EJ112199700173

植物保護學會會刊 39: 173～180, 1997

有機氯化烴殺蟲劑在臺灣地區農田土壤中之殘留量

林浩潭 翁愫慎 李國欽

臺中縣霧峰鄉臺灣省農業藥物毒物試驗所

(接受日期：民國86年3月27日)

摘 要

林浩潭、翁愫慎、李國欽 1997 有機氯化烴殺蟲劑在臺灣地區農田土壤中之殘留量 植保會刊 39: 173-180.

採取本省204個不同地區農田土壤樣品，以快速蘇式萃取法分析6種有機氯化烴殺蟲劑及二種代謝物含量，檢測不到有機氯化烴殺蟲劑之樣品數爲58，佔總樣品數之28.4%。檢測對象在土壤樣品中出現百分率最高者爲DDE，佔59%；其次依序爲：Lindane(21%)，Dieldrin(19%)，Aldrin(14%)，Heptachlor(4%)，Heptachlor epoxide(3%)及DDT(1%)。表土(0～15公分深)中未檢測出DDT。就平均含量言，除DDE於表土爲5.82 μg/kg，裏土爲3.54 μg/kg外，其餘6種藥劑於土壤中之含量皆低於2 μg/kg。土壤中可檢出樣品大部份分佈於檢測界限至10 μg/kg之範圍。調查結果與1981年之水田土壤調查結果比較，除Aldrin外，其它農藥在土壤中之殘留量皆較前次調查者低。依據土壤中有機氯化烴殺蟲劑之最高含量及作物對土壤中有機氯化烴殺蟲劑之吸收係數，推算出土壤中有機氯化烴殺蟲劑可轉移至作物體中之最高殘留量，與作物中有機氯化烴殺蟲劑之殘留限量比較，結果顯示目前土壤中之殘留量不可能經由食物鏈而危害人體健康。

(關鍵詞：有機氯化烴殺蟲劑、農田土壤、殘留量)

緒 言

有機氯化烴殺蟲劑於1950年引進臺灣使用，但因其殘留期長，且可經生物濃縮作用而由食物鏈進入環境成員中[3,4]，產生毒害症狀，破壞生態平衡[7,8]，因此，本省於1974年禁止使用。本所曾於1973年及1981年分別進行水稻田土壤有機氯化烴殺蟲劑殘留量之調查，發現有下降之趨勢[1,2]；本計畫仿照前二次調查方式，並擴大調查範圍，探討其在土壤中之殘留及消退情形，評估其是否會轉移至作

物體中，間接危害人體健康。

材料與方法

土壤採樣及樣品前處理

1994年8月至12月於本省桃園、新竹、苗栗、臺中、彰化、南投、雲林、嘉義、臺南、高雄、屏東、澎湖等縣，每縣選4～5鄉鎮，每鄉鎮設二採樣點(面積約1公頃之農田)，每採樣點採取表土(0～15公分深)，裏土(15～30公分深)樣品各10 個，各層土壤樣品均勻混合成1個樣品，共計204個樣品。土樣於室溫下風乾，去除雜物後，以木槌擊碎過篩(10mesh,. 2mm)，貯於塑膠盒中以備分析。

土壤中有機氯化烴殺蟲劑分析方法

1. 有機氯化烴殺蟲劑標準劑

有機氯化烴殺蟲劑標準劑爲購自Chem Service Inc. (U.S.A.) 濃度爲100mg/mL 之 Aldrin (Cat. No. F89S)，4-4'-DDT (Cat. No. F92S)，4-4'-DDE (Cat. No. F93S)，Dieldrin (Cat. No. F90S)，Endrin(Cat. No. F98S)，Heptachlor (Cat. No. F100S)，Heptachlor epoxide (Cat. No. F101S)，Lindane (Cat. No. F104S)標準液。

2. 抽取與淨化

稱取10克土壤樣品與1克矽藻土(Celite)，入20ml 圓筒濾紙中，以50ml丙酮與正己烷(1:1 v/v)之混合液，利用蘇氏萃取裝置(TECATOR SOTEC SYSTEM HT 1043 Extraction Unit)萃取有機氯化烴殺蟲劑，萃取程序爲煮沸1小時，迴餾1小時(儀器溫度皆設定爲140℃)；萃取液濃縮至約5mL後，注入淨化管淨化。淨化管以5克矽酸鎂(Florisil)爲主，矽酸鎂先在130℃下活化12小時，上、下各舖以1克無水硫酸鈉，淨化管裝填後先以10ml正己烷沖洗，再將濃縮液移入管內，俟液面進入矽酸鎂層後，以50ml含10%乙醚之正己烷混合液沖洗，可洗出Lindane、Heptachlor、Heptachlorepoxide、Aldrin、DDT及DDE；繼之以含15%乙醚之正己烷混合液50ml沖洗，可洗出Endrin, 及Dieldrin。收取沖洗液，濃縮並以正己烷定量爲5ml，分別取2 μl注入氣液層析儀中，分析有機氯化烴殺蟲劑含量。

3. 使用儀器條件

(1) 儀器名稱：Varian 3400 氣相層析儀。

(2) 層析管柱：DB608 capillary column，內徑530 μm × 30m。

(3) 層析管溫度：依梯度方式進行，起始溫度140℃，維持2分鐘，再以每分鐘10 ℃升溫至240℃，維持5分鐘，而後再以每分鐘5℃升溫至250℃，維持10分鐘。

(4) 檢出器：電子捕獲式檢出器(ECD)，溫度300℃。

(5) 攜帶氣體：氮氣，流速3.9ml/min。

(6) 注入器溫度：250℃。

4. 土壤中有機氯化烴殺蟲劑分析方法之回收率與最低檢測界限

土壤樣品加入定量之有機氯化烴殺蟲劑，經上述分析方法，回收率在60.6%至130%之間；方法最低檢測界限爲依儀器最低檢測界限配製3倍濃度之標準液，加入土樣中，經上述分析方法，重覆分析四次，取檢測值之平均再加上標準偏差之3倍所得；回收率與最低檢測界限示於表一。

結果與討論

8種藥劑中，Heptachlor epoxide 爲Heptachlor之代謝產物，DDE爲DDT之代謝產物，Aldrin在土壤或植物體中可轉

變爲 Dieldrin。表二爲土壤樣品中有機氯化烃殺蟲劑殘留量及可檢出樣品之出現百分率，就平均殘留量而言，表土中殘留量由高而低依序爲：DDE > Aldrin > Lindane > Dieldrin > Endrin = Heptachlor epoxide > Heptachlor，而 DDT 在表土樣品中已偵測不到；裏土中殘留量由高而低依序爲：DDE > Aldrin > Lindane > Dieldrin > Heptachlor > DDT > Endrin > Heptachlor epoxide；除 DDE 之殘留量在表土、裏土分別爲 5.82μg/kg、3.54μg/kg 外，其餘 6 種藥劑皆低於 2μg/kg。

表一、土壤中有機氯化烃殺蟲劑之回收率及最低檢測界限

Table 1. Recoveries and detection limits of chlorinated hydrocarbon insecticides in soil

Insecticides	Fortified conc. (μg/10g soil)	Recovery[1] (%)	Detection limit[2] (μg/kg)
Aldrin	0.5	83.8 ± 6.6	0.15
Dieldrin	0.5	96.0 ± 3.4	0.29
DDE	1.0	92.6 ± 3.7	0.47
DDT	1.0	60.6 ± 4.2	2.20
Endrin	0.5	79.0 ± 3.2	0.50
Heptachlor	0.5	104 ± 6.4	0.15
Heptachlor epoxide	0.5	104 ± 5.5	0.24
Lindane	0.25	130 ± 12	0.14

[1] Mean ± S.D., 4 replicates.

[2] Method detection limit.

表二、土壤中有機氯化烃殺蟲劑殘留量

Table 2. Residual level of chlorinated hydrocarbon insecticides in the soil samples[1]

Insecticides	Surface soil (0-15 cm depth)			Buttom soil (15-30 cm depth)		
	Positive sample(%)	Average (μg/kg)	Range (μg/kg)	Positive sample(%)	Average (μg/kg)	Range (μg/kg)
Aldrin	13	1.88	ND[2]-49.5	14	0.80	ND-19.1
Dieldrin	18	0.30	ND-3.64	19	0.33	ND-5.47
DDE	60	5.82	ND-149	58	3.54	ND-32.6
DDT	0	ND	ND	2	0.06	ND-3.51
Endrin	8	0.12	ND-3.14	2	0.02	ND-1.89
Heptachlor	3	0.10	ND-4.23	4	0.17	ND-7.87
Heptachlor epoxide	5	0.12	ND-4.14	1	0.01	ND-1.41
Lindane	24	1.10	ND-24.9	17	0.43	ND-12.3

[1] Sample no. of surface and bottom soil is 102 individually.

[2] ND = Not Detectable (below detection limit).

204個樣品中，未檢出有機氯化烴殺蟲劑之樣品數爲58，佔總樣品數之28.4%；表土中不同殺蟲劑之出現百分比，由高而低依序爲：DDE(60%) > Lindane(24%) > Dieldrin(18%) > Aldrin(13%) > Endrin(8%) > Heptachlor epoxide(5%) > Heptachlor(3%)；裏土爲：DDE(58%) > Dieldrin(19%) > Lindane(17%) > Aldrin (14%) > Heptachlor(4%) > Endrin = DDT (2%) > Heptachlor epoxide(1%)。

表三及表四爲表土及裏土中有機氯化烴殺蟲劑含量分佈百分比，結果顯示，土壤中可檢出之有機氯化烴殺蟲劑含量大部份分佈於檢測界限至10 μg/kg之範圍內。有機氯化烴殺蟲劑在田間環境中之半衰期(t1/2)示之於表五[6]，半衰期長者，消退速率較慢，易累積於土壤中，反之，半衰期短者，消退速率較快，較不易累積於土壤中；由表五可看出，Endrin，DDT，DDE，Dieldrin之消退速率較慢，半衰期皆大於1000天，而Lindane，Heptachlor，Aldrin等之半衰期短，消退速率較快。

表六爲歷年土壤中有機氯化烴殺蟲劑含量調查結果，比較其中1973年及1981年不同殺蟲劑之平均含量，可得出DDT及DDE不論在表土或裏土樣品中，其含

表三、表土中有機氯化烴殺蟲劑殘留量分佈百分比

Table 3. The distribution percentage(%) of chlorinated hydrocarbon insecticides residues in the surface soil

Range (μg/kg)	Aldrin	DDT	DDE	Dieldrin	Endrin	Heptachlor	Heptachlor epoxide	Lindane
< D.L [1)]	87	100	40	72	92	95	95	76
D.L.-10	5	0	44	18	8	5	5	22
> 10	8	0	16	0	0	0	0	2

1) D.L.= Detection limit. Detection limit of Aldrin, DDT, Dieldrin, Endrin, Heptachlor, Heptachlor epoxide and Lindane are 0.15, 2.20, 0.47, 0.29, 0.50, 0.24, 0.15 and 0.14 μg/kg, respectively.

表四、裏土中有機氯化烴殺蟲劑殘留量分佈百分比

Table 4. The distribution percentage(%) of chlorinated hydrocarbon insecticides residues in the bottom soil

Range (μg/kg)	Aldrin	DDT	DDE	Dieldrin	Endrin	Heptachlor	Heptachlor epoxide	Lindane
<D.L.[1)]	86	98	42	82	98	96	99	83
D.L.-10	11	2	47	18	2	4	1	16
>10	3	0	11	0	0	0	0	1

1) D.L.= Detection limit. Detection limit of Aldrin, DDT, Dieldrin, Endrin, Heptachlor, Heptachlor epoxide and Lindane are 0.15, 2.20, 0.47, 0.29, 0.50, 0.24, 0.15 and 0.14 μg/kg, respectively.

量皆較高，由此可推測出DDT曾經被大量使用；再由1994年之調查資料可看出，二十年後土壤中DDT大部份已代謝成DDE，但由於DDE之半衰期長，消退速率慢，易累積於土壤，以致在土壤中出現百分率及平均含量皆高於其它殺蟲劑。

比較歷年之調查結果顯示，除Aldrin及表土的Lindane外，各農藥在土壤中之含量已下降，減低對環境之衝擊。至於Aldrin及Lindane在表土中之含量高於1981年者，可能由於本次之調查範圍較大所致，或是另有其它原因所造成，尚待探討。

土壤中有機氯化烃殺蟲劑可由吸收作用而轉移至作物體中，人體可能經由食物鏈而間接受害；以表二中土壤中各有機氯化烃殺蟲劑之最高殘留量乘上表七中有機氯化烃殺蟲劑由土壤轉移至作物之最大係數(8)，可推算出土壤中有機氯化烃殺蟲劑可能轉移至作物體中之最高殘留量，示之於表七，Lindane爲微量至0.09mg/kg，Heptachlor爲微量至0.02mg/kg，Aldrin

表五、有機氯化烃殺蟲劑在田間環境中之半衰期

Table 5. The t1/2 of chlorinated hydrocarbon insecticides in the field environment[1)]

	Endrin	DDT	Dieldrin	DDE	Aldrin	Lindane	Heptachlor
$t_{1/2}$(day)	4300	2,000	1,000	1,000	365	400	250

1) Cited from: Augustijn-Beckers *et al.*, 1994.

表六、1973、1981、1994年土壤中有機氯化烃殺蟲劑平均含量

Table 6. Average Residue levels of chlorinated hydrocarbon insecticides in soil found in the year of 1973, 1981 and 1994[1)]

Insecticides	Average residue levels(μg/kg)					
	Surface soil (0-15 cm depth)			Bottom soil (15-30 cm depth)		
	1973	1981	1994	1973	1981	1994
Aldrin	11.3	0.5	1.88	1.6	0.8	0.80
Dieldrin	17.8	0.5	0.30	11.7	1.7	0.33
DDE	20.3	14.9	5.82	7.4	5.3	3.54
DDT	17.1	2.8	ND	2.2	1.5	0.06
Endrin	—2)	ND3)	0.12	—	Trace	0.02
Hepatchlor	1.2	ND	0.10	0.5	0.1	0.17
Heptachlor epoxide	2.1	0.5	0.12	2.1	0.8	0.01
Lindane	11.8	0.7	1.10	4.7	3.1	0.43

1) 112, 136 and 204 samples were analyzed in 1973, 1981 and 1994 respectively. Surface soil from 0-12 cm and bottom soil from 12-24 cm were taken in 1973.

2) Not analyzed.

3) ND = Not Detectable.

爲微量至0.02mg/kg，而DDT，Dieldrin及Endrin屬微量，皆位於表八之作物中最高殘留限量之範圍內(5)，因此，土壤中有機氯化烃殺蟲劑不可能間接經由食物鏈而危害人體健康。

引用文獻

1. 李國欽、李運申 1974 數種有機氯烃類殺蟲藥劑在臺灣水稻田土中之殘留量。植保會刊 15(4): 163-170。
2. 李國欽、李泰林 1983 臺灣地區水稻田土壤中有機氯殺蟲劑含量調查。植保會刊 25: 271-279。
3. 李國欽、吳麗菊、Michael Flanagan

表七、土壤中有機氯化烃殺蟲劑可能轉移至作物之最高殘留量

Table 7. Estimated maximum residue levels of chlorinated hydrocarbon insecticides moved from soil to crops

Insecticides	Maximum residue[1] levels in soil (μg/kg)	Concentration or dilution factor[2] (from soil to crop)	Maximum residue levels in crops[3] (mg/kg)
Aldrin	49.5	0.001-0.396	Trace-0.02
DDT	3.51	0.0003-0.128	Trace
Dieldrin	5.47	0.008-0.481	Trace
Endrin	3.14	0.020	Trace
Heptachlor	7.87	0.02-2.863	Trace-0.02
Lindane	24.9	0.021-3.53	Trace-0.09

[1] Maximum residue levels in soil are come from Table 2.
[2] Cited from Edwards, C.A. 1975, Concentration or dilution factor = amount in plant (fresh weight for plants)/ amount in soil (dry weight for soil).
[3] Maximum residue levels in crops = maximum residue levels in soil × concentration or dilution factor.

表八、作物中有機氯化烃殺蟲劑之容許量

Table 8. The maximum residue limits for chlorinated hydrocarbon insecticides in crops (mg/kg)

Country	Aldrin & Dieldrin	Endrin	DDT & DDE[2]	Heptachlor & Heptachlor epoxide	Lindane
U.S.A.	0.02-0.1	0-0.05	0.05-0.5	0.01-0.2	0.1-3.0
EEC[1]	0.02	0.01-0.1	0.05-0.2	0.01-0.02	0.1-2
United Nation (FAO/WHO)	0.02-0.1	0.02-0.05	0.1	0.01-0.2	0.05-2

[1] European Economic Community.
[2] DDT, TDE, DDE individual or combination.

1983 臺灣地區母乳中有機氯殺蟲劑含量之調查。植保會刊 25: 191- 203。
4. 李俊福 1981 臺灣沿海養殖貝類中有機氯化烴化合物殘留之研究。國立臺灣大學農業化學研究所碩士論文 65 頁。
5. 莊無忌 1995 各國食品和飼料中農藥獸藥殘留限量大全。中國對外經濟貿易社出版 北京 1121 頁。
6. Augustijn-Beckers, P.W.M., Hornsby, A.G., and Wauchope, R.D. 1994. The SCS/ARS/CES pesticide properties database for environmental decision-making. II. additional compounds. Rev. of Environ. Contam. Toxicol. 137:1-29.
7. Dempster, J.P. 1975. Effects of organochlorine insecticides on animal populations. in Organochlorine insecticides: persistent organic pollutants. (F. Moriarty ed.), p.231-247. Academic Press Inc. London.
8. Edwards, C.A. 1975. Persistent pesticides in the environment. CRC Press Inc. U.S. 170 pp.

ABSTRACT

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. 39: 173-180. (Taiwan Agricultural Chemicals and Toxic Substances Research Institute. Wufeng, Taichung, Taiwan, R.O.C.)

Chlorinated hydrocarbon insecticides including : Aldrin, DDT, Dieldrin, Endrin, Heptachlor, and Lindane used in Taiwan since 1950 and had been banned in 1974. Total of 204 soil samples collected from different localities in Taiwan were analyzed. The percentage of not detectable sample is 28.4%. The percentage of positive sample of DDE, Lindane, Dieldrin, Aldrin, Endrin, Heptachlor epoxide, and Heptachlor in surface soil (0-15 cm depth) were: 60%, 24%, 18%, 13%, 8%, 5%, and 3% respectively. The percentage of positive sample of DDE, Dieldrin, Lindane, Aldrin, Heptachlor, Endrin, DDT, and Heptachlor epoxide in bottom soil (15-30 cm depth) were: 58%, 19%, 17%, 14%, 4%, 2%, 2%, and 1% respectively. Most of the detectable residue levels of these pesticides in soil were below 10 μg/kg. DDT was not found in all surface soil. The average residue of DDE in surface soil and in bottom soil is 5.82 μg/kg and 2.54 μg/kg respectively, The rest of other compounds were found below 2 μg/kg. Compared our results with the previous studies carried out in 1973 and 1981, the residual levels of all chlorinated hydrocarbon insecticides were decreased. The maximum residue levels of insecticides in crop via plant uptake were estimated. It appeared that the maximum residue levels of insecticides in crops were below the maximum residue limits set by U.S.A., EEC, and FAO/WHO.

(Key words: chlorinated hydrocarbon insecticides, field soil, residue)