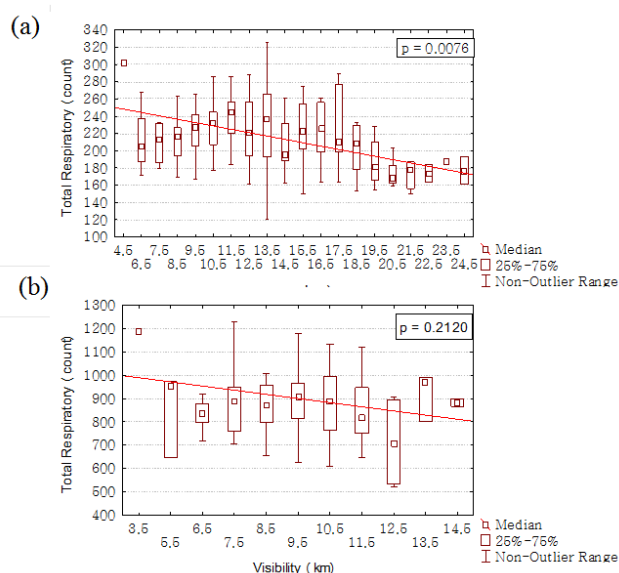


Figure 1 Relationship of visibility with total respiratory consultation rate between the (a) suburban and (b) urban areas in Taichung.

Acknowledgements

This work was supported by the Ministry of Science and Technology in Taiwan for financial support under project No. MOST 103-2111-M-040-002

References

- Huang, W., Tan, J., Kan, H., Zhao, N., Song, W., Song, G., Chen, G., Jiang, L., Jiang, C., Chen, R., Chen, B. (2009) *Sci. Total Environ.*, **407**, 329 5-3300.

科技部補助計畫衍生研發成果推廣資料表

日期:2015/10/30

科技部補助計畫	計畫名稱: 中南半島生質燃燒與東北季風傳輸對於恆春地區空氣品質與大氣輻射的衝擊
	計畫主持人: 張士昱
	計畫編號: 103-2111-M-040-002- 學門領域: 大氣化學
無研發成果推廣資料	

103年度專題研究計畫研究成果彙整表

計畫主持人：張士昱		計畫編號：103-2111-M-040-002-				計畫名稱：中南半島生質燃燒與東北季風傳輸對於恆春地區空氣品質與大氣輻射的衝擊	
成果項目		量化			單位	備註（質化說明：如數個計畫共同成果、成果列為該期刊之封面故事...等）	
		實際已達成數（被接受或已發表）	預期總達成數（含實際已達成數）	本計畫實際貢獻百分比			
國內	論文著作	期刊論文	0	0	100%	篇	
		研究報告/技術報告	1	1	100%		
		研討會論文	1	1	100%		
		專書	0	0	100%	章/本	
	專利	申請中件數	0	0	100%	件	
		已獲得件數	0	0	100%		
	技術移轉	件數	0	0	100%	件	
		權利金	0	0	100%	千元	
	參與計畫人力（本國籍）	碩士生	1	1	100%	人次	
		博士生	1	1	100%		
博士後研究員		0	0	100%			
專任助理		0	0	100%			
國外	論文著作	期刊論文	0	0	100%	篇	
		研究報告/技術報告	0	0	100%		
		研討會論文	2	1	200%		
		專書	0	0	100%	章/本	
	專利	申請中件數	0	0	100%	件	
		已獲得件數	0	0	100%		
	技術移轉	件數	0	0	100%	件	
		權利金	0	0	100%	千元	
	參與計畫人力（外國籍）	碩士生	0	0	100%	人次	
		博士生	0	0	100%		
博士後研究員		0	0	100%			
專任助理		0	0	100%			
其他成果 （無法以量化表達之成果如辦理學術活動、獲得獎項、重要國際合作、研究成果國際影響力及其他協助產業技術發展之具體效益事項等，請以文字敘述填列。）		本計畫期間參與2015年春季金門聯合觀測實驗與七海計畫現址採樣工作與分析					

	成果項目	量化	名稱或內容性質簡述
科教處計畫加填項目	測驗工具(含質性與量性)	0	
	課程/模組	0	
	電腦及網路系統或工具	0	
	教材	0	
	舉辦之活動/競賽	0	
	研討會/工作坊	0	
	電子報、網站	0	
	計畫成果推廣之參與(閱聽)人數	0	

科技部補助專題研究計畫成果報告自評表

請就研究內容與原計畫相符程度、達成預期目標情況、研究成果之學術或應用價值（簡要敘述成果所代表之意義、價值、影響或進一步發展之可能性）、是否適合在學術期刊發表或申請專利、主要發現或其他有關價值等，作一綜合評估。

1. 請就研究內容與原計畫相符程度、達成預期目標情況作一綜合評估

達成目標

未達成目標（請說明，以100字為限）

實驗失敗

因故實驗中斷

其他原因

說明：

2. 研究成果在學術期刊發表或申請專利等情形：

論文： 已發表 未發表之文稿 撰寫中 無

專利： 已獲得 申請中 無

技轉： 已技轉 洽談中 無

其他：（以100字為限）

3. 請依學術成就、技術創新、社會影響等方面，評估研究成果之學術或應用價值（簡要敘述成果所代表之意義、價值、影響或進一步發展之可能性）（以500字為限）

先前的觀測可發現下沖氣流傳輸發生在大陸冷高壓與中南半島生質燃燒氣流的交會處，但下沖傳輸至地表的時間僅維持數小時，若能分析此數小時內的氣膠成分特徵變化，將有助於瞭解人為污染物對於降雨的影響。但目前為止，受限於觀測數據的時間解析與空間分佈，相關的觀測數據並不足以提供探討此一現象。本研究充分利用逐時氣膠離子成分分析與搭配氣膠光學量測，進行中南半島生質燃燒的長程污染傳輸的下沖現象的驗證，但在三年的連續觀測中，本計劃並以PMF源解析模式辨別恆春地區污染來源，並以氣膠光學分析以及垂直氣象場模擬驗證，僅於2013年受到中南半島生質燃燒排放的下沖傳輸。且下沖傳輸的過程中對於恆春地區PM_{2.5}的貢獻則可高達10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 左右。本研究應用PMF源解析模式了解各污染源對於PM_{2.5}的貢獻程度，此方法的建立可辨別各污染源對於空氣品質的影響，並可進一步進行管制。