



2000

Dissipation of organochlorine insecticide residues in the environment of Taiwan, 1973-1999

Follow this and additional works at: <https://www.jfda-online.com/journal>

Recommended Citation

Wang, C.H. and Liu, C. (2000) "Dissipation of organochlorine insecticide residues in the environment of Taiwan, 1973-1999," *Journal of Food and Drug Analysis*: Vol. 8 : Iss. 3 , Article 9.
Available at: <https://doi.org/10.38212/2224-6614.2853>

This Original Article is brought to you for free and open access by Journal of Food and Drug Analysis. It has been accepted for inclusion in Journal of Food and Drug Analysis by an authorized editor of Journal of Food and Drug Analysis.

台灣歷年環境中有機氯殺蟲劑殘留 趨勢分析 (1973-1999)

王正雄* 柳家瑞#

環境保護署環境檢驗所
桃園縣中壢市民族路三段260號

(Received: May 10, 2000; Accepted: August 8, 2000)

摘 要

台灣地區爲了防治農業及衛生害蟲，自1950年至1974年間，有機氯殺蟲劑被普遍施用於農田及環境中。其後因噴灑的殺蟲劑不易分解，長期殘留於環境介質中，亦可能經食物鏈濃縮殘留於生物體內，歷年來累積不少的大規模調查報告。本文分析比較歷年環保署文獻及其他文獻調查數據，進而探討昔日台灣地區所使用之有機氯殺蟲劑在環境及生物的殘留流佈。結果發現有機氯殺蟲劑自1970年代陸續禁用後在農田土壤中即迅速衰減，1981年農田表土的總DDT殘留濃度只有1970年代的三分之一。而1994年又降低至1981年的三分之一。又1970年代農田土壤含量亦較高的地特靈、靈丹及阿特靈，則自1981年後均遠低於DDT的殘留量。

1970年代河川水中可檢出ppt含量之各種有機氯殺蟲劑，但1990年代後河川水中已極少檢出。河川底泥有機氯殺蟲劑降解較慢，至1980年代仍可檢出數ppb之靈丹、DDT、DDE、DDD、阿特靈及地特靈，其殘留濃度甚至於較同年代農田土壤及1970年代的河川底泥都還要高，迄1990年代末含量始降至ppb以下。

貝類有機氯殺蟲劑殘留量稍高於底泥，反映生物濃縮的效應。1980年代的貝類殘留有機氯殺蟲劑亦較1970年代增加，隨時間變化驅勢與底泥相同，尤其以DDT及阿特靈含量較高，達10 ppb以上，直至1990年代則降至ppb以下的程度。至於魚肉在1973年含有數ppb程度的各種有機氯殺蟲劑，到1990年代則大幅降至ppb以下的程度。1975年文獻報告鴨蛋含有數百ppb DDE及上百ppb DDT，爲殘留量較高之兩種有機氯殺蟲劑；1981年另有文獻報告，發現母乳含DDE近ppm，有關陸生動物組織含量資料則甚爲缺乏。由台灣環境介質及生物組織含有機氯殺蟲劑含量及其隨時間變化，可確定近年殘留量已甚低，但因有機氯殺蟲劑經食物鏈會在生物體內濃縮，尤其是DDT類生物濃縮現象最明顯，未來仍有待繼續追蹤監測。

關鍵詞：有機氯殺蟲劑，殘留，環境流佈，趨勢分析

#：目前任職衛生署管制藥品管理局

前 言

台灣地處亞熱地帶，氣候高溫多濕，最適害蟲繁殖爲患。在健康危害方面，1945年以前，由於瘧蚊 (*Anopheles minimus*) 之傳播病源，造成二分之一的人口感染瘧疾；而農業方面更因爲蟲害，造成欠收。光復後，1949年台灣首度引進滴滴涕 (DDT)，1950年再引進蟲必死 (BHC)，以防治衛生及農業蟲害；其後陸續使用靈丹 (lindane)、阿特靈 (aldrin)、地特靈 (dieldrin)、飛佈達 (heptachlor)、安殺番 (endosulfan) 等有機氯殺蟲劑以防治農業害蟲，台灣的瘧疾根除計畫爲了防治瘧蚊，自1953至1957年，五年內共噴灑2,474,955公斤的

DDT。其後，多種有機氯殺蟲劑因環境殘留或毒性而相繼公告禁用 (有機氯殺蟲劑的使用、禁用時間如Table 1) (1,2)。根據台灣區農藥工業同業公會(3)統計，有機氯殺蟲劑以蟲必死產銷量最大，迄1966年銷售量達一萬七千公噸；DDT次之，迄1969年銷售量亦有一千公噸；其餘種類用量較少 (1962-1974年台灣有機氯殺蟲劑銷售量如Figure 1所示)。殆1975

Table 1. Usage history of banned organochlorine insecticides in Taiwan

Insecticide	Year of use started	Sale and usage banned	Banned for
DDT	1949	July 1, 1974	persistence
BHC	1950	October 1, 1975	persistence
Lidane	1951	February 1, 1985	Tumor
Aldrin	1952	October 1, 1975	Persistence
Endrin	1953	January 1, 1972	Persistence
Dieldrin	1955	October 1, 1975	Persistence
Heptachlor	1964	October 1, 1975	Persistence

* Author for correspondence. Tel: 03-4915056; Fax: 03-4915460;
E-mail: chwang@mail.niea.gov.tw

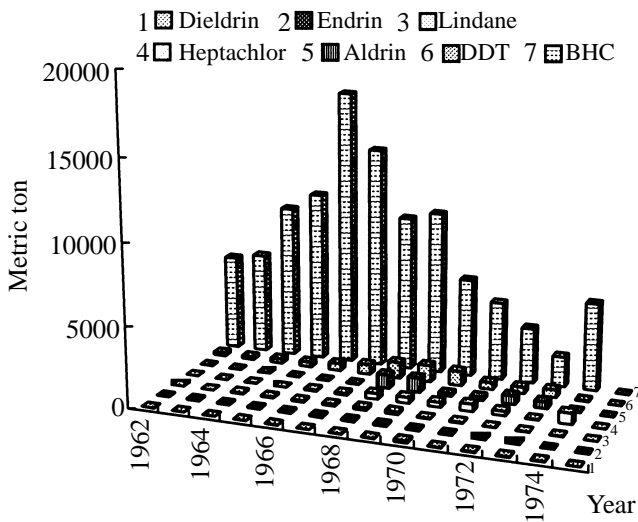


Figure 1. Total sales of organochlorine insecticides in Taiwan.

年，蟲必死、滴滴涕、阿特靈、飛佈達、靈丹、安特靈及地特靈等7種有機氯殺蟲劑因禁用均已無產銷紀錄。總計使用時間以靈丹最長為34年，飛佈達最短只有11年，其他則有19-25年之歷史。總累計用量亦以蟲必死最高，所有劑型加總達十萬公噸以上，DDT次高有六千三百餘公噸，阿特靈及飛佈達則各有三千二百餘公噸及二千七百餘公噸，安特靈及地特靈則用量最低，各有六百及三百餘公噸。

有機氯殺蟲劑為揮發性低、不易分解的疏水性物質，台灣地區雖然禁用二十多年，但當年農業、衛生使用的藥劑卻仍廣泛的殘留於環境而造成污染。又有機氯殺蟲劑半衰期甚長，在環境中雖不易分解，但是在適當條件下，卻可經由生物或化學作用，轉化成更穩定的代謝產物或衍生物，可自環境介質普遍檢出。例如DDT在好氧環境中被氧化轉化成DDE；在厭氧環境中則進行還原脫氯，轉化為DDD。此外，飛佈達轉化成環氧飛佈達；阿特靈轉化為地特靈；安特靈轉化成安特靈酮及安特靈醛。又殘留於河川底泥的有機氯殺蟲劑亦可經由再溶解或沖蝕作用而進入水體中，進而可能污染飲用水源；此外，更可經由水中生物的生物濃縮效應累積於魚貝類，進而危害環境生態及食品安全⁽¹⁾。

環保署成立後，依「毒性化學物質管理法」之規定，許多有機氯殺蟲劑如DDT、蟲必死、地特靈、安特靈、飛佈達、阿特靈等均被公告為毒性化學物質，全面禁止運作，靈丹則被列為限制使用的毒化物。由於有機氯殺蟲劑在土壤中的消失期需數年乃至於數十年⁽⁴⁾，致其在環境中分解緩慢而長期存在，時至今日仍可自各種環境樣品中檢出，世界上許多地區亦均有同樣的現象。此外，有機氯殺蟲劑亦屬於近年來受到各國普遍重視的環境難分解有機污染物質 (persistent organic pollutants)；但由於

其價廉且廣效性，以致目前仍有許多開發中國家仍持續使用而繼續流入環境中，有跨境流佈問題已成爲國際重要環境議題。

本文係整理本署多年來環境介質中有機氯殺蟲劑之檢測結果，並分析歷年來相關文獻報告之數據，進而探討昔日台灣地區所使用之有機氯殺蟲劑，如何在環境及生物中流佈，以及多年來之衰減情形，是否仍造成污染，並與其他地區相比較，作爲國內是否應繼續及如何監測調查政策之參考。

方 法

台灣地區早在1970年代開始即有農業等有關單位著手環境有機氯殺蟲劑殘留調查^(5,6,7)，從水、土壤、底泥、魚貝類以及鴨蛋、人奶、野生物等各種介質進行廣泛分析，本文除整理環境檢驗所多年來環境介質中有機氯殺蟲劑之檢測報告及環保署近年的研究計劃報告外，亦蒐集歷年來有關文獻，以曾發表於正式期刊者爲主，較大規模以全台灣爲調查區域者爲主，另如其他政府農業單位監測報告亦列入，盡量挑選品管數據較完整，對回收率、方法偵測極限有評估的報告，分析比較各調查研究數據，以了解各介質中該等藥劑之殘留量，及其隨時間、空間的變化趨勢。

在數據處理時，常有樣品未檢出的狀況，尤其以近年殘留量檢出率更低，許多調查報告常以檢出率來表示，而平均值則以樣品有檢出者加以計算，如此在比較不同報告中的數據時即有困難，因此本篇乃將未檢出樣品含量以0計算，並以各種平均值作爲數據比較基礎。另在單位使用上雖然各報告均使用ppb或ppm，但生物仍牽涉樣品爲乾重或濕重爲基的不同，在處理上則均加以說明並在比較及圖中均以平均水分含量爲80%換算成以溼重爲基礎後才製圖。

結 果

環境一般可分爲土壤、水、底泥、生物及空氣等各種介質。有機氯殺蟲劑屬揮發性較低的疏水性有機化合物，故在環境中的流佈以空氣以外的介質爲主，尤其因其脂溶性強，具生物累積性因而普遍存在於生物體內。以下將歷年來環境中有機氯殺蟲劑之檢測數據分成土壤、水、底泥、生物四部分分別加以探討，並參酌歷年來各調查數據，分析其隨時空變化的趨勢及其意義。

一、土壤

有機氯殺蟲劑早年直接使用於農田，因此農田土壤的殘留最早受到注意，自1973年起有台灣植物

保護中心（即目前農業藥物毒物試驗所前身），開始調查台灣農田土壤，至1994年共計完成全面性的三次調查；台灣植物保護中心古⁽⁷⁾則於1973-1976年大規模調查不同作物田土壤，之後亦有較零星的土壤調查數據。

李及李⁽⁶⁾於1974年發表台灣最早的土壤有機氯殺蟲劑調查之一，彼於1973年採集全省稻米產區共19鄉鎮各3塊農田土壤，分析8種有機氯殺蟲劑，其偵測極限為0.3-2.0 ppb。調查結果發現以DDT類含量較高（平均表土DDT、DDD及DDE含量各為17 ppb, 19 ppb及20 ppb）。地特靈、靈丹及阿特靈含量次之，表土平均含量各為18 ppb, 12 ppb及11 ppb。飛佈達及環氧飛佈達則含量較低，表土含量只有1.2 ppb及2.1 ppb。

李及李⁽⁸⁾於1981年再度調查台灣中南部水稻田68件柱狀土壤樣品，表土DDE平均含量最高（14.9 ppb），DDT平均含量2.8 ppb，其他6種有機氯殺蟲劑平均含量低於1 ppb，安特靈及飛佈達更均未檢出。比較兩次調查結果，8年間稻田土壤含地特靈降幅達原來3%，阿特靈則為原來4%，靈丹6%，DDT也降達16%，DDE則只減少到原來的73%，因係DDT持續分解產生DDE造成。

林等⁽⁹⁾1994年再度調查全台農田土壤，其中DDE平均含量6 ppb（表土）及4 ppb（裡土）；與李及李⁽⁸⁾1981年調查結果比較：只有13年前的一半；次高的靈丹平均含量1.1 ppb（表土）及0.4 ppb（裡土）；阿特靈平均含量只有1.9 ppb，安特靈、飛佈達及環氧飛佈達平均含量低於0.2 ppb，較難估算較13年前的降低幅度。

古⁽⁷⁾曾於1974-76年調查全台不同農田土壤，包含水稻田土316件，各有機氯殺蟲劑含量均低於李及李⁽⁶⁾在1973年調查，但稍高於李及李⁽⁸⁾在1981年調查，將以上四篇有機氯殺蟲劑數據，列出其含量隨時間變化如Figure 2所示。由於DDT於1974年禁止使用；阿特靈、地特靈、蟲必死、飛佈達於1975

年禁用，稻田土壤中各項有機氯殺蟲劑在1973及1974-1976年二次調查期間即大幅降低，1974-1976年調查時仍以DDT及阿特靈殘留降幅較小，其後以DDT的降幅較慢，至1981年調查時仍有數ppb，其他各項有機氯殺蟲劑則在1981年時均已降至背景含量的程度。

王等⁽¹⁰⁾在1981年採集桃園大園工業區及其附近農田土壤119件分析所含有機氯殺蟲劑，結果與李及李⁽⁸⁾於1981年調查台灣中南部農田土壤結果相比，以表土而言，大園地區土壤4,4'-DDE含量達16 ppb，與中南部農田土壤含量達15 ppb相近；大園地區土壤還有阿特靈、靈丹、4,4'-DDT含量超過10 ppb，則較高於李及李⁽⁸⁾調查中南部農田土壤含量，大園地區土壤含7種禁用有機氯殺蟲劑（不含4,4'-DDD）總量為74 ppb，台灣中南部農田表土含7種禁用有機氯殺蟲劑總量為20 ppb，顯示有機氯殺蟲劑殘留在不同地區土壤差異並不大。

二、水

水中有機氯殺蟲劑含量一般遠低於土壤、底泥及生物，歷年調查數據亦較少，最早為台灣植物保護中心古⁽⁷⁾在1973-1976年間調查大肚溪及淡水河流域數百件代表性樣品，河水靈丹平均濃度各為0.018 ppb及0.0047 ppb，大肚溪及淡水河水地特靈平均濃度均為0.009 ppb；此外淡水河水中DDT類總平均含量0.014 ppb，較大肚溪水的0.0068 ppb為高；大肚溪及淡水河水有機氯殺蟲劑均以飛佈達及環氧飛佈達含量最低。

環保署1998-1999年調查大漢溪、客雅溪及烏溪⁽¹¹⁾，檢測36件河水樣品結果顯示，安特靈只檢出三件，其餘有機氯殺蟲劑均未檢出或只有一件檢出。與25年前的大肚溪及淡水河⁽⁷⁾相較，禁用殺蟲劑的檢出率已大幅降低。

環保署1998年分析四處自來水源的農藥殘留⁽¹²⁾，共分析26種有機氯農藥，偵測極限約0.005-

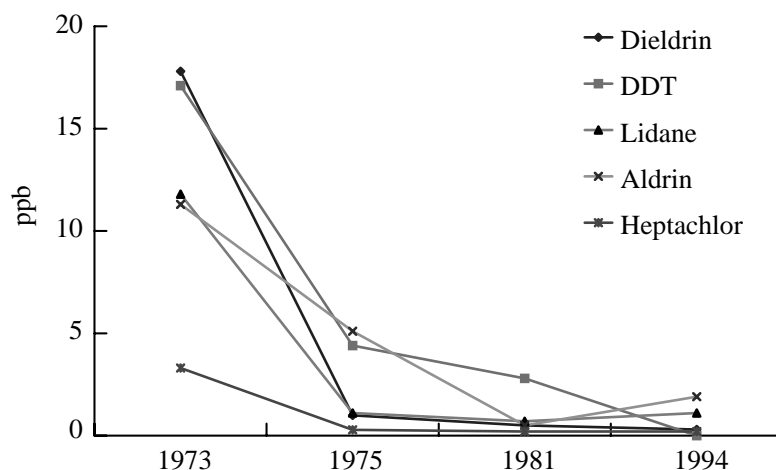


Figure 2. Temporal trend of organochlorine insecticide residues in rice paddy soil of Taiwan.

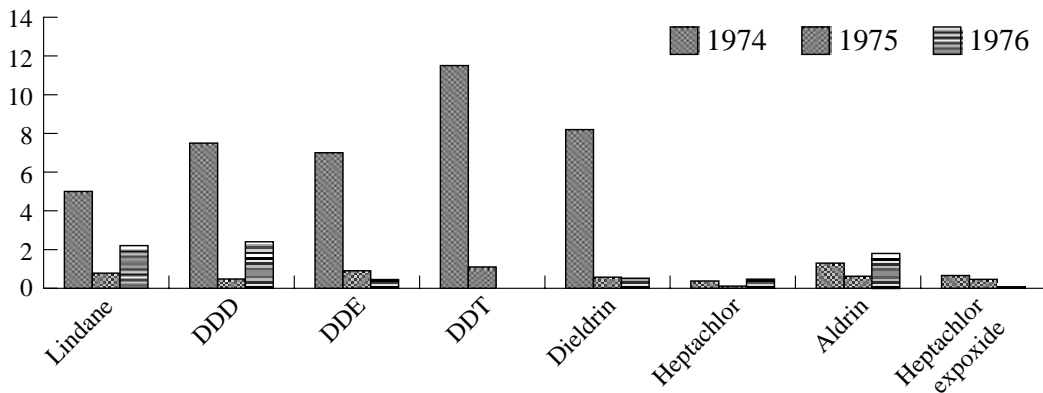


Figure 3. Organochlorine insecticide residues in Da-Tu River sediment from 1973-1976.

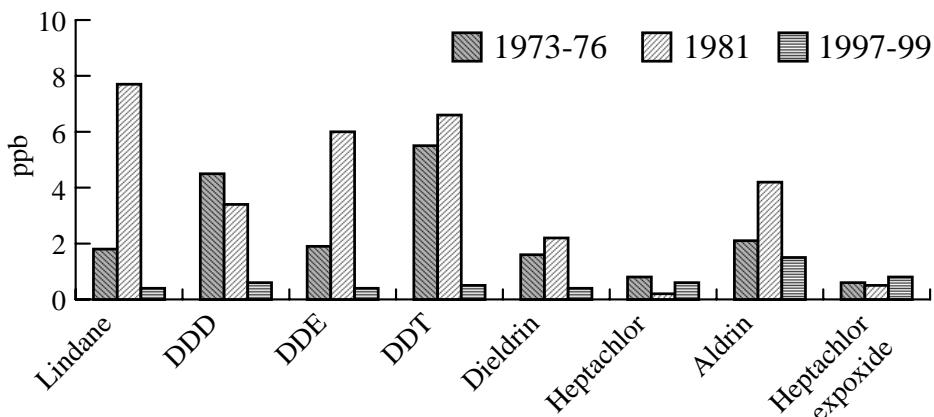


Figure 4. Temporal trend of organochlorine insecticide residues in sediment.

0.02 ppb，均未發現有機氯農藥殘留。綜合以上的數據，環境水體中各禁用有機氯殺蟲劑含量近年已低至一般使用方法偵測極限以下，正確定量需更繁複的方法。

三、底泥

最早底泥含有機氯殺蟲劑的大規模調查，為古⁽⁷⁾於1973-1976年間調查大肚溪及淡水河流域數百件底泥代表性樣品，結果發現各種有機氯殺蟲劑約有數ppb的程度，大肚溪底泥以DDD及靈丹（各為2.3 ppb）平均含量較高；淡水河底泥有機氯殺蟲劑則以DDT平均含量較高（10 ppb），二條河均以飛佈達及環氧飛佈達含量較低。由底泥及河水有機氯殺蟲劑含量差異可見，平均而言，大肚溪底泥有機氯殺蟲劑含量為水中含量的175倍，淡水河底泥有機氯殺蟲劑含量為水中含量的320倍。調查數據較多、時期較長的大肚溪底泥有機氯殺蟲劑含量在1973年11月至1976年11月三年度的變化趨勢，可以Figure 3表示。顯示第一年大肚溪底泥各有機氯殺蟲劑含量除飛佈達外均有數ppb，但在次年地特靈、靈丹、DDT類即大幅降低，明顯反應台灣禁用有機氯殺蟲劑後，大肚溪底泥含量立即降低的效果。

吳等⁽¹³⁾於1980-1981年間進行歷年台灣最大規模

的底泥調查，調查20條河川共136件樣品。結果靈丹平均含量最高，為7.7 ppb，4,4'-DDT含量次高，為6.6 ppb，三種DDT類總平均含量則為16 ppb；平均含量最低的飛佈達及環氧飛佈達只有0.5 ppb及0.2 ppb，8種有機氯殺蟲劑總平均含量則為31 ppb。比較各河川底泥8種有機氯殺蟲劑總平均含量，則以基隆河的79 ppb最高，大肚溪、八掌溪、北港溪、高屏溪、鹽水溪、朴子溪次之，總含量範圍44-58 ppb，大漢溪、蘭陽溪、頭前溪、中港溪、後龍溪、大甲溪、急水溪、東港溪再次之，總含量範圍20-31 ppb，曾文溪、林邊溪底泥總含量範圍12-13 ppb，最低的是卑南溪、後勁溪、濁水溪總含量範圍只有3-6 ppb。

環保署於1998-1999年調查大漢溪、客雅溪及烏溪環境及魚類含有機氯殺蟲劑⁽¹¹⁾；並於1997-1999調查大漢溪、二仁溪、烏溪及東港溪底泥^(14,15)，其中已禁用有機氯殺蟲劑殘留量均低。平均含量大多均以後者報告數據較高，DDE、 β -BHC、地特靈及 α -安殺番平均含量各為0.7 ppb、1.6 ppb、0.5 ppb、及0.7 ppb；前者報告中阿特靈平均含量則為1.6 ppb。平均加總DDT類、蟲必死類、飛佈達類以及特靈類共12種有機氯殺蟲劑的總量，則前者為4.9 ppb，後者為9.7 ppb，可確認已低至個位數ppb程

度，可見近年來河川底泥有機氯殺蟲劑的含量已經大幅下降。將古⁽⁷⁾1973-1976年調查大肚溪及淡水河、吳等⁽¹³⁾1981年調查台灣20條河川、以及環保署最近兩年調查台灣5條河川底泥的平均有機氯殺蟲劑的含量作如Figure 4，可以看出有機氯殺蟲劑隨時間的含量變化，可見1981年時，台灣河川底泥8種有機氯殺蟲劑未均有降低，如DDT類在古⁽⁷⁾調查大肚溪及淡水河底泥含量各為4.6 ppb及17.2ppb，而吳⁽¹³⁾調查全台20條河川底泥含量則為16 ppb，環保署二次調查結果則為0.6 ppb及2.2 ppb。甚至如靈丹、DDE、阿特靈還有增加的狀況，直到1997年後環保署的調查，才顯示底泥有機氯殺蟲劑的下降。是否因為施用於土壤的有機氯殺蟲劑受空氣及雨水等攜帶逐漸流入河川，再沉降並吸附於底泥，此段過程費時以至底泥累積富集禁用有機氯殺蟲劑較土壤延遲？為有待研究的問題。另外可見底泥主要檢出有機氯殺蟲劑仍為DDT類、地特靈及阿特靈。各有機氯殺蟲劑平均含量範圍較土壤差距小。

四、水生物及陸生生物組織

鄭及孫⁽⁵⁾1974年發表最早台灣環境生物有機氯殺蟲劑殘留大規模調查報告之一。樣品包含彰化、台南地區養殖淡鹹水魚、雲嘉地區牡蠣以及文蛤。結果阿特靈、安特靈、飛佈達及環氧飛佈達均未檢出。魚貝類有機氯殺蟲劑殘留量以DDT>BHC>地特靈，魚類DDT類農藥中以4,4'-DDD含量最高（平均14 ppb），4,4'-DDE次之（平均8 ppb），4,4'-DDT最低（平均7 ppb），顯示殘留魚肉的DDT類大部分為其分解產物；但是貝類含DDT類則仍以4,4'-DDT為主（平均9 ppb），4,4'-DDD（平均3 ppb）及4,4'-DDE（平均2 ppb）只佔少部分，魚貝類可食用部分的總有機氯殺蟲劑平均含量則各為64 ppb及24 ppb。

前述魚貝類所含有機氯殺蟲劑與古⁽⁷⁾測定大肚溪及淡水河水中含量比較，魚肉總平均含量為河水平均值的890倍，貝類總平均含量為河水平均值的340倍，顯現有機氯殺蟲劑生物濃縮的效應。

洪⁽¹⁶⁾曾彙整蘇等⁽¹⁷⁾於1980-1983年間調查台灣西

部香山、鹿港、布袋、東港等沿岸及馬公地區大批牡蠣及文蛤，發現阿特靈及4,4'-DDE平均含量為10.7 ppb及4.1 ppb。總有機氯殺蟲劑平均含量為37 ppb。由DDT、DDE、靈丹、阿特靈及地特靈平均含量均未比鄭及孫⁽⁵⁾調查含量低，推測十年間（1973-1983）台灣貝類有機氯殺蟲劑含量並未降低，甚至DDT及阿特靈還有增加的趨勢。

Wang等⁽¹⁸⁾曾在1994-1995年調查中港溪上游至下游六站魚類，結果以4,4'-DDE的平均含量最高（9.5 ppb），而4,4'-DDE及4,4'-DDT的含量比例約為8，較鄭及孫⁽⁵⁾調查魚肉含4,4'-DDE及4,4'-DDT的含量比例約為1.1已大幅提高，顯示4,4'-DDT已大部分成為分解產物，應為過去使用之殘留，隨禁用時間分解所致。有機氯殺蟲劑含量以中游較低，最上游的南庄橋、三灣橋及最下游的五福橋較高，無上下游高低順序排列現象，魚肉各站有機氯殺蟲劑總平均含量範圍3-14 ppb，差異不大，顯示近年中港溪流域有機氯殺蟲劑呈現均勻的分布狀態。

黃及柳⁽¹⁹⁾則於1995年採集台灣沿岸及基隆河魚貝類，發現基隆河魚體平均含量仍以4,4'-DDE的9.5 ppb（以乾重計）最高，4,4'-DDT約只有其四分之一，沿岸貝類則4,4'-DDE平均含量2.2 ppb，4,4'-DDT則有1.7 ppb，基隆河魚各種有機氯殺蟲劑含量較台灣西岸貝類為高。

此外，環保署於1998-1999年調查大漢溪、客雅溪及烏溪的魚類⁽¹¹⁾，顯示有機氯殺蟲劑總含量達18.7 ppb（以乾重計）。BHC及飛佈達類含量約2 ppb。三條河川中魚體均有少量有機氯殺蟲劑檢出，其中以烏溪魚體含量較低。

綜合以上調查結果，不同年代魚貝類有機氯殺蟲劑含量在禁用以來有逐漸降低驅勢，魚肉DDT類只剩二十餘年前的7%-10%，貝肉DDT類則餘6%；魚肉及貝肉靈丹均只剩2%；魚肉地特靈只剩0-18%，貝肉含地特靈則餘15%。

台灣地區貝類有機氯殺蟲劑含量共有三篇不同時期大規模之調查文獻。鄭及孫⁽⁵⁾、洪⁽¹⁶⁾、黃及柳⁽¹⁹⁾，將數據均換算為濕基列如Figure 5，顯示自1973至1983年間，貝類各種有機氯殺蟲劑含量除

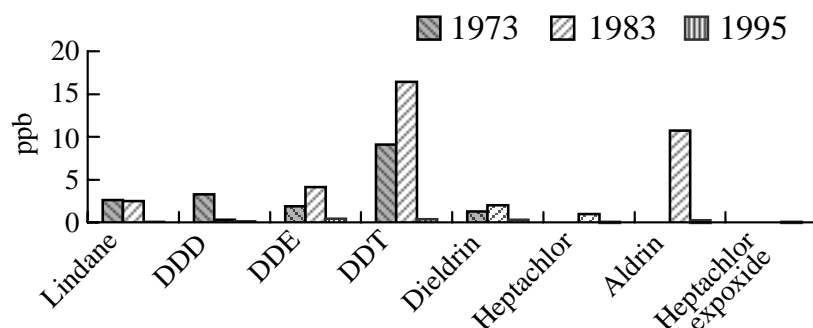


Figure 5. Temporal trend of organochlorine insecticide residues in shellfish of Taiwan.

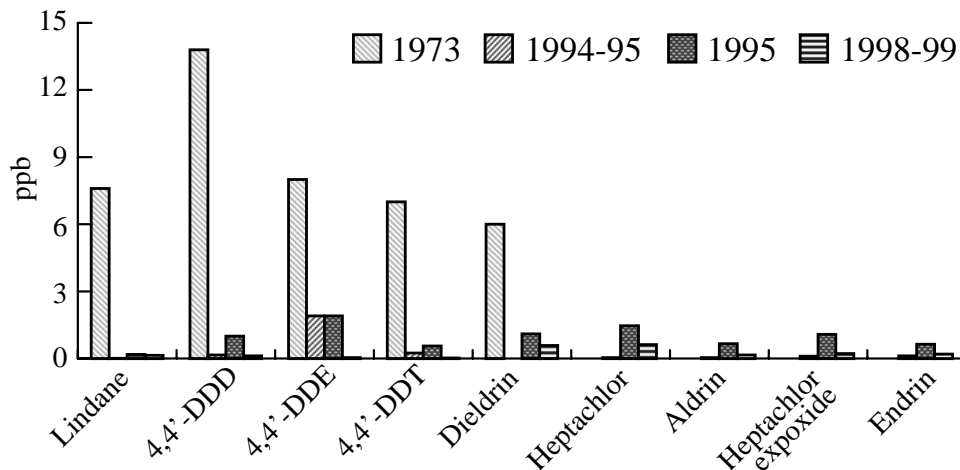


Figure 6. Temporal trend of organochlorine insecticide residues in fishes of Taiwan.

DDD、飛佈達外並未降低，而是至1995年以後的樣品才顯示各有機氯殺蟲劑含量均大幅下降的趨勢。

本研究引用鄭及孫⁽⁵⁾、Wang等⁽¹⁸⁾、黃及柳⁽¹⁹⁾、環保署⁽¹¹⁾在台灣不同地區魚類各種有機氯殺蟲劑含量四篇不同時期的調查，將各篇數據均換算為濕基列如Figure 6，可以顯示自1973年魚肉內殘留量較高的DDT類及靈丹、地特靈等有機氯殺蟲劑均在90年代以後大幅降低，但當時未檢出的飛佈達、環氧飛佈達、阿特靈、安特靈卻普遍發現，並在某些魚肉樣品中達ppb含量存在。

為了解大量使用有機氯殺蟲劑是否經食物鏈影響及較高等的陸生生物及人類，吳等⁽²⁰⁾於1981年分析台灣各地區106件產婦奶汁樣品，發現8種有機氯殺蟲劑總平均含量為828 ppb，4,4'-DDE及4,4'-DDT平均含量各為810 ppb及16 ppb。顯示生物累積效應最強的為4,4'-DDE。

古⁽⁷⁾曾於1975年調查宜蘭及屏東各地鴨蛋以及台中霧峰附近野生動物。發現鴨蛋含有機氯殺蟲劑範圍差距大含量亦高。DDE及DDT平均含量各為481 ppb及123 ppb；地特靈平均含量為38 ppb；靈丹平均含量最低(0.6 ppb)。野生動物包括鵪鶉，秧雞，二種蛇類及五種鼠類，發現以DDT類及地特靈含量較高，亦有達到ppm程度樣品。

討 論

有機氯殺蟲劑檢測早已有固定的檢測方法亦有許多機構人員具有檢測技術，在環境污染上因不易分解亦有其重要性，歷年台灣有相當多大規模的調查報告發表。但各調查採樣地點、頻率隨各階段機關需求目的而異，規模範圍大小不一，檢測人員及實驗室設備亦各自不同，數據比較分析上均必須加以考慮。例如1973年、1981年、1997-1999年調查河水及底泥的區域並不相同，魚貝類及土壤也有同

樣的問題，歷年調查採樣地點有所差異，比較隨時間的變化需先假定有機氯殺蟲劑在台灣地區使用及禁用後環境分布大致均勻，至少相對於隨時間的變化其空間差異較小，因此分析其時間趨勢才有可能。由於比較調查區域均為人口集中的農田地區、西岸沿岸及河川流域，台灣農田地區當年應均普遍使用有機氯殺蟲劑，由1981年調查大園地區土壤含量平均亦與當時南部農田土壤含量差異不大可見；西部沿岸及河川流域則屬於污染物如有機氯殺蟲劑自農田土壤隨空氣沉降或河水逕流流佈地區，由底泥調查含量範圍較土壤更小可見其分佈的均勻。雖然環境中各介質含量低，又受到實驗室間誤差不同的影響，仍可看出各有機氯殺蟲劑含量隨時間明顯降低的趨勢，而可反映有機氯殺蟲劑在環境中分布均勻的假設成立。當然執行良好的長期監測計畫應可得到更準確的含量數據及量化的變化趨勢，本報告綜合已有數據品質良好的研究加以分析，仍能得到許多有意義的重要結果。

此次在歷年來調查的有機氯殺蟲劑包括靈丹、飛佈達、阿特靈、DDT、安特靈、地特靈，在禁用前環境及生物含量即相當低，鄭⁽²¹⁾認為可能因亞熱帶有機氯殺蟲劑分解較快，且台灣雨量大河川短促，不利農藥累積的生態特性影響，故檢測數據低，與國外乾淨水域生物含量相當，食用安全無虞。但仍可分辨環境中各有機氯殺蟲劑相對的含量差異，如DDT類，尤其是其中的DDE，幾乎是所有調查中含量最高者，近年仍是如此，尤其在1975年調查的鴨蛋及1981年母乳中都是含量最高的有機氯殺蟲劑，反映其穩定、脂溶性、生物濃縮的特性，值得特別注意。而當年使用量最大的是蟲必死，其中靈丹含量佔13%，計算靈丹使用量仍然高於其他有機氯殺蟲劑，雖然反映在1973-76河水及底泥調查的靈丹含量及檢出率較高，在1980年以後的調查則含量偏低，甚至在1975年調查的鴨蛋及1981年母乳

中都是含量最低的有機氯殺蟲劑，亦顯示靈丹相對水溶解度較大，較易於分解代謝的特性，因此較無環境殘留問題；至於蟲必死殺蟲劑含其他異構物佔65-70%的 α -BHC、佔5-14%的 β -BHC、佔6-8%的 δ -BHC，因調查檢測數據較少，無法評估其含量及分解情形，然而因其較靈丹有環境持久性質，其環境殘留量需要進一步加以確認。至於各調查普遍發現飛佈達及環氧飛佈達含量最低，可能與其引進使用最晚，因此使用時間最短用量較少有關。阿特靈、安特靈、地特靈則雖確定使用量及環境含量均遠低於DDT類，但是其環境含量何者較高？則因各調查報告的含量及檢出率各有高低而無法確定，尤其近年含量降低更難準確定量比較。

比較1981年約同時調查台灣河川底泥⁽¹³⁾及台灣中南部稻田土壤⁽⁸⁾報告，以7種有機氯殺蟲劑平均含量而言，除4,4'-DDE以土壤的15 ppb高於底泥的6 ppb外，其他6種都是底泥高於土壤，靈丹差異高達11倍，阿特靈差8倍，地特靈差4倍，最少的DDT也有2倍多；而分析DDT類物種差異，底泥中4,4'-DDT及4,4'-DDE含量相近，4,4'-DDD含量則較低；稻田土壤則4,4'-DDE含量為4,4'-DDT的5倍多，顯示稻田不再使用DDT後，只有其分解產物DDE因分解較慢而累積存在於土壤。而底泥含較高量的DDT類及靈丹，可能是農業以外的來源，或係早期大量施用於土壤的有機氯殺蟲劑如DDT、蟲必死及阿特靈隨水或空氣攜帶至河川再沉降吸附於底泥，而底泥含有較高有機質吸附性強，因常為厭氧狀態其中的有機氯殺蟲劑分解可能較土壤更慢，因此有較大比例的DDT仍然以原有型態存在，而且造成當時（1981年）底泥含量反而較土壤高；另底泥以靈丹含量最高，反應台灣使用有機氯殺蟲劑時期中以蟲必死用量最高。

由Figure 3大肚溪底泥有機氯殺蟲劑含量可見禁用後一年間立即大幅降低的現象，但是調查的第二年及第三年底泥含量則除DDT外，並未繼續大幅降低，甚至靈丹、DDD、飛佈達、阿特靈會有增加趨勢，因未持續監測未知其後變化趨勢，但顯示河川底泥在有機氯殺蟲劑禁用後含量因土壤含有者繼續匯集有可能不會很快降低。而由Figure 4及Figure 5可見，臺灣1981年底泥⁽¹³⁾及1983年貝肉⁽¹⁶⁾的有機氯殺蟲劑含量調查數據，分別均高於1974-76年底泥⁽⁷⁾及1973年貝肉⁽⁵⁾的含量。如底泥1981年靈丹、DDE、DDT、地特靈、及阿特靈含量均高於1974-76年的數據，而貝肉1983年DDE、DDT、地特靈、飛佈達及阿特靈含量亦均高於1973年的數據。四篇調查研究分別為不同實驗室檢測結果，得到相同含量增加的時間趨勢，由於貝類生存於底泥中濾食水中顆粒，其含有機氯殺蟲劑量原應與底泥含量成相關，此結果應非實驗室誤差引至的巧合，應為

真實現象而有其合理的解釋。可能的解釋包括禁用後土壤成為持續的釋出源造成環境流佈，在各流域內隨河水攜帶沉降於有吸附性底泥，造成含量累積上升，如果由此推論此類環境污染並非禁止使用即可有立竿見影的效果，其環境流佈時空變遷，實有更詳細分析評估的必要。

有機氯殺蟲劑的分析方法，從台灣最早有氣相層析電子捕捉偵測器以來，二十餘年來使用的儀器設備均大致相同，水樣直接取數百毫升以有機溶劑萃取，固體樣品如土壤、底泥及生物組織則取數克至數十克風乾、以冷凍乾燥除水、或是以無水硫酸鈉混合除水，之後以有機溶劑正己烷、丙酮萃取。土壤及生物使用最多的是索氏萃取法，近來亦有用超音波萃取法、超臨界流體萃取法、微波萃取法等。萃取液經矽酸鎂管柱淨化或其他適當的管柱淨化，以6%至15% 乙醚/正己烷抽提後濃縮定容，最後用氣相層析儀配備電子捕捉偵測器加以定量。早期1970年代使用的層析管是長數米的填充式管柱，1980年代以後漸改為長數十米的毛細管柱，提昇分析靈敏度，因此可以減少取樣量而提昇檢測效率；電子捕捉偵測器雖是對負電性分子如有機氯殺蟲劑特別靈敏的選擇性偵測器，但在微量分析時，非有機氯殺蟲劑的負電性分子干擾物質，仍可能造成含有的誤判，因此以環保署1997年公告的有機氯農藥檢測方法⁽²²⁾為例，即規定應使用不同極性的第二支層析管確認目標物存在的正確性；另適當的品管樣品如重複分析可評估數據的精密度，添加樣品的回收率可用來評估數據的準確性，空白樣品則對確認檢測系統無污染很重要，在環保署公告方法中均有相關規定，本研究選擇歷年調查報告中包含較完整的品管品管數據者，對判斷不同時期及不同實驗室產出的數據的可比較性，是非常有用的。因為歷年來有機氯殺蟲劑分析均大致使用相同的方法，偵測極限相近，只因基質及取樣量的差異而稍有不同，對水的偵測極限約為ppt程度，對底泥及魚體則約為ppb程度。

本研究將未檢出樣品含量以0計算各種平均值。雖然未檢出樣品含量未必是0而只是低於偵測極限，因此計算出來的平均值有低估的可能，但為了不同報告間數值的彙整分析，而作如此處理，如果各篇報告均有其各有機氯殺蟲劑偵測極限的數值，更理想的作法應是將其未檢出的數值估計為其偵測極限的一半，如此可以估算更準確的平均值。但是對於目標為監測環境含量的調查，最好大部分結果應在偵測極限以上才能據以為準確評估依據，對於極微量即可產生不良環境效應的物質尤其重要。因此對微量污染物質的檢測，在相同成本考量及儀器偵測能力內，以較少但品質好的數字較大量未檢出的結果具應用價值。

雖然蟲必死是台灣用量最大且遠高於其他種類的已禁用有機氯殺蟲劑，但在環境中的殘留量而言，仍以DDT類為台灣河川底泥、土壤及生物體內含量均最高的有機氯殺蟲劑，在魚貝類含量尤其更明顯偏高。因為禁用後逐漸分解，近年各種介質的禁用有機氯殺蟲劑平均含量均非常低，大多均在ppb程度以下不易準確定量，只有像DDT分解產物DDE之類因有生物累積效應，性質又極為穩定，仍可自生物體內普遍測到。與美國加州沿岸長期貝類監測計畫的數據比較⁽²³⁾，最乾淨的站在1977-1993年間DDT類總量約3-15 ppb，其他則數十、數百、數千ppb者均有，台灣貝類DDT類總量歷年調查含量約與其乾淨地點相當。與地中海1980-1991年貝類監測含量比較⁽²⁴⁾，其DDT類平均含量為未檢出至64 ppb（濕重），DDE/DDT比率則在十年間從1變為10，靈丹則為未檢出至0.6 ppb（濕重）；與亞德里亞海1974-1990貝類調查相比⁽²⁵⁾，其DDT類平均含量為未檢出至121 ppb（濕重），台灣貝類則靈丹含量稍高於亞德里亞海而DDT類含量較其低。其他國家地區魚類有機氯殺蟲劑調查，如美國大湖區為受污染地區，1990年其魚體DDT類平均含量為5-977 ppb⁽²⁶⁾（乾重），1993年調查結果則其魚體DDT類平均含量為1.1-124 ppb⁽²⁷⁾（濕重）；埃及亞歷山大附近的Abu-Quir海灣及Idku湖，1991年魚體中的DDT類平均含量為8-63 ppb（乾重）⁽²⁸⁾，台灣近年魚體中的DDT類平均含量為0.9-17.3 ppb（乾重），亦較美國大湖區及埃及調查為低。

鑑於有機氯殺蟲劑經食物鏈的累積效應很高，尤其在陸生食肉高等動物如鳥類及野生動物會累積高量於體內，過去古⁽⁷⁾曾在1975年測定鴨蛋及中部地區的野生物有機氯殺蟲劑的殘留，吳等⁽²⁰⁾曾在1981年調查母乳有機氯殺蟲劑的殘留，均較當時其他環境介質及魚貝類含量為高。但是近年則只有河水、底泥及魚體的調查，未見更高等生物的調查，無法評估變化及趨勢；國外有從水、底泥、魚及鳥類整體調查分析，能確認生物濃縮現象及其幅度，甚至同時分析包括PCB等的含氯化合物，結果發現PCB對鳥類可能造成較大的危害⁽²⁹⁾，未來監測如利用生物累積效應特性將鳥類、食肉野生動物及人類組織等樣品列入調查採樣目標，並除已禁用有機氯殺蟲劑DDT類為主要調查目標外，PCB及其他仍持續使用中的含氯污染物亦應依其重要性列入監測分析目標，將可以更明確評估整體不易分解含氯有機污染物質對健康、生態及環境的影響。

已禁用有機氯殺蟲劑因禁用已久，目前環境含量已低至接近偵測極限程度，必須取相當大量的樣品才能較準確的定量，未來執行背景調查，必須依各目標物質的預估濃度規劃選擇適切的取樣量及檢測方法，尤其分析低濃度環境樣品中之有機氯殺蟲

劑，極易受到基質干擾效應，易造成誤判及高估檢測數值的結果，除了選擇完全的淨化方法步驟以外，以第二支管柱確認或以質譜儀確認目標物是有必要的，分析過程亦應執行必要的品保品管程序以確保數據的精密度及準確度，才能得到符合監測目的良好品質的數據，在長期監測數據的使用上，尤其需要各筆數據均列有偵測極限、相關的精密度及準確度資料，才能確認彼此的數據結果可比較性而共同處理分析。

雖然禁用有機氯殺蟲劑應繼續監測調查以確實掌握其流佈及濃度變化，相較於其環境含量因禁用持續降低已非常微量，仍使用中農藥則更應加入例行檢測及監測目標，尤其其他使用量大又不易分解的農藥亦應評估，應評估選擇適當的項目做為例行檢測及監測目標。尤其是系統化的長期監測計畫，有助明確掌握污染物質環境濃度及變化，進而分析了解其影響因子，如量化理想甚至可以建立模式精準掌握環境污染物的時空變化，對於尚未發現有問題的污染物質，也可以經由預先儲存長期定點採取的樣品，在有需要時加以分析而不至有無法回溯的問題，參考許多先進國家如美⁽³⁰⁾、日⁽³¹⁾、瑞典⁽³²⁾等早有此類計畫及成果，對政策管理及研究均有價值，因此台灣亦應及早建立系統化的長期環境污染物監測計畫。

誌 謝

本文的完成感謝農委會古德業處長提供著作報告，海洋大學鄭森雄教授、農委會蔡文珊專員及審稿委員惠提精闢修正建議。

參考文獻

1. Liao, L. S. 1984. Practical pesticide handbook. pp.3-4. Taiwan Provincial Government, Taichung, Taiwan.
2. Taiwan Agricultural Chemicals and Toxic Substances Research Institute. 1993. Pesticide Manual. p. 230. Taichung, Taiwan.
3. Taiwan Agrochemical Industry Association. 1982. Domestic manufacturers production and sales of pesticides 1962-1981. pp. 1-351. Taipei, Taiwan.
4. Environmental Protection Administration, Executive Yuan. 1997. Analysis of suitability of pesticide regulations in drinking water management. EPA-86-J102-03-21.
5. Jeng, S. S. and Sun, L. T. 1974. Organochlorine pesticide residues in cultured fishes of Taiwan. Bull. Inst. Zool., Academia Sinica 13: 37-45.
6. Li, G. C. and Lee, Y. S. 1973. Residual levels of some chlorinated hydrocarbon insecticides in the paddy soils of Taiwan. Plant Pro. Bull. (Taiwan, R.O.C.). 15:163-169.
7. Ku, T. Y. 1979. Chlorinated hydrocarbon insecticide

- residues in the agricultural environment of Taiwan. Technical Report. pp. 1-118. Plant Protection Center, Taichung, Taiwan.
8. Li, G. C. and Lee, T. L. 1983. The residue level of chlorinated hydrocarbon insecticides in the soil samples from different localities. *Plant Pro. Bull. (Taiwan, R.O.C.)* 25: 271-279.
 9. Lin, H.T., Wong, S.S. and Li, G.C. 1997. Residual level of chlorinated hydrocarbon insecticides in the field soil of Taiwan. *Plant Prot. Bull. (Taiwan, R.O.C.)* 39: 137-180.
 10. Wang, Y. S., Kao, Y. T. and Chen, Y. L. 1984. Residues of chlorinated hydrocarbon insecticides in Tayuan Industrial Park and the adjunct area. *Plant Pro. Bull.* 22: 11-18.
 11. Environmental Protection Administration, Executive Yuan. 1999. Project report on analysis method validation on accumulative chemicals in river fishes. EPA-88-I502-03-01, pp. 1-79.
 12. Environmental Protection Administration, Executive Yuan. 1999. Residue pesticides analysis method validation on drinking water supply and evaluation of water safety. Technical Report. EPA-88-E3S3-03-01.
 13. Wu, T. C., Lee, J. D., Wang, Y. C. and Chen, Y. L. 1982. Residues of chlorinated hydrocarbon insecticides in sediments of rivers in Taiwan. *J. Chinese. Agri. Chem. Soc.* 20: 1-8.
 14. Environmental Protection Administration, Executive Yuan. 1998. Study on river sediment survey methodology. EPA-87-E3L1-03-02, pp. 1-283.
 15. Environmental Protection Administration, Executive Yuan. 1999. Project report on study of river sediment survey methodology. EPA-88-L103-03-003, pp. 1-283.
 16. Hung, T. C. 1993. Coastal contaminant monitoring: review of mussel watch program in Taiwan. *J. Environ. Prot. Soc.* 16: 60-75.
 17. Su, J. C., Hung, T. C., Lin, Y. S., Chyne, P. C., Jeng, W. L. and Chen, Y. L. 1983. Final report on mussel watch, Taiwan, ROC. *SCOPE/ROC, Academia Sinica* 21: 1-96.
 18. Wang, H. C., Liu, C., Huang, H. J., Chung, P. Y. and Huang, K. H. 1996. Study of fishes in the Chung-Kung Stream: species distribution and organochlorine pesticides residues, *Chem. Ecol.* 12: 115-123.
 19. Huang, H. J. and Liu, C. 1997. Organochlorine pesticide residues in fish and shellfish-Keelung River and coastal area mussel watch program in Taiwan. *Annual Report NIEA. No. 5.* 205-212.
 20. Li, G. C., Wu, L. J. and Flanagan, M. 1983. Residual level of chlorinated hydrocarbon insecticides in the human milk samples from different location of Taiwan. *Plant Pro. Bull. (Taiwan, R.O.C.)* 25: 191-203.
 21. Jeng, S. S. and Sun, L. T. 1984. Organochlorine pesticide residues in cultured fishes of Taiwan and its significance. Special Report. Fisheries Environmental Protection. pp. 83-108. Jeng, S. S. ed. Taiwan Fisheries Society.
 22. Environmental Protection Administration, Executive Yuan. 1997. (86) Environment analysis No.41719 Register, Organochlorine pesticide analysis method-capillary column gas chromatography. NIEA R612.20C.
 23. Stepheson, M. D., Martin, M. and Tjeerdema, R. S. 1995. Long-term trends in DDT, polychlorinated biphenyls, and chlordane in California mussels. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.* 28:443-450.
 24. Sole, M., Porte, C., Pastor, D. and Albaiges, J. 1994. Long-term trends of polychlorinated biphenyls and organochlorinated pesticides in mussels from the western Mediterranean coast. *Chemosphere* 28:897-903.
 25. Picer, M. and Picer, N. 1994. Levels and long-term trends of polychlorinated biphenyls and DDTs in mussels collected from the middle Adriatic coastal waters. *Chemosphere* 29:465-475.
 26. Giesy, J. P., Verbrugge, D. A., Othout, R. A., Bowerman, W. W., Mora, M. A., Jones, P. D., Newsted, J. L., Vandervoort, C., Heaton, S. N., Aulerich, R. J., Bursian, S.J., Ludwig, J. P., Ludwig, M., Dawson, G. A., Kubiak, T. J., Best, D. A. and Tillitt, D. E. 1994. Contamination in fishes from Great Lakes-influenced sections and above dams of three Michigan Rivers.I: Concentrations of organochlorine insecticides, polychlorinated biphenyls, dioxin equivalents and mercury. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.* 27: 202-212.
 27. Newsome, W. H., Andrews, P. and Conacher, B. S. 1993. Total organochlorine content of fish from the Great Lakes. *J. AOAC Inter.* 76: 703-710.
 28. Aly, M. A. Abd-Allah. 1994. Residue levels of organochlorine pollutants in fish from Abu-Quir Bay and Idku Lake, Alexandria, Egypt. *Toxicol. Environ. Chem.* 44: 65-71.
 29. Bernal, J. L., Del Nozal, M. J. and Jimenez, J. J. 1993. Incidence of organochlorine pesticide and PCB residues in an aquatic ecosystem or river Duero in Castile and Leon (Span). *Toxicol. Environ. Chem.* 39: 37-50.
 30. USEPA. 1993. EMAP-Esturies Louisianian Province-1991.
 31. Environment Agency Japan. 1993. Chemicals in the environment. Report on environmental survey and wildlife monitoring of chemicals in F. Y. 1990 and 1991.
 32. Swedish Environmental Protection Agency. 1998. Persistent organic pollutants. ISBN 91-620-1189-8. pp. 1-152.

Dissipation of Organochlorine Insecticide Residues in the Environment of Taiwan, 1973-1999

C.H. WANG* AND C. LIU#

National Institute of Environmental Analysis, Environmental Protection Administration, Executive Yuan, 260, Section 3, Ming-Tsu Rd., Chung Li City, Taoyuan County, Taiwan, R.O.C.

(Received: May 10, 2000; Accepted: August 8, 2000)

ABSTRACT

Organochlorine insecticides were used in Taiwan for agricultural and public health purposes mainly from 1950 to 1974. In this study, various survey and analysis studies on soil, water, sediment and animals from 1973 to 1999 were compared, temporal trends were analyzed, and the significance was discussed.

In 1973, DDT, DDE, DDD, dieldrin, lindane and aldrin were the major organochlorine insecticides found at higher levels in rice paddy soil in Taiwan. In 1981, average total DDTs concentration of surface soil decreased to one-third of the 1973 level. Subsequently in 1994, total DDTs concentration in surface soil again decreased to one-third of the 1981 level. Dieldrin, lindane and aldrin concentrations decreased even faster and were much lower compared to DDT since 1981.

Organochlorine insecticide mean concentrations in river water had reached ppt levels from 1973-1976, but were rarely detected in the 1990s. River sediment concentrations showed a rapid decrease from 1973 to 1976, but although there were variations among different rivers in Taiwan, sediment concentrations of lindane, DDT, DDE and aldrin reached a few ppb and were higher in 1981 compared to 1973-1976 on average. In recent years, total organochlorine insecticide concentration decreased to the ppb level, with most individual insecticide concentrations below 1 ppb.

Shellfish organochlorine pesticide concentrations were slightly higher than sediment, and shellfish DDT, DDE, aldrin, dieldrin concentrations also showed an increase from 1973 to 1983 on average. The mean concentrations of DDT and aldrin were higher than 10 ppb in shellfish in 1983 and decreased to below the ppb level in the 1990s. Fish muscle contained ppb levels of organochlorine insecticides in 1973. In recent years, most of the organochlorine insecticide concentrations in shellfish and fish were less than 1 ppb except DDE. Duck eggs and human milk had been found to contain sub ppm levels of DDT and DDE in the 1970s and 1980s, but there was few recent data available. Although organochlorine insecticide levels in the environment of Taiwan have fallen fast over the last 26 years, DDTs and other organochlorine insecticide residue levels in higher animals should be determined for their bioaccumulation potential through the food chain.

Key words: organochlorine insecticides, residue, dissipation, trend analysis

National Bureau of Controlled Drugs, Department of Health, Executive Yuan