



行政院環境保護署

109年度土壤及地下水污染整治基金補助研究與模場試驗專案

高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查 與整治測試

期末報告(定稿)

主辦單位：  行政院環境保護署
專案執行單位： 國立臺灣大學 / 農業化學系所
專案主持人： 施養信教授
專案執行期間： 109年01月30日起至
109年12月04日止

中華民國 109 年 12 月 印製





高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

專案基本資料表

專案性質	☒ 實驗性質 ☐ 非實驗性質		專案技術編碼	LAB - R - O - N1 - M (如非實驗性質含氯溶劑之生物整治模場為 NLAB-S-R-C1-B，填寫請參考附件1-4)	
專案類別(單選)	☒ 研究型 ☐ 模場型		研究主題	☐ 整治 ☐ 調查 ☒ 其他	
申請機構系所	國立臺灣大學農業化學系				
機構地址	臺北市大安區羅斯福路四段1號				
專案主持人	施養信		職等 / 職稱	教授	
協同主持人			職等 / 職稱		
專案名稱	中文	高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治			
	英文	Soil survey and remediation of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in one highly PBDEs contaminated site			
	關鍵字	土壤、多溴二苯醚、持久性污染物			
執行期程	自民國 109 年 1 月 30 日起 至民國 109 年 12 月 04 日止				
專案主持人	姓名：施養信		E-mail：yhs@ntu.edu.tw		專線：02-3366-9443 手機：0930-105-629
專任助理	姓名：		E-mail：		專線： 手機：
經費分析總表 (僅模場試驗專案需填寫兩年度金額)	專案預估總經費		第一年申請金額	第二年申請金額	編列說明
	1.	人事費用	418,500		(1~5項相加之50%為限)
	2.	貴重儀器使用含維護費	150,000		(與計畫實驗相關)
	3.	消耗性器材與主要費用	99,828		(與計畫主體相關)
	4.	其它研究相關費用	130,627		(含差旅與租賃費用)
	5.	雜項費用	38,045		(1~6項相加之5%為限)
	6.	行政管理費	93,000		(1~5項相加之10%為限)
	7.	自籌款	0		(申請單位自行籌備款項)
	申請補助金額(1~6項)		930,000		總金額：930,000
計畫總金額(1~7項)		930,000		總金額：930,000	

說明：

1. 本署以部份補助為原則，得指定不補助項目，不補助項目應為自籌款項，應自行核銷不得申請。
2. 非實驗性質之專案，若第一項費用編列金額超出比率，須於申請時向本署專簽說明，俾利審查。
3. 補助專案經費編列自申請起經專案核准後，經費編列中各項費用單價與需求只可減少與下修。

專案主持人：_____（簽名及蓋章） 日期：_____

請
蓋
上
申
請



行政院環境保護署土壤及地下水污染整治基金管理會
土壤及地下水污染整治基金補助研究與模場試驗專案

109年度專案成果績效自評表

一、專案基本資料

填表日期：109年10月20日

專案性質	☒ 實驗性質 ☐ 非實驗性質	專案類別	☒ 研究型 ☐ 模場型
研究主題	☐ 整治 ☐ 調查 ☒ 其他		
申請機構系所	國立臺灣大學農業化學系	專案主持人	施養信
專案名稱	高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試		
專案執行期程	☐ 申請階段 ☐ 期中 ☒ 期末		

二、成果績效自評

「計畫總預估數」應與計畫審查核定值相符，請執行單位依實際達成之量化成果填寫於欄位中。

(一) 學術面

項目			目標達成程度	申請 預估數	期中 達成數	期末 達成數	結案後 半年 達成率	備註 (說明未達成原因或學術產出 發表名稱)
A 學術 產出 及 活動	1.國內投稿 (篇數)	(1)論文						109年6月19日舉辦之農業化學年會 「Soil investigation of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in one highly PBDEs contaminated site in Taoyuan」
		(2)研討會論文	1		1			
	2.國外投稿 (篇數)	(1)期刊論文	1		1		初稿撰寫完成，將於規定日期 (明年年中)完成投稿以及發表。	
		(2)研討會論文						
	3.報告 (篇數)	(1)技術報告					已完成	
		(2)研究報告	1		1			
	4.專著(本數)							
	5.辦理學術 會議(場數)	(1)研討/說明會						
		(2)成果發表會						
		(3)論壇						
6.研發改良 技術(項數)	(1)已開發技術							
	(2)技術平台							
B 人才 培育	7.研發人員 (人數)	(1)碩士	1		1		已完成	
		(2)博士						
	8.研究團隊 (個數)	(1)跨領域團隊						
		(2)跨機構團隊						
		(3)形成研究中心						
		(4)形成實驗室						
9.其他指標 (請自行命名)		(請自填)						



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

(二) 產業面

項目		目標達成程度		申請 預估數	期中 達成數	期末 達成數	結案後半年 達成率	備註 (說明未達成原因 或專利、技術轉移 相關詳細資料)
A 智慧財產權	1.專利 (件數)	已 核 准	發明					
			新型/設計					
			合計					
		申 請 中	發明					
			新型/設計					
			合計					
B 研發技術轉移	2.先期技術 成果移轉	件數						
		授權金(仟元)						
		衍 生 利 益 金(仟元)						
	3.技術移轉 (專利)	件數						
		授權金(仟元)						
		衍 生 利 益 金(仟元)						
	4.技術移轉 (應用技術)	件數						
		授權金(仟元)						
		衍 生 利 益 金(仟元)						
	5.可移轉 產業技術	(1)技術(件數)						
		(2)品種/系(件數)						
	C 產學研合作	6.促成合作 研究	件數					
金額(仟元)								
7.促成投資		件數						
		投資金額(仟元)						
8.促成取得 業界科專		件數						
		業界投資金額(仟元)						
9.其他指標 (請自行命名)		(請自填)						



(三) 政策面

項目		目標達成程度	申請預估數	期中達成數	期末達成數	結案後半年達成率	備註 (說明未達成原因 或 其他詳細資料)
A 服務 便民	1.技術服務	次數					
		收入(仟元)					
	2.諮詢服務	次數					
		收入(仟元)					
B 支 援 合 作	3.協助政府制定 (件數)	(1)政策					
		(2)法規					
		(3)規範					
		(4)標準					
D 社 會 效 益	4.獲得認證(件數)						
	5.獲得獎項(件數)						
	6.提升能源效率(%)						
	7.節能減碳效率(%)						
8.其他指標 (請自行命名)		(請自填)					

三、請依學術成就、技術創新、經濟效益、社會影響等方面，評估研究成果對現況或本署之學術或應用價值。(簡述成果所代表之意義、價值、影響或進一步發展之可能性，500字為限)

多溴二苯醚 (PBDEs) 是一種溴化阻燃劑，常用於家用與工業產品中。斯德哥爾摩公約已將多溴二苯醚列為持久性有機污染物，這些化合物不僅對環境有害，近年來更有文獻證實 PBDEs 對人體具有危害性與致癌性。本計畫除了持續監測桃園地區一受 PBDEs 嚴重污染之農田，分析 PBDEs 濃度及分布變化之外，更持續蒐集國內外對於 PBDEs 之毒理、環境分佈及整治技術文獻，並研究開發 PBDEs 整治技術。本團隊已篩選出四株微生物，其中 TY1 表現最佳，但與零價鐵混合處理污染土壤時，未增加降解反而抑制降解。在溶劑清洗試驗中，甲醇對污染土壤具有較好的移除能力，唯該技術因溶劑使用量大且廢液處理成本高；藉由嘗試不同參數之熱處理移除土壤中的污染，結果證實能有效去除土壤中的 DBDE。經評估這些方法之整治效益後，以熱處理作為小區域污染土壤試驗之方法，且有良好去除效果，期望利用此農田開發可行之現地污染土壤移除試驗，以利未來規劃污染農田之整治計畫。目前國內對 DBDE 尚未有相關規範標準，建議相關單位應著手進行規劃，根據本研究調查結果及初步整治試驗，提供政府相關部會對於 DBDE 的危害風險評估與未來的整治方法等需求。此成果除對學術發展有所貢獻外，亦可供其他受污染場址參考，並為訂定 PBDEs 之規範提供參考與建議。

行政院環境保護署
土壤及地下水污染整治基金補助研究與模場試驗專案

審查意見回覆對照表

I



(5) 本專案計畫的執行期限合理，計畫書中對執行的預期成果也已說明。 (6) 本專案計畫的經費編列合理。 (7) 本專案計畫非屬延續性計畫。	(5) 謝謝委員肯定。 (6) 謝謝委員肯定。 (7) 謝謝委員肯定。
委員二 1. 本研究計畫書已納入前期審查意見所要求之各項補充說明，並詳列研究方法、項目與期程、內容完整具體。 2. 研究團隊中尚有專任、兼任助理各一名待聘，建議儘速補齊人力，以利後續研究工作之執行。 3. 研究過程中有關研究人員接觸、處理高濃度多溴二苯醚污染土壤作業之安全防護措施為何，建議蒐集相關資訊，並納入研究案之作業流程(SOP)，維護研究團隊人員安全、健康。	1. 謝謝委員肯定。 2. 謝謝，將盡速聘任助理，以利研究工作之進行。 3. 已於「4.2.2採樣作業」小節中補充說明作業流程中應採取之安全防護措施，也將陸續蒐集相關資訊，補充於未來報告中。
委員三 1. 開發熱處理/溶劑清洗技術，控制土壤PBDE背景資料掌握佳。 2. 現場採樣方法具體，樣品數及工作負荷待釐清，分析步驟明確。 3. PBDE(萃取降解實驗之分析、解析未具體說明方法)。 4. 熱處理及溶劑清洗等方法亦無具體說明。 5. 專任助理(11人)、儀器使用費(檢測機構)25萬，待釐清。	1. 謝謝委員肯定。 2. 視較深層土壤之積水情況，樣品數及工作負荷已補充說明於「4.2土壤採樣」小節中。 3. 已於「4.3.4樣品萃取」、「4.4.1 PBDEs處理方式」以及「4.5儀器分析條件」中說明PBDE降解之分析方法。 4. 已於「4.4.3熱處理法」及「4.4.4溶劑清洗法試驗」兩小節中說明。 5. 專任助理為1人，聘期6個月；儀器使用費已補充說明儀器項目為GC、MS以及ECD，檢測機構所收費用則須走採購程序與議價後才能決定。
委員四 1. 本計畫主持人連續相同主題研究之第三年，調查相對已較完整。 2. 因目標地區非公告之污染場址，題目中之整治屬小規模之測試性質。	1. 謝謝委員肯定。 2. 更正題目為「整治測試」。
委員五 已就本人初審意見詳實回答，無進一步建議。	謝謝委員肯定。



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

委員六

- | | |
|--|---|
| 1. 期許多培育專業土水人才，建議將專任助理調整為2位兼任助理或臨時工協助執行計畫。 | 1. 由於持久性有機污染物分析與整治技術開發需投入較多時間與精力，且需專業訓練才能擔任，故仍需聘僱專任助理；另外將聘請兼任助理與臨時工協助採樣及土壤樣品前處理等工作。 |
| 2. (二)貴儀經費編列未有詳細說明。 | 2. 已補充儀器所屬機構為台大，並說明為 GC、MS 以及 ECD。 |
| 3. (五)雜項費用-報告書印刷建議編列以12,000元為限。 | 3. 已修改該項目之預算金額。 |



行政院環境保護署「土壤及地下水污染整治基金補助研究與模場試驗專案」

☐申請計畫書 ☒期中報告

☐修正計畫書 ☐期末報告

審查意見回復對照表

計畫年度	109 年度	計畫類型	☒ 研究型 ☐ 模場型
計畫類別	☒ 整治 ☐ 調查 ☐ 其它	主持人：施養信	NO：A6
計畫名稱	高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治		
委員審查意見		計畫單位回覆	
委員一		委員一	
1. 研究進度掌握宜展現。		1. 研究進度之展現會再修正，主要研究進度依 P.31 甘特圖進行中。	
2. 整治測試方法，參數設計應具體掌握。		2. 計畫執行過程中將藉由實驗成果逐步掌握具體之操作參數。	
委員二		委員二	
1. 由所附之甘特圖顯示，至 5 月底為止其工作進度僅 25%-30% 左右，大部分工作集中於 6 月-10 月宜加速進行。		1. 將加速進行，由於現地採樣土壤樣品數較多，風乾、磨碎及濃度分析較為耗時；此外微生物之篩選、培養及降解試驗亦需耗費較長時間。	
2. 本研究採樣數量很多，值得肯定。目前初步得到之檢測數據很豐碩。		2. 謝謝委員。	
3. 報告之整理詳細實且完整，值得肯定。		3. 謝謝委員。	
4. 未提供經費動支情形。		4. 目前支出數為 289,192 元。	
委員三		委員三	
1. P.3、P.48 宜探討所使用微生物技術與還原鐵技術之適用環境。		1. 已補充於 P.3 及 P.50。本計畫所篩出之多溴二苯醚降解菌屬於好氧微生物，實務上亦適合施用於暴露在空氣中且污染濃度較高之表層土壤。另還原鐵施用於表土時，可以覆水方式降低其氧化速度，或藉由少量多次添加來確保其處理污染物之效能。	
2. P.20、21 圖中文字不清楚，宜予以重新繪製。		2. 已更新清楚圖表。	
3. P.23、34 宜解析 PBDEs 來源，並予以源頭管制。		3. 本場址之污染源是由於旁邊工廠過去使用 PBDEs，而其廢氣出風口正對本場址所致。4 年前經政府部會會議，已請該工廠停用 PBDEs。	



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

4. P.29 宜評析零價鐵去除 PBDEs 受干擾情形，以利規劃前處理措施。 5. P.46 熱處理成效佳，宜列明 PBDEs 有效破壞溫度與經濟效益分析。	4. 主要零價鐵易氧化，於去年報告中有提及：較高的添加水量可以降低其氧化速率，因此於現地施用時建議可以覆水並少量多批添加方式進行。 5. 目前結果顯示，有效破壞溫度為 400°C 以上，400°C 以上之熱處理有完全破壞土壤中 DBDE 之可能性。經濟效益將等待全部熱處理參數測試完後會分析。
委員四 1. P.31 請確認進度查核表※符號，與文字敘述一致性。 2. 請修正內文中提到多溴二苯醚 (polybrominated diphenylethers, PBDEs) 及十溴二苯醚(decabro-minated diphenyl ether, DBDE)之文字敘述一致性。例如 P.42 文字敘述為 DBDE，但是對應圖 5-12 至圖 5-20 之圖例說明卻是 PBDE；或是 P.29 章節 4.4 標題為「PBDEs」處理方式，但是次標題 4.4.1 又變為「DBDE」，內文又改為以 GC-MS 進行「PBDEs」分析。 3. 本計畫研究 PBDEs 調查及整治技術測試為前瞻性研究，肯定研究團隊投入，循序漸進先掌握基礎資訊，以供未來政策制定及實場應用。	委員四 1. 已修正。 2. 已修正。 3. 謝謝委員。
委員五 1. 本計畫今年將繼續監測桃園地區一受 PBDEs 嚴重污染之農田，並開發可能之污染整治技術。 2. 本年度計畫將探討熱處理及溶劑清洗法對移除污染土壤中 PBDEs 的效果。 3. 本年度採樣所得之分析結果顯示 DBDE 濃度層有下降的趨勢，建議補充說明土壤質地對此趨勢的影響。	委員五 1. 謝謝委員。 2. 謝謝委員。 3. 現地土壤之質地為砂壤土在 P. 47；另外也引用文章說明：濃度逐年下降可能是由於雨水挾帶吸附有



4. 在熱處理試驗中，說明溫度 300°C 以上之熱處理能夠有效去除土壤中 DBDE，建議補充說明此溫度對於土壤中有機物成分的影響。 5. 今年由現地土壤中篩出一株具有 DBDE 降解潛力的微生物 TY1，建議針對 TY1 進行更完整的 rDNA 定序與鑑定分析。	DBDE 之土壤細小顆粒向下移動所致(Chou et al., 2019)。 4. 將送樣分析，進行溫度對土壤中有機物影響之分析，並於期末報告中展現。 5. TY1 之 rDNA 定序與鑑定分析將附於期末報告中。
委員六 1. P.32 請將環保署於 102 年進行污染源查證之空氣中多溴二苯醚濃度之數據資料補充於報告書中。 2. 表 5-4 高污染農田場址採樣紀錄表，請說明深度與表 5-3 採樣規劃表不同之原因。 3. 目前有多項整治技術可去除多溴二苯醚，請說明其後續衍生之副產物為何？	委員六 1. 已將數據資料補充於 P.33。 2. 已修正。 3. 實驗室先前探討還原鐵處理之副產物為低溴數二苯醚(Shih and Tai, 2010; Peng et al., 2013)，而其他降解技術之副產物分析中，將於期末報告中展現。



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

行政院環境保護署「土壤及地下水污染整治基金補助研究與模場試驗專案」

☐申請計畫書
 ☐期中報告

☐修正計畫書
 ☒期末報告

審查意見回復對照表

計畫年度	109 年度	計畫類型	☒ 研究型 ☐ 模場型
計畫類別	☐ 整治 ☐ 調查 ☒ 其它	主持人：施養信 NO：A6	
計畫名稱	高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治		
委員審查意見		計畫單位回覆	
委員一 1. 分析品質管制結果宜請呈現。 2. 不同區塊/深度之 DBDE 濃度變化趨勢具差異性(表 5-11、表 5-12)；研究指出有向土壤深處移動之情形，建議解析是否亦有水平傳輸線向(若雨水淋洗)。 3. 熱處理適用條件請評析。		1. 已補充方法偵測極限(MDL)、儀器偵測極限(IDL)、添加回收率、空白試驗測值及實驗區域定期擦試測試等品質管制結果於 P.39-40。 2. 謝謝委員建議，不同區塊/深度之區域中 DBDE 的濃度具差異性，由於現地土壤質地不均質性可能造成污染物分布差異。而因雨 DBDE 容易隨積水或吸附於土壤細小顆粒以及有機質，而隨水移動(Cheng et al., 2014; Chou et al., 2019)。故現地可能因雨水淋洗作用導致該污染物有向下移動擴散的趨勢；另外，該農田曾為水田應有耕犁層存在，使得污染物也可能在該土層產生水平傳輸的現象，補充於 P.55。 3. 現地污染土壤經過不同溫度下，不同持溫時間之熱處理後，有效破壞溫度為 300°C 以上，而且 450°C 以上之熱處理可以完全破壞土壤中的 DBDE，其移除率介於 79.4% 及 98.6% 之間。當以 10°C/min 之升溫速率加熱至 450°C 進行 2 小時之熱處理，DBDE 移除率高達 100%。	
委員二 1. 本計畫僅就單一之化學物質做研究多年，宜有進入實場運作之規劃，目前看不出有進一步作法。		1. 謝謝委員建議，後學也持續向土基會溝通，希望可以提模場試驗實場計畫，但 DBDE 非土污法列管污染物，	



2. 研作在實驗室之裝置，僅有些燒瓶之圖片，沒有架設相關之設備，不知溫度是如何控制。 3. 所列之 KPI，有多項如研討會論文(未交代什麼研討會、舉辦日期)，另期刊論文、研究報告，均未完成投稿，僅說明撰寫中，初稿已完成等，目前尚未達成。 4. 甘特圖為預定之期程，請補充實際完成之工作期程，另經費報支如何，並未說明。 5. 本研究方法宜考慮其耗能程度，經濟效益分析。	所以該農地也非公告之污染場址，依土基會計畫申請規定無法著手進行全面實場運作規劃，僅能透過調查該污染濃度，並初步進行小規模整治測試，逐步解決問題與人民的困難。另外，截至今年為止，土基會專案僅補助 3 年進行濃度監測，而這 1~2 年才開始相關整治研究試驗。 2. 有關圖片呈現有機溶劑清洗試驗，為配合現地施用，於常溫(25±3°C)下進行之試驗，該試驗並無架設溫控設備。 3. 謝謝委員提醒，研討會論文發表時間為 109 年 6 月 19 日舉辦之農業化學年會，已修正。另依據「109 年度土壤及地下水污染整治基金補助研究與模場試驗專案」相關規定，期刊論文需於計畫結束後半年內(即 110 年 6 月 4 日)完成投稿。 4. 謝謝委員提醒，已補充實際完成之工作期程，並說明經費報支情形，補充於 P.31-32。 5. 謝謝委員建議，已補充熱處理支耗能程度，與其他研究方法之經濟效益分析，補充於 P.70-71。
委員三 1. 原期中審查意見 5：尚未列明 PBDEs 有效破壞溫度與經濟效益分析，宜再補充相關資料。 2. P.31：宜列明工作項目完成百分比，以利查核計畫完成情形。 3. P.34：資料為八年以前數據宜予以更新。	1. 謝謝委員提醒，已補充 PBDEs 有效破壞溫度與其他研究方法之經濟效益分析等相關資料，補充於 P.70-71。 2. 謝謝委員提醒，已補充列明工作項目完成百分比，以利計畫查核，補充於 P.32。 3. 根據化學局近年桃園地區進口使用 DBDE 工廠的資料，這些工廠已停購，故 103 至 109 年期間，不再採購



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

4. P.50-53：前幾年(2016 -2019 土壤中 30- 60 cm 處 DBDE 濃度較低，但今年此處濃度較高，宜分析原因。 5. P.58：微生物合零價鐵對 DBDE 處理效率遠大於單獨使用微生物或零價鐵，宜分析原因。 6. P.59：使用各種溶劑對微生物生長之影響，應予以列明。 7. P.63：高溫(450°C)是否已對土壤結構產生破壞，應予以列明。另宜分析高溫處理下，分解 DBDE 所產生中間產物。	進口 DBDE，故無相關數據更新資料可採用。 4. 謝謝委員建議，已補充說明該特定區域中的 DBDE 濃度持續升高，可能是由於土壤經過雨水淋洗作用導致淺層污染物有向下移動擴散的趨勢，DBDE 容易隨積水或吸附於土壤細小顆粒以及有機質而隨水移動(Cheng et al., 2014; Chou et al., 2019)。 5. 實驗發現零價鐵與微生物混合處理導致多溴二苯醚降解速率略微下降之現象，可能由於實驗中土壤溶液因浸水呈還原態，較適合零價鐵還原多溴二苯醚；而現地篩選出的微生物為好氧菌，在缺氧的情況下難以生存，同時亦會去消耗零價鐵供應的電子，從而導致抑制降解的現象發生，造成零價鐵與微生物混合處理多溴二苯醚時會些微降低移除速率。 6. 謝謝委員建議，已補充說明使用各種溶劑會使土壤產生脫水的現象，間接造成微生物無法存活之影響，補充於 P.60。 7. 謝謝委員提醒，已補充說明 450°C 的高溫熱處理，造成土壤有機態碳的分解，也對土壤結構產生破壞。另外，在高溫處理下，比對所購買之低溴數及中間產物等標準品，但 DBDE 降解之相關中間產物濃度皆低於可偵測濃度，補充於 P.65-66。
委員四 1. 成果績效自評表中，有一篇國外學術投稿，說明尚撰寫中，請持續辦理。 2. P.31 進度查核表請補充文字說明。	1. 謝謝委員提醒。 2. 謝謝委員建議，已補充文字說明進度



3. 期中報告審查意見提到，內文提到多溴二苯醚(polybrominated diphenylethers, PBDEs)及十溴二苯醚(decabrominated diphenyl ether, DBDE)之文字敘述請修正為一致，目前仍未修正。例如 P.29 章節 4.4 標題為「PBDEs」處理方式，但是次標題 4.4.1 又變為「DBDE」，內文又改為以 GC-MS 進行「PBDEs」分析。	查核表於 P.31。 3. 謝謝委員提醒，已將內文多溴二苯醚(PBDEs)及十溴二苯醚(DBDE)之文字敘述修正一致。
委員五 1. 建議評析國內 PBDE 污染的可能來源。以做為評估未來防止相關污染的作法。(例如，工廠排風口處附近的污染偏高，如何改善空污設備) 2. 在熱處理試驗中，說明溫度 300°C 以上之熱處理能夠有效去除土壤中 DBDE，建議補充說明此溫度對於土壤中有機物成分的影響。 3. 四株微生物降解實驗中，部分菌種在四天後(圖 5-32~5-34)污染物有上升的趨勢，建議補充說明。	1. 謝謝委員建議，本場址之污染源是由於旁邊工廠過去使用 DBDE，而其出風口正對本場址所致。4 年前經政府經濟部工業局、農業委員會及環境保護署跨部會會議，已請該工廠停用 DBDE。目前，DBDE 在各國已禁用，國內也無 DBDE 大量進口，只有之前有購置之工廠有大量洩露之可能性。建議工廠排風口處應設置污染監控設備，並使用相關吸附裝置過濾排放之氣體，以避免造成空污，補充於 P.35。 2. 謝謝委員提醒，已補充說明高溫熱處理能夠有效去除土壤中 DBDE，同時也會造成土壤有機態碳的分解，我們的試驗結果發現，於 300°C、350°C、400°C 及 450°C 的熱處理分別造成 31%、56%、78% 及 89% 的土壤有機態碳的分解，補充於 P.65-66。 3. 謝謝委員建議，已補充說明微生物降解實驗中，部分菌種(TY3 與 TY4)在四天後，污染物有回升的趨勢，可能是由於土壤不均質與回收率變異，未來將持續改善，補充於 P.57。



- | | |
|--|--|
| <p>4. 本研究所篩選出四株微生物，以 TY1 表現最佳，然而微生物(TY1)與零價鐵混合處理污染土壤時，未增加降解反而抑制降解，未來如何克服微生物結合零價鐵去除 DBDE 試驗的問題。</p> | <p>4. 零價鐵與微生物混合處理導致多溴二苯醚降解速率略微下降之現象，可能由於實驗中土壤溶液因浸水呈還原態，較適合零價鐵還原多溴二苯醚；而現地篩選出的微生物為好氧菌，在缺氧的情況下難以生存，同時亦會去消耗零價鐵供應的電子，從而導致抑制降解的現象發生。預計將以較低劑量還原鐵處理污染土壤，而針對污染濃度較高之土壤區塊再施用較高劑量還原鐵，並將還原鐵以少量多次之方式，添加於污染場址之土壤後，進行全區覆水，再以翻土機進場翻土混合，試圖弭補以微生物結合零價鐵去除 DBDE 時所衍生的問題，補充於 P.60。</p> |
| <p>5. 在不同溶劑清洗試驗中，雖然甲醇對污染土壤具有較好的移除能力，但溶劑使用量及後續殘留甲醇可能造成的問題，建議應加以考量未來實場應用時的因應的方法。</p> | <p>5. 謝謝委員提醒，已在 P.62 補充說明，溶劑清洗試驗中，甲醇使用量大及後續殘留甲醇可能造成土壤生態不良影響的問題。</p> |
| <p>6. 實驗結果顯示熱處理能有效去除土壤中的 DBDE。然而，增加升溫速率似乎有降低去除率的現象，建議補充說明。</p> | <p>6. 謝謝委員建議，已補充說明有關升溫速率對熱處理的影響，之前的研究報導指出快速升溫條件會限制脫溴反應發生(Grause et al., 2011)，補充於 P.67。</p> |
| <p>7. 根據本研究的結果，建議補充說明規範 PBDEs 之政策訂定提供參考與建議。</p> | <p>7. 謝謝委員建議，由於斯德哥爾摩公約已將多個多溴二苯醚列為持久性污染物(POPs)，更在 106 年 5 月將 DBDE 列入並禁用。此些化合物不僅對環境有害，近年來有更多文獻證實 PBDEs 對人體等具有危害性與致癌性。但目前國內對環境中 DBDE 尚未有相關規範標準，故建議國內相關單位應著手進行規劃。有鑒於近年來的本研究報告</p> |



	結果與國際間的重視程度，對於PBDEs的持續監控及整治有其迫切性及必要性。未來除了需要持續監控此高污染場址土壤之污染濃度以外，也需持續研究發展更有效之整治技術，並研討規劃如何應用優化技術於實際現地之整治，補充於P.72。
--	---



中文摘要

多溴二苯醚 (polybrominated diphenylethers, PBDEs) 是一種溴化阻燃劑，常用於家用與工業產品中。然而斯德哥爾摩公約已將 PBDEs 列為持久性有機污染物 (persistent organic pollutants, POPs)，這些化合物不僅對環境有害，近年來更有許多文獻證實 PBDEs 對人體等具有危害性與致癌性。根據 102 年農委會委託本實驗室之計畫成果發現，在我國桃園地區部分農作物中檢測出 PBDEs 之污染，並在部分使用十溴二苯醚 (decabrominated diphenyl ether, DBDE) 之工廠附近土壤進行調查後檢測出 PBDEs。根據本實驗室近年之農作物吸收污染物的試驗中發現 PBDEs 可能會藉由根部吸收方式傳輸至食用部位，PBDEs 對土壤的污染將會透過植物吸收累積而對國人健康造成危害。先前對桃園地區高濃度 PBDEs 污染土壤的調查顯示該污染有向下移動之趨勢，且工廠周圍有國小、農田以及住家等，此污染將影響人民生活與食物安全。

本計畫延續去年結果持續監測桃園地區高污染場址中土壤 PBDEs 濃度變化，以及利用該污染場址之現地土壤開發可能之污染整治技術。目前已完成二批次(2月及7月)之高濃度 PBDEs 污染場址採樣，包含表土 0 公分、0-15 公分、15-30 公分以及 30-60 公分深度之土壤，共 72 件樣品之前處理與濃度分析。分析結果顯示，土壤中 PBDEs 污染仍以 DBDE 為主，表土與整體污染濃度與前幾年相比有下降情形，而污染濃度分布向深處土壤層移動的趨勢卻也更加明顯，甚至有些區塊 30-60 公分深處土壤之污染程度較其表土更高。在微生物方面，本團隊已自今年採樣土壤中篩選出四株菌，其中 TY1 表現最佳，經過一天便移除一半以上的 DBDE，4 天共移除約 81% 之 DBDE。另外，單獨加入零價鐵時能較有效地移除 DBDE，然而微生物 (TY1) 與零價鐵混合處理污染土壤時，反而產生抑制降解 DBDE 的現象。在溶劑清洗試驗中，結果發現甲醇具有較好的移除污染土壤中 DBD 之能力，唯該技術因清洗劑使用量大且廢液處理成本較高。最後藉由嘗試不同參數之熱處理移除污染土壤中之 PBDEs，結果顯示 300°C 至 450°C 熱處理 10 分鐘以上均可使污染土壤中的 DBDE 移除率達到 79% 以上，其中以 450°C 加熱 30 分鐘之處理達到了 91.3% 的移除率，證實熱處理能有效去除土壤中 DBDE。最後評估零價鐵結合微生物、溶劑清洗、熱處理等方法之整治效益後，以熱處理作為進行小區域污染土壤試驗之方法，已有良好去除效果，期望利用此農田的污染土壤開發可行之現地土壤整治技術，以促進該農田土壤之再生使用。透過本計畫，監測污染農田土壤中多溴二苯醚含量及分佈，同時開發可行之現地土壤污染移除試驗，以利未來污染農田之整治規劃，並提供規範 PBDEs 相關政策訂定之參考與建議。



英文摘要

Polybrominated diphenylethers (PBDEs) are one kind of brominated flame retardants, which were usually added to many household and industrial products. However, some PBDEs were listed as persistent organic pollutants (POPs) in the Stockholm Convention. Besides, PBDEs not only polluted the environment but also were confirmed hazardous and even carcinogenic to the human beings by more and more research in recent years. According to the results of the year-102 Council of Agriculture project performed by our lab, it was found that some crops in Taoyuan area were contaminated with PBDEs. PBDEs were detected in the soil near the plant using decabrominated diphenyl ether (DBDE). Based on our recent studies regarding transportation of PBDEs by plant root to edible parts, they have shown the potential uptake route of PBDEs to edible parts of plants, which could threaten human health. Our previous investigations indicated one site with high concentrations of PBDEs and the pollution has a downward trend. Moreover, the contaminated plant is surrounded by school, farmland and houses, which will affect people's lives and food safety.

In this project, the investigation is continued for the monitoring of PBDEs in the main contaminated farmland. Two batches (in February and July) of soil samples were all collected and analyzed. For the temporal and spatial surveys of the main contaminated farm, we analyzed depths 0 cm, 0-15 cm, 15-30 cm and 30-60 cm soils, totally 72 samples for their DBDE concentrations and found a decreasing trend from 2016 to this year, and still mainly DBDE contaminated. Furthermore, the depth distribution obviously showed that PBDEs have leached toward deeper soil. In some areas of the farmland, higher DBDE concentrations were even found in depth 15-30 cm and 30-60 cm than in depth 0 cm and 0-15 cm. In terms of microorganisms, we screened four microorganisms with PBDEs degradation potential from this highly contaminated soil. Among them, strain TY1 has a better removal efficiency of 81% of DBDE in four days with the rate constant of 0.269 day^{-1} . In other aspect, although zero-valent iron (ZVI) can effectively remove DBDE. The degradation ability of PBDEs was slightly reduced when ZVI was combined with strain TY1 in contaminated soil. In the soil washing test, it was found that methanol has a better ability to remove DBDE in contaminated soil. However, this method needs a high processing cost. The lab-scale thermal treatments were carried out under the temperature between 300°C to 450°C . The result shows that the removal efficiencies of DBDE in contaminated farmland soil can reach more than 79% after 10



to 30 minutes thermal treatment, and 91.3% removal efficiency was reached after 30 minutes under 450°C, indicating that thermal treatment is effective to remove DBDE. After evaluating some remediation methods including microbial degradation with zerovalent iron particles, soil washing technique and thermal treatment, we recommend that thermal treatment was the best technique to remove DBDE and has been applied in a small area test of this contaminated site. The good performance of PBDE removal was found in this test. Through this project, we monitored the content of PBDEs in contaminated farmland soils, developed feasible remediation methods for the future remediation of PBDEs in soils.



目錄

中文摘要.....	I
英文摘要.....	II
目錄	IV
圖目錄.....	VI
表目錄.....	VIII
一、前言.....	1
二、研究目的.....	3
三、文獻探討.....	4
3.1 多溴二苯醚相關資料與法規.....	4
3.2 國內 PBDEs 分布情形	6
3.3 國外 PBDEs 分布情形	9
3.4 PBDEs 於土壤的濃度分布及污染源	13
3.4.1 工廠之污染	13
3.4.2 非工廠區域之污染	14
3.5 PBDEs 處理方式	15
3.5.1 熱處理	15
3.5.2 溶劑清洗法處理	17
3.5.3 微生物降解	18
3.5.4 零價鐵降解	18
3.5.5 植物整治	19
3.6 我國桃園區 PBDEs 高污染場址之污染現況	19
四、研究方法與過程.....	23
4.1 實驗規劃.....	23
4.2 採樣位置與劃分.....	23
4.2.1 採樣前置作業準備	23
4.2.2 採樣作業	23
4.2.3 樣品保存	25
4.3 分析方法	25
4.3.1 擦拭試驗(Wipe tests).....	26
4.3.2 樣品清洗	26
4.3.3 樣品預處理	26
4.3.4 樣品萃取	26
4.3.5 空白測試.....	27
4.3.6 儀器分析條件	27
4.3.7 品質管制	28
4.4 處理方式.....	29



目錄

4.4.1 DBDE 萃取與分析方法	29
4.4.2 零價鐵與微生物降解 DBDE 試驗	29
4.4.3 熱處理法	29
4.4.4 溶劑清洗法試驗	30
4.4.5 小區域模場試驗	30
4.5 預定之期程及經費報支情形	31
五、結果與討論	33
5.1 執行進度	33
5.2 高污染潛勢土壤調查	33
5.3 高污染農地調查分析	35
5.4 分析品質管制結果	39
5.5 高濃度污染場址旁農田土壤採樣與 PBDEs 濃度分析	40
5.6 DBDE 現地污染土壤試驗	55
5.6.1 土壤性質分析	55
5.6.2 零價鐵與微生物降解 DBDE 試驗	55
5.6.2.1 篩選微生物處理 DBDE 試驗	55
5.6.2.2 微生物結合零價鐵去除 DBDE 試驗	59
5.6.3 溶劑清洗法試驗	60
5.6.3.1 不同溶劑與清洗時間之 DBDE 去除試驗	60
5.6.4 熱處理法	62
5.6.4.1 不同溫度與持溫時間熱處理試驗	62
5.6.4.2 不同升溫速率	67
5.6.4.3 不同加熱時間	68
5.6.4.4 不同污染土壤量	68
5.6.5 小區域污染土壤試驗	69
5.6.6 經濟效益評估	70
5.7 結論與建議	71
六、參考文獻	73
附表一 由現地土壤篩選出之四種菌株 16S rDNA 定序及比對結果	80



圖目錄

圖 3-1 PBDE 分子結構式	6
圖 3-2 民國 100-102 年(a)、104-106 年(b)以及 105-107 年(c)間調查國內河川底泥 PBDEs 總量平均濃度分布；105-107 年間河川環境魚體樣本中 PBDEs 總量濃度分布(d) (李俊璋, 2017)。	8
圖 3-3 常見污染物的熱處理溫度(Zhao et al., 2019).....	17
圖 3-4 105 年桃園地區高污染場址土壤 PBDE 濃度(mg/kg).....	20
圖 3-5 106 年桃園地區高污染場址土壤 BDE-209 濃度(mg/kg).....	21
圖 3-6 107 年桃園地區高污染場址土壤 PBDE 濃度(mg/kg).....	21
圖 3-7 108 年桃園地區高污染場址土壤 PBDE 濃度(mg/kg).....	22
圖 3-8 比較 105 年至 108 年四年間 DBDE 濃度變化(mg/kg)	22
圖 4-1 O 祿工廠出風口處農田衛星圖與九宮格採樣示意圖	25
圖 5-1 O 祿附近高濃度污染周界衛星圖，圈選處為採樣地點	41
圖 5-2 O 祿工廠出風口處農田現地採樣之照片	41
圖 5-3 109 年度 2 月 O 祿-1 土壤不同深度之 DBDE 濃度測值(mg/kg)	43
圖 5-4 109 年度 2 月 O 祿-2 土壤不同深度之 DBDE 濃度測值(mg/kg)	43
圖 5-5 109 年度 2 月 O 祿-3 土壤不同深度之 DBDE 濃度測值(mg/kg)	44
圖 5-6 109 年度 2 月 O 祿-4 土壤不同深度之 DBDE 濃度測值(mg/kg)	44
圖 5-7 109 年度 2 月 O 祿-5 土壤不同深度之 DBDE 濃度測值(mg/kg)	44
圖 5-8 109 年度 2 月 O 祿-6 土壤不同深度之 DBDE 濃度測值(mg/kg)	45
圖 5-9 109 年度 2 月 O 祿-7 土壤不同深度之 DBDE 濃度測值(mg/kg)	45
圖 5-10 109 年度 2 月 O 祿-8 土壤不同深度之 DBDE 濃度測值(mg/kg) ...	45
圖 5-11 109 年度 2 月 O 祿-9 土壤不同深度之 DBDE 濃度測值(mg/kg)....	46
圖 5-12 109 年度 7 月 O 祿-1 土壤不同深度之 DBDE 濃度測值(mg/kg) ...	47
圖 5-13 109 年度 7 月 O 祿-2 土壤不同深度之 DBDE 濃度測值(mg/kg) ...	48
圖 5-14 109 年度 7 月 O 祿-3 土壤不同深度之 DBDE 濃度測值(mg/kg) ...	48
圖 5-15 109 年度 7 月 O 祿-4 土壤不同深度之 DBDE 濃度測值(mg/kg) ...	48
圖 5-16 109 年度 7 月 O 祿-5 土壤不同深度之 DBDE 濃度測值(mg/kg) ...	49
圖 5-17 109 年度 7 月 O 祿-6 土壤不同深度之 DBDE 濃度測值(mg/kg) ...	49
圖 5-18 109 年度 7 月 O 祿-7 土壤不同深度之 DBDE 濃度測值(mg/kg) ...	49
圖 5-19 109 年度 7 月 O 祿-8 土壤不同深度之 DBDE 濃度測值(mg/kg) ...	50
圖 5-20 109 年度 7 月 O 祿-9 土壤不同深度之 DBDE 濃度測值(mg/kg) ...	50
圖 5-21 105-109 年 O 祿-1 號區不同深度土壤之 DBDE 污染濃度變化.....	52
圖 5-22 105-109 年 O 祿-2 號區不同深度土壤之 DBDE 污染濃度變化.....	52
圖 5-23 105-109 年 O 祿-3 號區不同深度土壤之 DBDE 污染濃度變化.....	52
圖 5-24 105-109 年 O 祿-4 號區不同深度土壤之 DBDE 污染濃度變化.....	53
圖 5-25 105-109 年 O 祿-5 號區不同深度土壤之 DBDE 污染濃度變化.....	53



圖目錄

圖 5-26	105-109 年 O 祿-6 號區不同深度土壤之 DBDE 污染濃度變化.....	53
圖 5-27	105-109 年 O 祿-7 號區不同深度土壤之 DBDE 污染濃度變化.....	54
圖 5-28	105-109 年 O 祿-8 號區不同深度土壤之 DBDE 污染濃度變化.....	54
圖 5-29	105-109 年 O 祿-9 號區不同深度土壤之 DBDE 污染濃度變化.....	54
圖 5-30	由現地土壤篩選出之菌株，四區畫線於 DBDE 固態培養基上之菌株型態與生長情形.....	56
圖 5-31	菌株 TY1 處理 1 ppm 十溴二苯醚濃度變化	57
圖 5-32	菌株 TY2 處理 1 ppm 十溴二苯醚濃度變化	57
圖 5-33	菌株 TY3 處理 1 ppm 十溴二苯醚濃度變化	58
圖 5-34	菌株 TY4 處理 1 ppm 十溴二苯醚濃度變化	58
圖 5-35	微生物 TY1 結合零價鐵(ZVI)去除十溴二苯醚試驗，風乾污染土壤採樣自現地 6 號區 0 公分 DBDE 濃度為 0.871ppm	59
圖 5-36	甲醇 (MeOH)、乙醇 (EtOH)、MeOH/EtOH (1:1)、Hexane/Acetone (1:1) 等溶劑之清洗試驗	61
圖 5-37	使用甲醇 (MeOH)、乙醇 (EtOH)、MeOH/EtOH (1:1)、Hexane/Acetone (1:1) 等溶劑對污染土壤進行溶劑清洗試驗	61
圖 5-38	使用甲醇 (MeOH) 溶劑進行不同清洗時間條件下，對污染土壤進行溶劑清洗試驗.....	62
圖 5-39	300°C下不同持溫時間對污染土壤中 DBDE 之移除效果.....	63
圖 5-40	350°C下不同持溫時間對污染土壤中 DBDE 之移除效果.....	64
圖 5-41	400°C下不同持溫時間對污染土壤中 DBDE 之移除效果.....	64
圖 5-42	450°C下不同持溫時間對污染土壤中 DBDE 之移除效果.....	64
圖 5-43	不同溫度、持溫時間及升溫速率對污染土壤中 DBDE 之移除效果	67
圖 5-44	以 10°C/min 之升溫速率加熱至 450°C時，不同持溫時間對污染土壤中 DBDE 之移除效果	68



表目錄

表 3-1 PBDE 物理性質(Watanabe,1989 and WHO,1994).....	5
表 3-2 國內外相關法規進程	6
表 3-3 台灣近年 PBDEs 使用量(陳怡伶等人, 2013).....	7
表 4-1 採樣規劃表	24
表 4-2 採樣紀錄表	25
表 4-3 研究進度及預期完成之工作項目(甘特圖)	32
表 5-1 2012 年農委會檢測多溴聯苯醚含量較高農作物檢驗結果.....	34
表 5-2 2014 年受環保署委託計畫中多溴聯苯醚空氣品質監測結果(陳怡伶, 2014)	34
表 5-3 近年進口較大量 DBDE 之工廠列表.....	35
表 5-4 109 年 2 月高污染農田採樣規畫表.....	36
表 5-5 109 年 7 月高污染農田採樣規畫表.....	37
表 5-6 109 年 2 月高污染農田場址採樣記錄表.....	38
表 5-7 109 年 7 月高污染農田場址採樣記錄表.....	39
表 5-8 方法偵測極限、儀器偵測極限、添加回收率與空白試驗測值	40
表 5-9 多溴二苯醚於實驗區域定期擦試測試	40
表 5-10 篩選土壤委外檢測結果比較	40
表 5-11 109 年度 2 月 O 祿旁污染地九宮格分析不同深度之 DBDE 濃度.....	42
表 5-12 109 年度 7 月 O 祿旁污染地九宮格分析不同深度之 DBDE 濃度	46
表 5-13 不同溫度與持溫時間熱處理後污染土壤與收集瓶中之 DBDE 濃度	65
表 5-14 以元素分析儀分析不同溫度熱處理 30 min 後污染土壤中的 C、N 及 H 元素之重量百分比	66
表 5-15 以 10°C/min 之升溫速率加熱至 450°C 時，持溫 2 小時對不同重量之污染土壤中 DBDE 之移除效果	69
表 5-16 以 10°C/min 之升溫速率加熱至 450°C 時，持溫 2 小時對小區域污染土壤進行試驗，探討熱處理法移除多溴二苯醚污染之效益.....	70



一、前言

先前於桃園地區十溴二苯醚(decabrominated diphenyl ether,DBDE)使用場址附近農田調查中曾測得土壤中多溴二苯醚(polybrominated diphenyl ethers, PBDEs)濃度高達 2 ppm，並在此地距離約 2 公里外之另一農田測得高達 5.5ppm 之濃度，遠高於加拿大底泥規範濃度的 100-200 倍。且在其間有國小、農田以及房舍等，以後學之前植生吸收 PBDEs 研究成果推估，此農田土壤種植出來的作物會有 PBDEs 濃度，此污染將嚴重影響人民生活與食物安全，然而民眾卻求償無門，更無法源命令污染者作整治。108 年本團隊持續調查結果顯示上述之嚴重污染場址之 PBDEs 有往更深層土壤移動之趨勢，因此調查還需持續，發展整治技術及管制方法更是有其必要性。

近年來，隨著工業與經濟的蓬勃發展，電子產品與居家用品的需求日益增加，為了使產品被安全使用並維護民生安全，製程上會添加阻燃劑於此類產品。PBDEs 是近年來被廣泛使用的溴化阻燃劑，根據不同的溴化程度有不同的同系物(congeners)。此類化合物具有極其良好的防火特性與阻止大火往下蔓延的效果，故在應用上相當廣泛，其中以電子產品為其大宗，如電腦及其零件、印刷版、電路版以及塑膠外殼等等，此外亦有產業將其應用在其他家居物品，如地毯、塗料或沙發等。起初因安全因素，為求避免火災發生與增加逃生時間等等緣由，大量使用此類化合物，但近年來卻發現，此類化合物因具有低水溶性、熔點高以及脂溶性高等特性，使其難以被分解，更會累積於生物體中。透過呼吸或是攝入含有 PBDEs 的食物均是進入生物體的途徑，對於生物體已有研究指出有確切危害性，並可能導致腫瘤的產生，故美國環保署已將 PBDEs 列為人類的可能致癌物。在斯德哥爾摩公約中已明定四至七溴聯苯醚列入永久性有機污染物(persistent organic pollutants, POPs)。

由於認知到 PBDEs 對環境與生物具有危害性，各國對 PBDEs 開始明定使用規範，美國環保署在 2005 年明令禁用五溴聯苯醚(pentabrominated diphenyl ethers, Penta-BDE)與八溴聯苯醚(octabrominated diphenyl ethers, Octa-BDE)，而加拿大於 2016 年制定並管制任何包含十溴聯苯醚(decabrominated diphenyl ethers, Deca-BDE, BDE-209)和任何包含 PBDEs 的產品，更預告將禁止四溴-十溴二苯醚及其產品的生產、使用、銷售及進口之擬議條例，而歐盟 REACH 法規中則提出有關 BDE-209 的濃度限制。相較於上述各國，我國環保署目前對 PBDEs 的管制為在 2005 年將 Penta-BDE 與 Octa-BDE 列為第一類毒性化學物質，在 2010 年將部分四溴、六溴以及七溴聯苯醚列為第一類毒性化學物質，對 BDE-209 則仍列為



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

第四類毒性化學物質，並於 2014 年修正公告後，禁止將多溴二苯醚類物質使用於電子產品之阻燃劑。

然而在近年對 PBDEs 的分布研究中，可觀察到在 PBDEs 物種中，BDE-209 占最大多數，BDE-209 可能因受環境降解而脫溴成較低溴且毒性高之 PBDEs，故近年對 BDE-209 的關注逐年上升，美國環保署已將其列為致癌物質。而他國水相與土壤中 PBDEs 濃度，其數量級約為未偵測到濃度(Not determined, N.D.)至 ng/g 之間，多數未達 ppm 等級。然而在我國桃園地區中有部分工廠大量購入與使用 BDE-209，並且本團隊在過去 105 與 106 年間有對工廠旁農田進行 BDE-209 的濃度監測，其濃度落在 ppm 等級更甚曾達 2 ppm，相較他國，該地土壤顯示已受到 BDE-209 高度污染。延續上年度計畫，本團隊在 107 及 108 年的調查中發現該場址污染濃度已未再增加，故 109 年度著手繼續進行實驗室土壤整治條件的探討，已有部分成果，故今年度將再精進整治技術並用於現地。計畫之目標將分為兩部分，第一部分將持續調查監控高污染場址的污染情形，第二部分則是關於整治條件的研討與部分區域之整治試驗，所以目標包含(1)持續調查桃園此 PBDEs 高污染土壤；(2)探討與試驗所篩選出之微生物於污染土壤之降解效果；(3)嘗試結合微生物與奈米零價鐵於現地土壤之處理效果以及(4)測試開發不同條件下之熱處理 PBDEs 污染土壤技術及溶劑清洗方法，尋找最適處置污染土壤之條件。透過本計畫，將持續監測此高污染場址土壤之 PBDEs 濃度變化，並發展可能之整治技術，以協助未來進一步擬定政策對 PBDEs 之管制量與污染範圍或環境流布之評估以及未來針對 PBDEs 為目標進行整治之參考與建議。



二、研究目的

斯德哥爾摩公約中，已明定四至七溴聯苯醚列為 POPs，此外歐盟 RoHS 指令中亦明確規範在電子產品中禁止添加 Penta-BDE、Octa-BDE 以及限制使用 BDE-209，而我國目前除將 Penta-BDE 與 Octa-BDE 列為第一類毒性化學物質，BDE-209 則列為第四類毒性化學物質外，也已禁止將多溴二苯醚類物質用作電子產品之阻燃劑。然而在目前 PBDEs 的使用上 BDE-209 占極大多數，而本團隊在 105 至 108 年間監測到桃園某工廠旁農田有嚴重 BDE-209 污染情形，故為避免未來擴散之可能，對於 BDE-209 的監測有其必要性，本計畫將延續去年結果持續監測此 PBDEs 重度污染場址，並且繼續研發微生物及還原鐵整治技術。根據微生物的好氧特性，實務上適合施用於暴露在空氣中且污染濃度亦較高之表層土壤。而還原鐵移除污染之速度較快，若使用於現地可搭配覆水等工法以降低其氧化速度。此外將進行熱處理及溶劑清洗法之探討，擇其處理效益最高者或合併兩種以上方法，以期達成復育之目標。

本團隊已用此場址污染土進行食用作物吸收 PBDEs 試驗，發現有高濃度 PBDEs 會進入到植體中(Zhao et al., 2017; Yang et al., 2018)，並於 107 年的調查中發現桃園地區尚有其他受 PBDEs 污染之土壤，結果也已發表在國際期刊 Chemosphere (Chou et al., 2019)。由於近年研究逐漸發現 BDE-209 於生物上之毒性不容小覷，因此國際間逐漸有法規的管制，如 2017 年歐盟宣布管制 BDE-209 添加於材料中的濃度。又斯德哥爾摩公約於 2017 年 5 月經過多國投票一致通過未來將禁用 BDE-209。未來 BDE-209 將逐漸被禁用，受污染農田更是急需被監測與整治。我國目前的相關規範僅限於禁止將多溴二苯醚類物質使用於電子產品，因此我們希望能夠持續調查與監測桃園地區 PBDEs 污染之土壤，而根據去年計畫，今年將延續先前調查並繼續發展整治方法，以利未來解決 PBDEs 污染問題。



三、文獻探討

3.1 多溴二苯醚相關資料與法規

溴化阻燃劑是一種含有溴的阻燃有機化合物的通稱，一般依照其使用的方式分成添加型與反應型兩類，反應型阻燃劑會與材料產生化學反應並和聚合物分子產生鏈結，阻燃性持久。而添加型阻燃劑僅僅在加工過程中摻入材料之中，並沒有和材料產生共價鍵，容易添加卻也較易揮發並釋放到環境中。多溴聯苯醚為一種添加型阻燃劑，其可以在燃燒中釋放自由基，阻斷燃燒機制，因此經常添加於電腦、電視、電器、家具、建築材料、地毯、汽車產品、發泡材料甚至是衣物之中。PBDEs 基本物理性質如表 3-1，由於其 Kow 值較大，疏水性高，易堆積於生物體脂肪組織中，因此被國際列為 POPs，並由於其和產品間附著性不高，易脫落至空氣中，隨空氣及降雨散播至各處。圖 3-1 為 PBDEs 結構示意圖，由兩個苯環共同鍵結一個氧原子，苯環上可以接上 1 至 10 個溴原子，根據溴原子位置的不同與溴數目的不同，PBDE 的異構物可達 209 種之多。

由於過去 PBDE 於國際間使用量相當可觀，加上其具有生物累積性，因此近年來備受國際關注，許多研究者針對其毒性進行研究，研究指出，PBDEs 除了具有神經毒性(Branchi et al., 2003; Giordano et al., 2008)，也會造成免疫細胞功能性失調與自體凋亡(Lv et al., 2015)。而其代謝物質 6-OH-BDE-47 在斑馬魚體內也會影響甲狀腺的受器(Macaulay et al., 2015)。美國環保組織(Environmental working group, EWG)更指出，若給予嬰兒飲用含有 PBDEs 的母乳，會造成嬰兒發育時期暫時性或永久性的認知障礙(Giordano et al., 2008)。目前國內外已禁止數種 PBDEs 的使用，以毒理研究上毒性較低的十溴二苯醚(BDE-209)取代之，雖然過去研究指出 BDE-209 的毒性較其他 PBDEs 低，但近期已有大量研究指出，BDE-209 對人體造成的危害也不可輕視。BDE-209 會引起甲狀腺功能亢進症與肝毒性(Lee et al., 2010)。其被羥化後的型態 OH-BDEs 經有關細胞 DNA 修復功能影響的測試後，發現暴露於 OH-BDEs 後細胞內會產生活性氧化物質(Reactive oxygen species, ROS)並間接地對 DNA 造成傷害(Ji et al., 2011)；且在環境中 PBDEs 易轉化為溴化呋喃(polybrominated dibenzofurans, PBDF)及溴化戴奧辛(polybrominated dibenzodioxins, PBDD)(Bieniek et al., 1989)，更有研究指出以高溫熱分解 PBDEs 也有可能變成 PBDF 及 PBDD(Ortuño et al., 2015; Vetter et al., 2015)，故 PBDEs 於焚化過程中也可能轉變成此類更具毒性的物質。任何含有 PBDEs 的物品在環境中都有轉變為 PBDFs 及 PBDDs 的潛在危險性。



PBDEs 會經由氣態或是附著於空氣中小顆粒被吸入人體，食入受到污染的動物內臟、脂肪等亦是暴露來源，而過去已有許多研究顯示其會累積於人類脂肪組織中(Klinčić et al., 2020)。2016 年中國有一項研究針對中國地區受環境有機污染物污染進行調查的回顧文獻指出，2006 年能於母乳中檢測到的 PBDE 含量高達將近 9 ng/g (Zhang et al., 2016)。另外進入人體後，不同種類的 PBDE 在人體中的半衰期有所不同。已禁用之四溴至七溴 PBDE，於 1990 年藉由老鼠口服 PBDE 並經由高效液相層析儀檢測其脂肪組織中 PBDE 濃度所得之半衰期，範圍由五溴二苯醚之 25 日至六溴二苯醚之 91 日之久。文中也提出其他研究者藉由碳 14 標定十溴二苯醚於老鼠體內停留的時間得知，其半衰期小於 3 日，而藉由檢測高度暴露於十溴二苯醚工作環境的工作者尿液推估得知十溴二苯醚之半衰期約一週左右。雖然十溴二苯醚之半衰期相較於其它 PBDE 短許多，由前所述其毒性仍然不容小覷，加上近年來不論斯德哥爾摩公約之會議結果與歐盟皆開始禁止、限制十溴二苯醚之使用量，各國也開始聲明管制、禁止該化合物之趨勢。綜觀未來經濟出口貿易，抑或國民健康之考量，我們認為應該重視並持續追蹤十溴二苯醚於環境中之流佈與濃度。

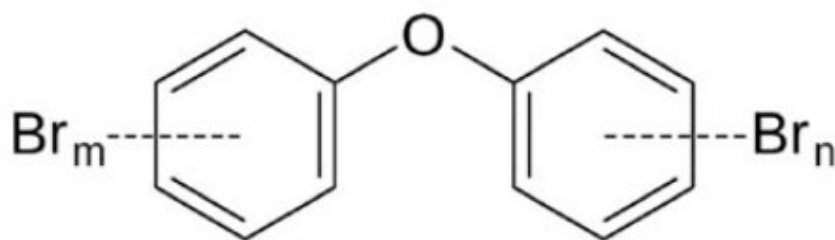
而早於西元 2000 年以前 PBDEs 之毒性便已有人研究，2003 年各國開始訂定法規禁用數種 PBDEs，下表 3-2 為各國法規與我國法規之進程，特別注意到聯合國於 2017 年 5 月 1 日由全球表決一致通過禁用阻燃劑 BDE-209。

表 3-1 PBDE 物理性質(Watanabe,1989 and WHO,1994)

Compound	Formula	Vaper Pressure (Pa)	Henry const. (Pa m ³ /mole)	logK _{ow}
DecaBDE	C ₁₂ Br ₁₀ O	<10 ⁻⁴ , 20°C <100, 250°C	44-1.58x10 ⁻⁸	9.9
NonaBDE	C ₁₂ H ₁ Br ₉ O	5.4x10 ⁻¹⁰ , 25°C	0.01-849	9.3
OctaBDE	C ₁₂ H ₂ Br ₈ O	(1.2-2.2)x10 ⁻⁷ , 25°C	7.9x10 ⁻³ - 1.67 x10 ⁻⁴	8.4-8.9
HeptaBDE	C ₁₂ H ₃ Br ₇ O	4.4x10 ⁻⁸ , 25°C	0.06-144	8-9.4
HexaBDE	C ₁₂ H ₄ Br ₆ O	(4.2-9.4)x10 ⁻⁶ , 25°C	0.15-1.5x10 ⁻³	6.9-7.9 7.4
PentaBDE	C ₁₂ H ₅ Br ₅ O	(2.9-7.3)x10 ⁻⁵ , 25°C	0.36-5.2x10 ⁻²	6.5-7.0 6.5-7.9
TetraBDE	C ₁₂ H ₆ Br ₄ O	(2.6-3.3)x10 ⁻⁴ , 25°C	0.86-104	5.9-6.2



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試



where $m + n = 1$ to 10

圖3-1 PBDE分子結構式

表 3-2 國內外相關法規進程

機構	西元	法規
我國環保署	1999年	公告 BDE-209為第四類毒化物。
歐盟	2003年	2月13日將 PBDEs 管制條例列入法規內，並規定各國成員必須於2004年8月13日前將此歐盟法律落實到國家法律體系中。根據該法案，自2006年7月1日起，所有在歐盟市場上出售的電子電器設備禁止使用 PBDEs 和多溴聯苯（polybrominated biphenyls, PBB）等阻燃劑。
歐盟	2004年	全面禁用八溴二苯醚與五溴二苯醚。
美國環保署	2005年	全面禁用五溴聯苯醚和八溴聯苯醚。
我國環保署	2005年	將八溴聯苯醚與五溴聯苯醚公告列為第一類毒性化學物質，僅得使用於研究、試驗、教育及阻燃劑。
我國環保署	2010年 12月	2,2',4,4'-四溴聯苯醚、2,2',4,4',5,5'-六溴聯苯醚、2,2',4,4',5,6'-六溴聯苯醚、2,2',3,3',4,5',6-七溴聯苯醚及2,2',3,4,4',5',6-七溴聯苯醚新增公告為具不易分解性及生物濃縮性之第一類毒性化學物質，同樣僅得使用於研究、試驗、教育及阻燃劑。
我國環保署	2014年	管制多溴二苯醚類物質（列管編號091，序號02至08）（四至八溴）自2016年1月1日起禁止使用於製造電子產品之阻燃劑。（但對於電子產品以外的產品並未限制使用）
加拿大公報 〈針對特定毒 化物規章的修 改與制定〉	2016年 8月5日	內文指出：「對於 PBDEs 的管制範圍應該擴及所有類型的 PBDEs，包含 BDE-209和任何包含 PBDEs 的產品。除了部分加工製造產品」，預告將禁止四溴-十溴二苯醚及含其產品的生產、使用、銷售及進口之擬議條例。
歐盟	2017年	歐盟 REACH 法規附錄17第67項有關 BDE-209的濃度限制；美國有毒物質管制法已通過商用 BDE-209「重大新使用規則」，要求業者在製造或進口作為任何用途前90日須通知。
聯合國「持 久性有機污染 物斯德哥爾摩 公約」	2017年 5月1日	新增 BDE-209於附件 A 公約-締約國應採取必要措施，排除清單中化學物質的使用與製造，除非該物質取得締約國登記為特定用途。

3.2 國內 PBDEs 分布情形

PBDEs 現已被歸類為 POPs 之一，為避免未來此污染物對環境造成難以彌補



的損害前，國際間對 PBDEs 的使用與分布等日益注重。台灣近年 PBDEs 使用量如表 3-3 所示，除 BDE-209 外，已無大量使用其他 PBDEs，且使用量有逐年下降。儘管現今已開始減少 PBDEs 的使用，使其不會大量分布在環境，但仍須注意 PBDEs 具高穩定性，若將含有 PBDEs 的產品掩埋或是將此類產品拆除、回收等，依然可能將 PBDEs 排放至環境中。

表 3-3 台灣近年 PBDEs 使用量(陳怡伶, 2013)

單位：kg

類別	97 年	98 年	99 年	100 年	101 年	102 年
2,2',3,3',4,5',6-七溴聯苯醚	0	0	0	0	<1	0
2,2',3,4,4',5',6-七溴聯苯醚	0	0	0	0	<1	0
2,2',4,4',5,5'-六溴聯苯醚	0	0	0	0	<1	0
2,2',4,4',5,6'-六溴聯苯醚	0	0	0	0	<1	0
2,2',4,4'-四溴聯苯醚	0	0	0	0	<1	0
八溴聯苯醚	<1	<1	<1	0	0	0
五溴聯苯醚	<1	<1	<1	0	<1	0
十溴聯苯醚	80,266	220,984	331,065	279,176	102,142	74,527
總計	80,266	220,984	331,065	279,176	102,142	74,527

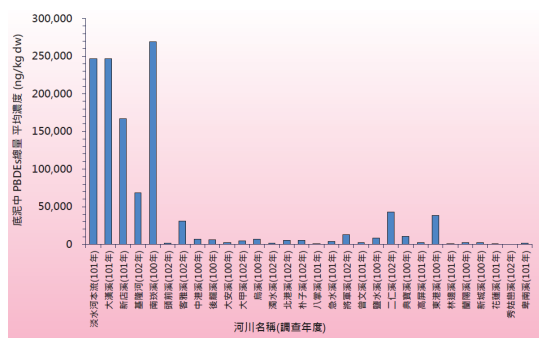
李俊璋等人於環保署毒管處歷年委託之毒性化學物質環境流布背景調查計畫中，對我國河川底泥中的 PBDEs 總量平均濃度進行調查(圖 3-2 a 至 c)，顯示民國 100 年至 102 年間，國內河川底泥 PBDEs 總量平均濃度介在 0.355-269 $\mu\text{g/kg}$ 乾重，大部分河川低於 20 $\mu\text{g/kg}$ ，而高於 100 $\mu\text{g/kg}$ 之河川則有淡水河本流、大漢溪、新店溪、南崁溪，其中南崁溪在民國 100 年的平均濃度值為 269 $\mu\text{g/kg}$ 乾重。而民國 104 至 106 年間的整體調查結果則顯示，除淡水河本流、大漢溪、新店溪及南崁溪測值有較為明顯的下降外，其餘河川測值略有增減，但差別不大(李俊璋 et al., 2014)。民國 105 至 107 年調查得知，國內河川底泥中多溴二苯醚平均濃度介在 436~53,654 ng/kg dw 之間，且一直以來河川底泥中的十溴二苯醚濃度顯著高於其他同源物，濃度次高者則為九溴同源物(李俊璋, 2017)。研究團隊亦調查了臺灣河川魚體中的 PBDEs 濃度，100 至 102 年間調查結果顯示魚體內的 PBDEs 總量平均濃度介在 0.175~4.52 $\mu\text{g/kg ww}$ ，而每條河川魚體中的 PBDEs 總量平均濃度分布情形以 102 年在大漢溪測得約 4.52 $\mu\text{g/kg ww}$ 為最高，新店溪、基隆河、南崁溪、頭前溪以及客雅溪等 5 條河川魚體中之 PBDEs 總量平均值則介於 3.00 至 4.10 $\mu\text{g/kg ww}$ ，而其餘河川平均值皆低於 3.0 $\mu\text{g/kg ww}$ ，且多數河川平均值低於 1.00 $\mu\text{g/kg ww}$ 。105-107 年間河川魚體調查結果(圖 3-2 d)以 107 年基隆河測得約 12.4 $\mu\text{g/kg ww}$ 為最高，淡水河本源、大漢溪、南崁溪、頭前溪及客雅溪等於體中之 PBDEs 總量平均值則介在 3.00 至 6.00 $\mu\text{g/kg ww}$ 之間(李俊璋, 2017)，相較於河川底泥，魚體中的多溴二苯醚同系物以四溴及十溴二



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

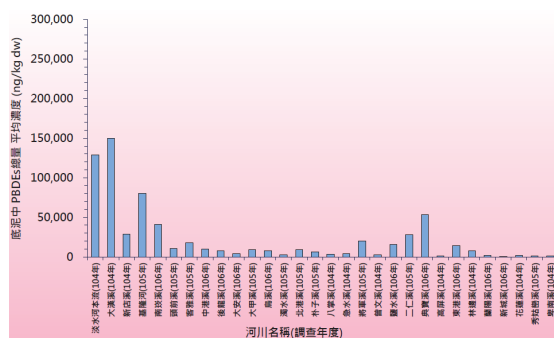
苯醚為主。此外，Lee et al. (2020)對淡水河魚體的調查也顯示五溴同系物 BDE-47, 99, 100 及四溴同系物 BDE-153, 154 在特定魚類體內有著相對較高的生物累積性。

(a)



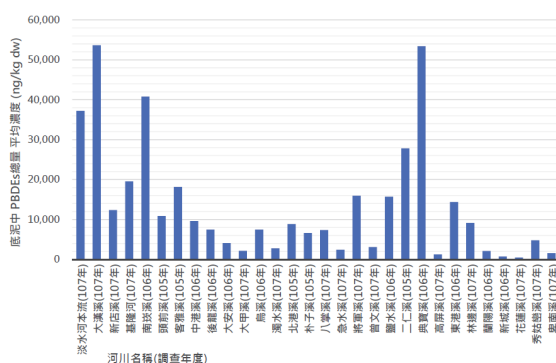
(b) 第2階段第1次調查 (100年至102年)

(b)



(c) 第2階段第2次調查 (104年至106年)

(c)



(d)

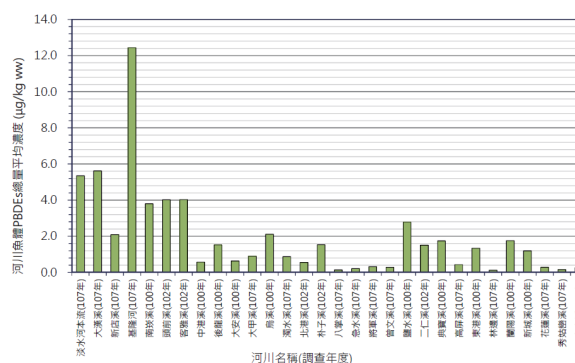


圖 3-2 民國 100-102 年(a)、104-106 年(b)以及 105-107 年(c)間調查國內河川底泥 PBDEs 總量平均濃度分布；105-107 年間河川環境魚體樣本中 PBDEs 總量濃度分布(d) (李俊璋, 2017)。

Trinh et al. (2019)取國內西半部地區 20 處地下水樣本及 7 處表面水體樣本進行檢驗，分別測得 18.51 至 4212 pg/L 及 30.24 至 1021 pg/L 之 PBDEs 濃度，主要同系物均為十溴二苯醚(BDE-209)，在地下水及表面水體的 PBDEs 總濃度中各佔 75.7 至 92.7%及 79.4 至 93.2%，雖然大部分地下水樣品之 PBDEs 濃度與世界各處相比偏低，但位在垃圾焚化爐或 PVC 生產工廠附近者則明顯測得較高濃度，可見這些地區的污染洩漏沒有受到良好控制；文中亦提到高溴數同系物好分布於固相，地下水樣品之固相總 PBDEs 中十溴及九溴二苯醚佔 90 至 99%，而在溶解相 PBDEs 中兩者則佔 47 至 80.4%。

此外針對台灣在未來有 PBDEs 污染的可能性，O'Driscoll et al. (2016)在台灣



濁水溪與彰化市等周邊地區進行 PBDEs 濃度的評估，調查其排放量和分布，並藉由平衡常數與模型模擬其在環境中的宿命。主要觀察到的物種為 BDE-47、99 以及 209，並透過工業排放速率修改先前 PBDEs 排放速率的模型，計算出其排放量在空氣中為 4.9 至 92×10^{-3} kg/hr、土壤中為 0.91 至 17.4×10^{-3} kg/hr 以及水中為 0.21 至 4.04×10^{-3} kg/hr。在不同相中，三種物種中以 BDE-209 所占比例最高。另外結果顯示出相對於土壤，PBDEs 對沉積物有較高的親和力。隨著同系物的減少，PBDEs 將分佈至空氣中，而隨著溴化程度的提升則會分佈至沉積物中，所以沉積物可能成為 PBDEs 長期釋出到環境水體中的一個來源。經調查發現，彰濱工業園區旁的海岸濕地十種 PBDEs 同系物的最高總濃度為 57.60 ng/g dw，且此數據來自深度 50 公分處之沉積物樣品，另外也在當地生物蝦猴(mud shrimps)樣品中測得 2.2 ng/g 濃度的 PBDEs (Das et al., 2020)。Cheng and Ko (2018) 取得 33 個淡水河流域表層沉積物樣品，測得之 PBDEs 濃度範圍介於 2.3 至 10490 ng/g 乾重之間，其中最高平均濃度 5651 ng/g 所位在之區域設有紡織、塑膠製造、機械電子等 BFR 重度使用之工廠，而在高密度人口地區(>20000 per/km²)也測得高濃度 PBDEs 之存在(平均 921 ng/g)，這些結果說明了淡水河流域所遭受的 PBDEs 污染受到城市與工業活動的嚴重影響。

本實驗室長期以來針對我國北部工廠附近一污染場址進行十溴二苯醚(DBDE)濃度隨時空變化之調查，發現 2015 年時主要污染土壤中 DBDE 的平均濃度為 615 mg/kg 乾重， 2016 年時略降至 604 mg/kg 乾重， 2017 年增加為 844 mg/kg 乾重， 2018 年又下降到 670 mg/kg 乾重， 2019 年再下降至 577 mg/kg 乾重；又比較不同深度，以 0 至 15 公分處之土壤累積污染濃度最高，加上五年來濃度變化不大，表明 DBDE 污染持續存在，然而深層土壤已有測到濃度，顯示 PBDEs 朝更深層之土壤移動(Chou et al., 2019)。現今我國對於四至八溴之 PBDEs 有限制其使用之規範，而對於 BDE-209 早先僅列為第四類毒性化學物質，雖於 2016 年開始已限制 BDE-209 不得使用於製造電子產品之阻燃劑，我國其他產品中仍多使用 BDE-209 作為阻燃劑。經環境調查後可觀察出在河川底泥、河川魚體內以及土壤中，BDE-209 均為 PBDEs 含量最高的物種，濃度範圍大多低於 10.0 μ g/kg，少部分則達到 100 μ g/kg 以上(Das et al., 2020; Lee et al., 2020)。

3.3 國外 PBDEs 分布情形

近年國際間 PBDEs 的發展日甚，廣泛地作為阻燃劑來使用，例如中國。中國有許多調查研究報告，也發表文獻對其國內不同地區進行 PBDEs 的分布調查及其主要物種的監測。電子廢棄物是中國地區 PBDEs 散布於環境中的主要來源



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

之一，Zhang et al. (2016)在 2013 年以電子垃圾回收場作為中心採集當地表土，並評估 PBDEs 在土壤中的分布情況，發現 BDE-28、47、99、100、153、154、183 等濃度為 11 到 128 $\mu\text{g}/\text{kg}$ ，平均濃度為 $41 \pm 10 \mu\text{g}/\text{kg}$ ，並以 BDE-47 為最主要物種。此外也發現由於電子廢棄物的移除，因此 PBDEs 在 2013 年所測得之濃度相較於 1996 至 2006 時測量之濃度有減少的趨勢。Yu et al. (2020)在廣東省清遠市調查居民血液中的 PBDEs 濃度，指出居住在靠近電子廢棄物拆除工廠附近的受試者血液中 PBDEs 濃度為 $26.0 \pm 12.1 \text{ ng/g}$ ，是同一城市中居住地遠離電子廢棄物拆除廠受試者($16.0 \pm 9.61 \text{ ng/g}$)的 1.5 倍。

Li et al. (2016b)在 2008 至 2013 年連續六年監測中國東北地區，發現此地區內以 BDE-209 為最主要的 PBDEs，並且其分布會受到溫度、相對溼度以及風速的影響，根據周圍溫度的差異，BDE-209 以不同比例分布於氣相以及顆粒相中。另外，由於東北地區中哈爾濱為悠久的工業重鎮，故 Li et al. (2016a)研究此地之廢水廠中 PBDEs 的環境宿命與整治情形，測得廢水廠內進水、排水與污泥中所含之 PBDEs 濃度分別為 152 ng/L 、16.2 ng/L 與 503 ng/g ，並表示此濃度相較於他國為低，而在此地所用之溴化阻燃劑中，BDE-209 為最主要物種，且佔 PBDEs 的九成。Xiang et al. (2020)分析東北沈撫地區不同土地利用類型的表層土壤，PBDEs 濃度介於 0.279-50.719 ng/g dw ，由高而低依序為城鎮、農村、耕地及林地，顯示人口密集區域有較高污染。在內蒙古也檢測到了 PBDEs 污染的情形，Chen et al. (2020)發現工業地帶的土壤中 PBDEs 含量略高於全國發達地區，樹皮中測得濃度亦相當於全球平均。除 BDE-209 外，工業區測得占比例偏高的是高溴化 BDEs，而耕地及草原地區則是 BDE-28 及 BDE-47 等低溴化 BDEs 比例偏高。根據主成分分析結果，工業地帶、耕地及草原地區的污染來源相同，因此 BDE-28 及 BDE-47 等低溴化 BDEs 可能是經由遠距離大氣傳播，從工業地帶轉移至耕地及草原地區。

中國黃河流域地區因受季風影響，故此地之污染源主要來自內陸以及朝鮮半島，Wang et al. (2016)調查監測此區域中各 PBDEs 之濃度，發現其中 BDE-28、47、99、100、153、154、183、209，前七者總和濃度為 0.245 ng/g ，而 BDE-209 則為 0.652 ng/g ，且濃度隨著沿海向內陸延伸而遞增；更有研究曾在北京收集到的鳥類肌肉及羽毛樣品中分別測得 46 至 $7.77 \times 10^4 \text{ ng/g 濕重}$ 及 1.50 至 191 ng/g 乾重 的 PBDEs 濃度(Yin et al., 2018)。由於中國東部一直以來是發展重地，因此從 1990 年代以來東方海域所受 PBDE 的污染普遍有上升的趨勢，Li et al. (2016c)針對其沿海地區進行 PBDEs 分佈的研究，BDE-28、47、99、100、138、153、154、183 等八種化合物其濃度總和為 34.2 至 141.5 pg/g ，然而 BDE-209 則為 229



至 842 pg/g，遠高於其餘 PBDEs。

Liu et al. (2018)採集中國安徽省巢湖盆地的水樣、沉積物以及生物樣品，進行 8 種 PBDEs 同系物的總濃度檢測，三者分別為 0.11 至 4.48 ng/L、0.06 至 5.41 ng/g 以及 0.02–1.50 ng/g 乾重，並藉由監控相連河流發現從西邊流入的河水是巢湖 PBDEs 主要來源，導致湖水中 PBDEs 濃度由西向東側遞減，此外也觀察到在秋季時污染物濃度較高；而分布在水樣及生物樣品中的 PBDEs 物種主要為 Penta-BDE (BDE-47、BDE-99 以及 BDE-153)，且大部分 PBDEs 累積在生物的腦部組織當中。Chai et al. (2019)對紅樹林濕地受多溴二苯迷污染的情形進行全國性研究，分析了華南沿海六個紅樹林溼地沉積物樣本，發現 BDE-209 濃度介在 1.44 至 120.28 ng/g，BDE-209 以外的 PBDEs 總濃度則介在 0.13 至 2.18 ng/g，且發現總有機質含量是影響 PBDEs 在沉積物中空間分布的有效因素。

日本、韓國與印度半島等地也由於近年快速的發展，亦有 PBDEs 的分布及污染問題。Dien et al. (2016)連續於 2009 至 2012 年間在日本地區進行 PBDEs 的濃度監測，發現此類污染物分佈主要受溫度、雨量與人口密度所影響。雨量與 PBDEs 濃度呈負相關，人口密度則呈正相關，而不同物種會因季節而有不同變化，以氣相為主的 BDE-47 會在夏季提升濃度，濃度最高至 1 pg/m³，以顆粒相的 BDE-209 則在冬季提升濃度，濃度最高可達約 35pg/m³。Mahmood et al. (2015)分析巴基斯坦部分地區的糧食作物，以調查該地區 PBDEs 的濃度。實驗結果顯示該地區空氣中、土壤中、小麥以及水稻中所含的 PBDEs 總和濃度分別介於 0.59 至 7.80 pg/m³、6.88 至 37.7 ng/g、0.30 至 1.43 ng/g 以及 0.07 至 46.0 ng/g。

Park et al. (2018)檢測南韓牙山湖附近地區 12 個樣點的 PBDEs 濃度，土壤及蔬菜樣品中測得之濃度範圍分別為 0 至 17.77 ng/g 及 0.07 至 21.17 ng/g。Gu et al. (2017)分析南韓地區沿海養殖的貝類、沿海沉積物以及海洋水樣，進行不同溴化阻燃劑的濃度檢測，發現在 2015 至 2016 年間，雙貝類中含有 2.39 ng/g 之 BDE-47，沉積物中含有 1.63 ng/g 之 BDE-209，而海洋水樣中則有 110 pg/L 之 PBDEs，並且觀察到養殖地區的 PBDEs 濃度高於非養殖地區。而 Kim et al. (2014)在 2010 至 2011 年間觀測南韓釜山城市各個不同相中共 27 種 PBDEs 之濃度，結果顯示表土中為 0.18 至 7.7 ng/g、水中為 6.3 至 87 ng/L、空氣中為 5.3 至 16 pg/m³ 以及植物中為 0.06 至 0.22 ng/g。此外 Kim 等人也根據不同相中 PBDEs 衍生物的濃度進行討論，如 OH-與 MeO-BDEs，並表示水與植物中所產生的主要衍生物不同於土壤與空氣，顯示在不同介質下 PBDEs 會因不同的形成機制生成不同的衍生物。

Venier et al. (2015)針對北美洲五大湖地區，採集空氣、禿鷹與人體血液樣品



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

進行濃度的監測，根據其所統計北美洲的 PBDEs 在人體血液中濃度從 1990 年代到 2000 年以後均高於歐洲與日本等地區，而該團隊以 12 天為一周期測量當地 PBDEs 之濃度，結果顯示自 2005 年至 2013 年為止克里夫蘭地區有最高的 BDE-47 與 209 濃度。經長時間的觀測，該團隊也統計出 PBDEs 的物種會根據溫度而有季節性的變化，往往以溫度高的夏季會有較高的濃度分佈，但 BDE-209 濃度變化不大，其中 BDE-47 與 209 濃度約為 12 至 30 pg/m³ 與 20 pg/m³。阿根廷西南部近年歷經了工業的快速發展，Tombesi et al. (2017)以 2011 年之沿海沉積物與 2014 年之土壤為樣品，監測其內 10 種 PBDEs 之濃度，包括 BDE-29、47、66、85、99、100、153、154、183 以及 209。在沿海沉積物中 PBDEs 濃度範圍為 0.16 至 2.02 ng/g，而在土壤中則為 0.04 至 10.7 ng/g，且在沿海沉積物與土壤樣品中，BDE-209 均為最主要物種，分別占據 94 ± 7% 與 80 ± 12%。

Law et al. (2014)與 Rotander et al. (2012)整理近年有關 PBDEs 的文獻，並觀察不同地區 PBDEs 污染的濃度趨勢。在歐洲方面，自 1998 年以來，英國與挪威地區有濃度下降的趨勢，而在瑞士的污水淤泥中 BDE-154 和 183 之濃度以每年約 20 % 的比例降低，然而 BDE-209 的濃度卻以 16 % 的比例增加，且增加比例逐年提升。在芬蘭海灣及鄰近地區，Metelkova et al. (2019)測量 23 處沉積物的 10 種 PBDEs 總濃度，海灣地區及涅瓦河分別為 0.004 至 1.3 ng/g 乾重及 0.22 至 1.8 ng/g 乾重，其中有較高濃度 PBDEs 之樣品來自聖彼得堡及芬蘭海灣之貨輪區，而較低濃度者則採自工業活動較稀少的涅瓦河上游、海灣沿岸以及外海。此 PBDEs 濃度空間分布說明人類及工業活動很可能是環境中 PBDEs 污染之來源。在北美洲方面，自 2000 年開始，含五溴之 PBDEs 使用量逐漸減低，然而從 2008 年以來，BDE-209 的濃度則逐年提高，且 BDE-209 會脫溴成含溴數較低之 PBDEs。在兩極地區，自 1991 到 2007 年以來，觀察到北極熊脂肪組織內 BDE-7 的濃度以每年 13% 的比例增加，Rotander et al. (2012)則於 1986 到 2009 年間觀察其他七種哺乳類體內的 PBDEs 濃度，發現 2000 年代時動物體內含有最高的 PBDEs。大多研究均指出近年在兩極地區 BDE-47 和 99 之濃度有降低的趨勢，而 BDE-209 成為空氣中最主要的 PBDEs 物種，並且以顆粒相存在於空氣中。

Li 等人(2016)發表的文獻中提供了亞洲區 PBDEs 在土壤中分佈的概況，在中國與日本等地皆調查到高 PBDEs 濃度的嚴重污染區域，而台灣地區土壤在該篇報告中則只檢測出 20-50 ng/g 的濃度。Abbasi et al. (2019)採用動態物質流布分析模型 CiP-CAFE 對 PBDEs 同系物 Σ_5 BDE(28, 47, 99, 153, 183)以及 BDE-209 的貯存及排放量進行估計，推估 2018 年全世界使用中以及廢棄堆積物中的量約分別為 25 至 400 千噸以及 13 至 100 千噸，且至該年為止已有 0.3 至 13 千噸的



Σ_5 BDE 以及 9 至 12 千噸的 BDE-209 被排放至大氣中。

3.4 PBDEs 於土壤的濃度分布及污染源

3.4.1 工廠之污染

DBDE 在工廠生產製造、貨物裝卸包裝的過程中，其粉塵容易散佈至空氣中，使周遭的環境及土地遭受污染。儘管 DBDE 主要生產源為美國，但調查結果卻顯示中國大陸地區為較主要之污染區。在中國山東省壽光市兩處 Penta-BDE 與 Deca-BDE 的製造工廠附近就曾測出平均濃度高達 5200 ng/g 及 4100 ng/g 的 PBDEs (Chen et al., 2012)。調查資料顯示這些區域土壤中 PBDEs 的污染濃度與風向及距離有關，並指出 PBDEs 應是自空氣散佈至附近土壤。而在山東省濰坊市的一處工廠則是在其排水口附近之土壤檢測到相當高濃度的 PBDEs，顯示未經適當處理的工廠廢液排放也是一大污染源頭。

聚合物材料、塑膠模型製造等其他添加 PBDEs 作為阻燃劑的工廠亦是 PBDEs 污染土壤的潛在來源。在中國珠江三角洲附近一些塑膠加工製造廠附近土壤就曾測得近似於 PBDEs 製造廠的濃度，可能的原因推測是該場址對外的出風口未經過濾，因此 PBDEs 自空氣散佈至附近土壤。而一些在上海與北京的二級場址所檢測出的 PBDEs 濃度則是相當低的，約 0.87-26 ng/g (Wu et al., 2015)。另外，在美國一些聚氨酯工廠附近對 PBDEs 的調查中最高濃度也僅偵測到 76 ng/g。

一些研究指出在垃圾場與垃圾掩埋場附近土壤所測出的 PBDEs 濃度明顯高於一般地區，分別在越南、印尼、柬埔寨、馬來西亞等地區垃圾場附近的土壤測得 0.12-430 ng/g 之 PBDEs 濃度。另有調查指出在加拿大北部的垃圾掩埋場附近土壤中測得的 PBDEs 濃度介於 0.877-765 ng/g，遠較當地土壤的背景值(0.203-4.52 ng/g)高出許多(Ilyas et al., 2011)。目前的一些研究認為這些垃圾場與掩埋場的型態與排水系統是影響 PBDEs 是否容易污染到周遭土壤的因素。

儘管廢棄物焚化廠所排放出的氣體中經常被檢測出含有 PBDEs 及其它含溴阻燃劑的成份，但目前對其附近土壤受到 PBDEs 污染的相關研究資料並不多。在中國大陸北京一處的焚化廠周遭土壤調查中，PBDEs 的濃度範圍介於 0.29-120 ng/g，而在澳洲墨爾本一處焚化廠周遭土壤的調查中，PBDEs 濃度則是介於 13.6-80 ng/g (McGrath et al., 2017)。當中許多調查地點的 PBDEs 濃度接近於垃圾場和廢棄物掩埋場的濃度，這指出焚化廠與另外兩者有著類似的污染潛在可能性。



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

一篇有關中國電子廢棄物回收場附近土壤污染的研究其調查結果顯示這些電子廢棄物回收場周遭土壤中所測的 PBDEs 濃度值平均而言是高於一般垃圾場與掩埋場，例如在廣東省的一燒焦塑料垃圾場及回收打印機滾筒的垃圾處理廠分別測得濃度為 1110 及 1130 ng/g 的 PBDEs (Wang et al., 2010)，但其中 PBDEs 同源物的組成比例相當不同，因此可由此判斷其廢棄物的組成成分有相當差異。而同一區域的另一電子廢棄場測得平均濃度 1440 ng/g 的 PBDEs (Leung et al., 2007)，另一浙江省的電子廢棄場則測得平均 991 ng/g 濃度的 PBDEs。目前認為電子廢棄物回收場的處理過程中，包含拆解、切碎、燃燒與酸處理等過程是加速 PBDEs 擴散的原因。在中國大陸的多處電子廢棄物回收場皆測得高於 1000 ng/g 濃度的 PBDEs (Luo et al., 2009; Gao et al., 2011; Deng et al., 2016; Hong et al., 2018)，而在多處電子廢棄物處理廠附近的農田中則檢測出約 200 ng/g 濃度的 PBDEs。然而除了澳洲的墨爾本，其他歐美國家卻未曾於電子廢棄物回收廠附近土壤中檢測到高濃度的 PBDEs 污染情況(McGrath et al., 2017)。電子廢棄物回收場附近皆可視為溴化阻燃劑的高潛勢污染區，但許多國家對此的相關調查資料仍不齊全，是未來值得更多研究投入的部分(Breivik et al., 2014)。一些研究指出即便是未直接製造或使用溴化阻染劑的工廠亦有可能會是 PBDEs 的污染源頭。在土耳其南部一處生產鋼鐵、化肥和水泥的工廠附近土壤採樣的調查中就發現其 PBDEs 濃度較非工廠區域土壤高出 4 至 12 倍；而在土耳其西岸石油煉油廠、燃氣電廠、造紙廠和船舶破碎廠等區域所調查到土壤中的 PBDEs 濃度則較其附近森林土壤中 PBDEs 的濃度要高出近 45 倍；另外在中國大陸山西省之建築工地和熱電、化肥、化工、發電廠等區域土壤中亦測得高出附近城市區域土壤兩倍之濃度(Odabasi et al., 2010; Odabasi et al., 2016)。

3.4.2 非工廠區域之污染

許多研究報告指出在無明顯污染源頭的地區，其 PBDEs 的濃度與城市的密度有相關性。在人口密度較高的區域中，其土壤通常會被偵測到較高濃度的 PBDEs，這被認為是與較多的住宅、商業行為和汽機車的數量等有關。如 2006 年調查英國伯明翰城市至鄉村間土壤中 PBDEs 的濃度就介於 0.046 ng/g(鄉村)至 4.09 ng/g(城市)之間，集合都市的區域對於 PBDEs 的濃度產生了加成的效應，整體而言 PBDEs 在土壤中污染的情況隨著市中心至鄉村的區域呈現逐漸的遞減。同樣類似的情況也分別在諸如科威特、斯德哥爾摩等城市的調查中看見。

2004 年某研究調查英國草原及林地土壤中 PBDEs 的背景濃度介於 0.065-12 ng/g 之間；同年另一研究在挪威林地調查 PBDEs 的背景濃度介於 0.13-3.0 ng/g 之



間。2010 年在法國巴黎林地調查 PBDEs 的背景濃度介於 0.225-5.11 ng/g 之間，而 2014 年調查蘇格蘭土壤中 PBDEs 的背景濃度介於 0.20-13.2 ng/g 之間。目前調查 PBDEs 背景值濃度最高的區域是 2008 年在美國密西根薩吉諾灣附近三處漫灘的土壤，檢測的濃度值介於 0.02-55.1 ng/g 之間，其潛在污染源可能來自上游處的掩埋場和廢水處理廠(Yun et al., 2008)。

在偏遠地區如南極與北極的土壤中經常也可以偵測到 PBDEs 的存在。一份在南極洲阿德利島的調查中顯示當中兩處企鵝居住區域的糞土所偵測到 PBDEs 濃度(0.343 ng/g, 0.383 ng/g)較非企鵝居住區土壤的濃度高(0.154 ng, 0.136 ng/g)，Mwangi et al. (2016)認為在南極會觀察到 PBDEs 這種濃度上的差異的原因是企鵝本身透過海洋食物鏈而累積了 PBDEs 所造成的；而另一方面企鵝居住區域的土壤中含碳量較高可能也是其較容易吸附累積污染物的原因之一。然而，Wang et al. (2012)在當年的調查中於阿德利島及其附近的喬治王島所偵測到的 PBDEs 濃度僅介於 0.00276-0.0514 ng/g 之間，比起 Mwangi 等人於 2016 年的調查中所偵測到的濃度低上許多，因此在極地的研究站也被認為可能是 PBDEs 的污染源頭之一，例如 Vecchiato et al. (2015)於該年就在一觀測站周遭土壤偵測到介於 0.77-33 ng/g 濃度的 PBDEs。

3.5 PBDEs 處理方式

現今已有不少研究對於 PBDEs 等土壤中的有機污染物陸續開發出不同的整治方法，包括熱處理法、土壤清洗法、微生物降解、光照降解、還原鐵降解、植生復育等，而本團隊也已開發多種降解 PBDEs 之方法，並發表多篇相關文章(Chen et al., 2010; Shih and Tai, 2010; Tso and Shih, 2017; Yang et al., 2018)。

3.5.1 熱處理

熱脫附(thermal desorption)是常用於修復受污染土壤的方法之一。此法之優點為處理週期短、效率高，以及回收土壤和污染物的能力等，適用於處理土壤中大多數的半揮發性(semi-volatile organic compound, SVOC)和揮發性污染物(volatile organic compound, VOC)，例如柴油、多環芳香烴(PAHs)、多氯聯苯(PCBs)、二氯二苯基三氯乙烷(DDT)、戴奧辛/呋喃(PCDD/Fs)等，已被廣泛運用於修復受到高濃度污染、面積小以及迫切需要的處理的場所。

熱處理系統基本上可分為熱脫附階段(thermal desorption stage)和廢氣處理階段(off-gas treatment stage)：熱脫附過程除透過加熱令揮發性污染物與土壤分離外，污染物亦可能在高溫下發生氧化、裂解等反應而被破壞；廢氣當中可能含



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

有未被破壞的污染物或有害副產物，故需將其收集並進一步處理。根據不同污染物，適用的理論溫度不同，故熱處理可分為低溫熱脫附(low temperature thermal desorption, LTTD)和高溫熱脫附(high temperature thermal desorption, HTTD)，邊界溫度介於 300-350°C之間，分別用於處理低沸點及高沸點的揮發性有機污染物，幾種常見污染物的適用溫度如下圖 3-3 所示。又依照修復地點，可分為現地(in-site)及離地(ex-site)處理，現地處理不必挖掘及運輸土壤，操作簡單、成本較低，但需要較長時間進行修復；離地處理則適用於較高濃度的污染，處理效率高，但成本也偏高，並且在土壤運輸過程中可能產生洩露污染的問題。

在控制良好的高溫處理下，可以焚燒破壞溴化阻燃劑(Eljarrat and Barceló, 2004)。目前針對四溴雙酚 A (tetrabromobisphenol A, TBBA)和多氯聯苯(Polychlorinated biphenyls, PCBs)所進行的研究較多，Barontini et al. (2004a)的研究發現以 10°C/min 溫和升溫，TBBA 會在 240-360°C之間熱分解，且熱處理會使 TBBA 的熱分解反應與汽化互相競爭；而 TBBA 熱分解產物主要是溴化氫(HBr)、溴化雙酚 A 以及溴化苯酚，且若在 210°C下進行等溫熱處理，TBBA 汽化比例較熱分解多，而在 270°C時測得之熱分解比例則是遠高過汽化(Barontini et al., 2004b)；另一篇研究熱降解副產物之文獻則提到，真空或快速升溫條件會限制脫溴反應發生，於是當溫度夠高時其揮發量便不會減少(Grause et al., 2011)。Sato et al. (2010)將含有不同量 PCB 的污染沉積物以 400°C加熱 5 分鐘後，成功去除 48-70%的 PCB；Evangelopoulos et al. (2015)探討 PCBs 電子廢棄物熱分解產物回收再利用可能性的文章中，熱重分析顯示 PCBs 的熱解發生在 250-370°C之間，而在較低溫度條件下(<500°C)有利於苯酚、溴化物以及雙酚 A 的產生，較高溫度條件則有利芳香烴類副產物和苯並呋喃結構的產生；Qi et al. (2014)在氮氣流中以 300-600°C之間不同溫度熱處理受 PCBs 污染之土壤，在 600°C一小時熱處理後 PCBs 去除效率高達 98%，而透過對氯化程度的監測發現經過較低溫熱處理之土壤具有與原本土壤相似的 PCBs 同系物分布，說明熱脫附為主要去除機制，並在高溫下有越來越多 PCBs 發生脫氯和分解。

在已知的研究中，雖以熱處理法針對 PBDEs 污染土壤進行整治的文章較少，多為非控制性高溫下的副產物分析(Weber and Kuch, 2003; Altarawneh et al., 2009; Grause et al., 2011; Zhang et al., 2016)或探討熱分解電子廢棄物中的 PBDEs (Moltó et al., 2011; Chen et al., 2012; Li et al., 2018)，但由前段敘述可知，熱處理對於去除土壤中揮發性有機污染物確實為一種有效的整治手段。在本年度計畫中，我們也期待藉由嘗試不同溫度、加熱時間、土量等熱處理條件，找出去除土壤中 PBDEs 最佳參數，以發展出有效率且可執行的整治手段。

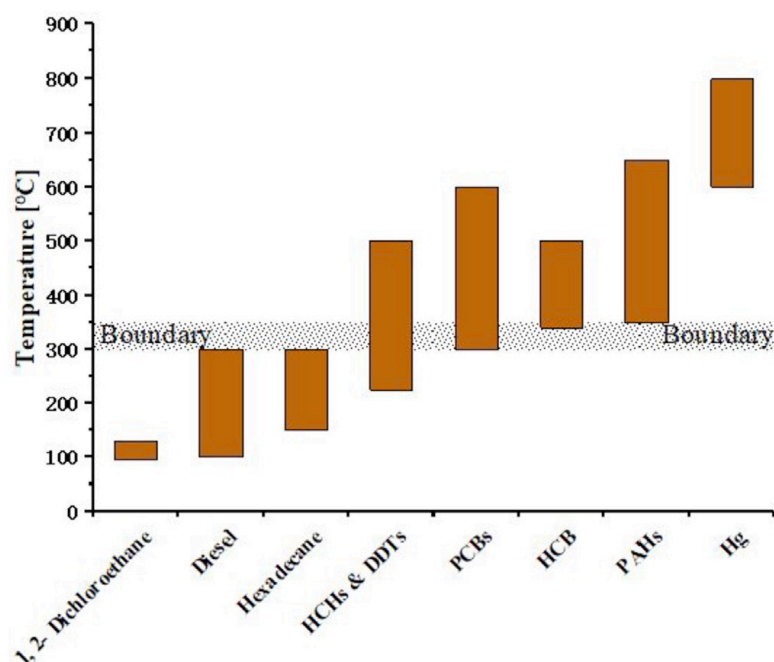


圖3-3 常見污染物的熱處理溫度(Zhao et al., 2019)。

3.5.2 溶劑清洗法處理

PBDEs 之 K_{ow} 值偏高，屬於疏水性高的有機污染物，容易吸附在土壤有機質上或存在於非水相液體中(Trellu et al., 2016)，導致低生物可利用性且不易與化學藥劑接觸，使其難以降解。以有機溶劑、介面活性劑、螯合劑或混合兩種以上化學藥劑進行土壤清洗(soil washing)是常見的污染土離地處理方式，用於去除黏附在土壤顆粒表面上的有機污染物。目前已有許多研究以各種化學藥劑組合，在不同條件下嘗試去除受污染土壤或廢棄電子塑膠用品中的疏水性有機污染物。在探討垃圾中 PBDEs 浸出情形之文獻中，Kim et al. (2006)比較了蒸餾水、20%甲醇以及 1000 mg-OC/L 腐植酸水溶液浸出塑膠樣品中 PDDEs 之效果，發現 20%甲醇從樣品中浸出的 PBDEs 濃度最高。Lee and Hosomi (2000)使用乙醇作為洗滌劑，在黑暗中清洗受多環芳香烴(Polycyclic aromatic hydrocarbons, PAH)污染的土壤，發現經過一次清洗後可以去除 73%至 91%的 PAH。在一篇研究乙醇洗滌移除戴奧辛污染的文章中提到，在 60°C下用 75%乙醇進行 10 次循環洗滌，對四種不同特性土壤之處理效率達 81%至 97%以上，原本吸附在土壤顆粒上的 PCDD / Fs 或溶解或轉移至洗滌溶劑當中，並指出在溫度、時間長度以及乙醇濃度等參數中，乙醇濃度是最重要的參數(Jonsson et al., 2010)。亦有文章提出，結合溶劑萃取與化學還原的方法，使用乙醇及乳酸乙酯(ethyl lactate)混合溶劑(1：



1, v/ v)清洗受 PAHs 污染的土壤，去除率可達到 58%至 86%，再以零價鐵降解轉移至溶劑中的污染物，在優化條件下降解效率可達 66%至 87% (Elie et al., 2014)。

3.5.3 微生物降解

許多研究發現環境中存在著可降解 PBDEs 的微生物，當中主要可區分為厭氧細菌與好氧細菌。一般認為厭氧微生物處理環境污染物的效率是更好的，儘管多數情況下厭氧環境的反應速率較慢。另一方面來說，環境中許多低溴數的 PBDEs 可能是生物降解的產物。厭氧微生物降解 PBDEs 的途徑主要是透過脫溴反應，與光降解和透過零價鐵處理的原理類似。過去本團隊曾研究淤泥中微生物對 PBDEs 的處理，亦開發出增進微生物降解 PBDEs 之方法，以及對此具降解能力之微生物進行辨認。我們的研究是利用厭氧淤泥對 BDE-3 進行降解並脫溴 (Shih et al., 2012a)，亦發現添加葡萄糖有助於微生物降解 BDE-3。而關於好氧降解 PBDEs 的微生物目前的相關研究較少，已知者主要包含 *Sphingomonas* sp.、*Rhodococcus* sp.、*Burkholderia xenovorans*、*Pseudonocardia dioxanivorans*、*Lysinibacillus fusiformis*、*Pseudomonas* sp.、*Bacillus* sp.以及真菌類的雲芝等等 (Wu et al., 2018)。然而許多好氧降解途徑當中產生的副產物與厭氧條件下降解 PBDEs 時相當不同，顯示其有著不同的代謝途徑。由於微生物對 PBDEs 具有相當的降解能力且使用上相對便宜，相關的研究也陸續受到重視。近期紅樹林中的脫溴菌被認為擁有降解 PBDEs 的巨大潛力 (Chen et al., 2018)。雖然 BDE-209 似乎較難被微生物降解，但 BDE-209 在未被規範前是 PBDEs 中使用量最大、環境中殘留量也多的 PBDE，儘管其毒性被認為略低於其他較低溴數的 PBDEs，但其在環境中卻會被降解成毒性更高的低溴數 PBDEs，也因此對 BDE-209 的處理就顯得十分重要。目前已有少數團隊透過富集培養的方式，從受 PBDEs 污染的土壤或底泥中篩選出單株可降解 BDE-209 的菌種 (Yu et al., 2019; Zhu et al., 2019; Li et al., 2020)。而在本年度計畫中我們也期待透過富集培養的方式，從已採集到的污染土壤中篩選出能降解 PBDEs 的單株菌種或混合菌群。若能獲得更多具備降解能力的菌株，將有對受污染土壤進行生物復育之潛力，也可以搭配零價鐵及光降解之處理方法，以發展出更有效率且更低成本之復育手段。

3.5.4 零價鐵降解

零價鐵具有很高的還原電位與高比表面積，有研究觀察到零價鐵可迅速將 BDE-209 移除 (Shih and Tai, 2010)，另外，本團隊已開發出穩定性零價鐵 (Tso and



Shih, 2017)，藉由羧甲基纖維素(carboxymethylcellulose, CMC)修飾零價鐵以避免絮聚沉降而減低對 BDE-209 移除效率。研究中以 CMC 修飾的零價鐵顆粒平均尺寸為 86.7 nm，其膠體穩定性將隨著 pH 降低而減低，進一步影響其降解能力，並表示在 CMC 修飾下可有效避免零價鐵因陰離子而降低其活性，而能保持相同的 BDE-209 移除能力。藉由此特性，CMC 修飾的零價鐵顯示出在現地中仍保有相同的移除能力而可實際應用於現地環境中(Tso and Shih, 2017)。另一方面，我們也發現零價鐵可吸附 PBDE 持續降解 PBDE (Peng et al., 2013)。再結合微生物與零價鐵則可共同降解 PBDE (Shih et al., 2012b)，所以本團隊已有相當研究成果可一起評估應用於整治工作。

3.5.5 植物整治

植物修復法(Phytoremediation)是利用綠色植物來轉移、容納或轉化污染物使其對環境無害。植物修復的對象是重金屬、有機物或放射性元素污染的土壤及水體。通過植物的吸收、揮發、根濾、降解、穩定等作用，可以淨化土壤或水體中的污染物，達到淨化環境的目的，因而植物修復是一種有潛力、正在發展的清除環境污染的綠色技術。Zhao et al. (2017)發表了透過水蘊(*Scirpus validus*)來整治底泥十溴二苯醚的相關研究，該團隊在 18 個月的測試分別在三種不同的底泥中達到約 70-90%的移除效果，但累積大量 PBDEs 之植物植體，將需再設法處理之。本團隊已有植物吸收農田土壤中多溴二苯醚之研究成果(Yang et al., 2018)，盆栽試驗結果表明，種植 14 天後甘藷藤中 24 種多溴二苯醚同系物濃度達 29.90 ng/g；多數十溴、九溴及八溴二苯醚之生物濃縮係數值超過 20.0，而其他較低溴數者之生物濃縮係數則均低於 18.9，說明高溴化之多溴二苯醚可以從土壤轉移至帶葉蔬菜中。

3.6 我國桃園區 PBDEs 高污染場址之污染現況

桃園地區部分工廠購入 BDE-209 並使用，其中某一位於蘆竹區工廠旁的農田已監測到高濃度的 BDE-209 污染。縱觀文獻研究各國 PBDEs 的濃度分布，其數量級均落於 N.D.至數百 ng/g 之間，均小於 1 ppm，然而此桃園場址旁土壤中所含 PBDEs 濃度落於 ppm 等級而遠高於文獻值。105 與 106 年度本團隊於當地進行 BDE-209 濃度監測，其中進出風口處之區塊有 2.3 mg/kg 最高的 BDE-209 濃度(圖 3-4)。106 年土壤中以表土與 0 至 15 公分深度下濃度為最高，且近出風口處之區塊有 2.3 mg/kg 最高的 BDE-209 濃度(圖 3-5)。106 年土壤中從表土至深度 60 公分之土壤中含有 N.D.至 2 mg/kg 濃度之 BDE-209，且在深度 15 至 30 公



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

分處亦有部分區塊量測到有 BDE-209 的存在，進出風口處區塊濃度相對較高，土地中濃度有向下移動趨勢，107 年檢測時則為 0.04 至 0.82 mg/kg(圖 3-6)，濃度有下降趨勢，但該濃度與中國大陸多處電子廢棄物回收場附近之土壤測值類似，均遠遠高於他國的 PBDEs 濃度分布。108 年檢測到最高濃度為 3 號土 0 至 15 公分處的 1.0885 mg/kg，最低濃度為 7 號 0 公分表土處的 0.3082 mg/kg，且與過往相比 BDE-209 之分布有向較深處土壤移動之趨勢(圖 3-7)。圖 3-8 比較連續監測四年之 BDE-209 濃度變化，7 號、8 號以及最靠近出風口的 6 號土之 0 至 15 公分土壤，於 105 年均測得約 0.8 至 2.3 mg/kg 之高濃度 BDE-209，然而 106 年以來，各區塊之表土 0 公分及 0 至 15 公分土壤中之 BDE-209 測值明顯下降，且 15 至 30 公分處所測得之 BDE-209 濃度開始增加，透過比較此歷年濃度變化，可清楚看出污染濃度有向深處移動的趨勢(Chou et al., 2019)。

此桃園地區工廠旁土壤之現況顯示農田受高濃度 PBDEs 之污染極可能高於作物可能吸收之濃度，而有進一步危害生物體之潛勢，且污染濃度有向下移動的趨勢而急需整治。在受污染的土壤地區其間有國小、農田以及房舍等，此污染將影響人民生活與食物安全。為避免將來 PBDEs 污染持續擴增而影響民生安全，本計劃將持續調查污染濃度之變化，並著手於整治技術之開發，以期能盡速解決現地之污染問題。因此在本計畫中將持續監控該地之污染情形，除接續上一年度計畫繼續篩選菌株並結合零價鐵進行 DBDE 降解試驗外，亦嘗試開發熱處理或溶劑清洗之技術，以期有效率地將 DBDE 從土壤中轉移至其他較容易處理之基質中。本計畫預定最後將針對零價鐵、微生物、熱處理、溶劑清洗法等過往曾研討之方法進行成本效益評估，選出最適用於本場址之整治方法，並且希望能取場址內其中一個小區域進行模場試驗。

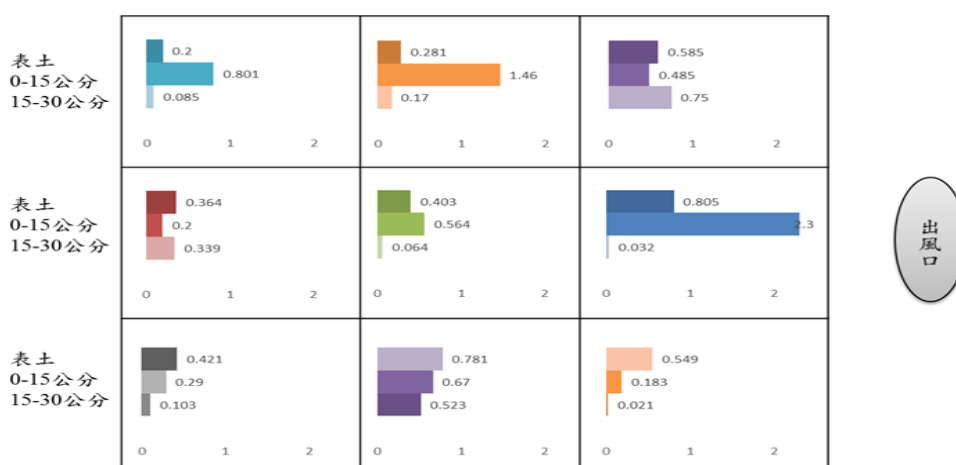


圖3-4 105年桃園地區高污染場址土壤PBDE濃度(mg/kg)



文獻探討

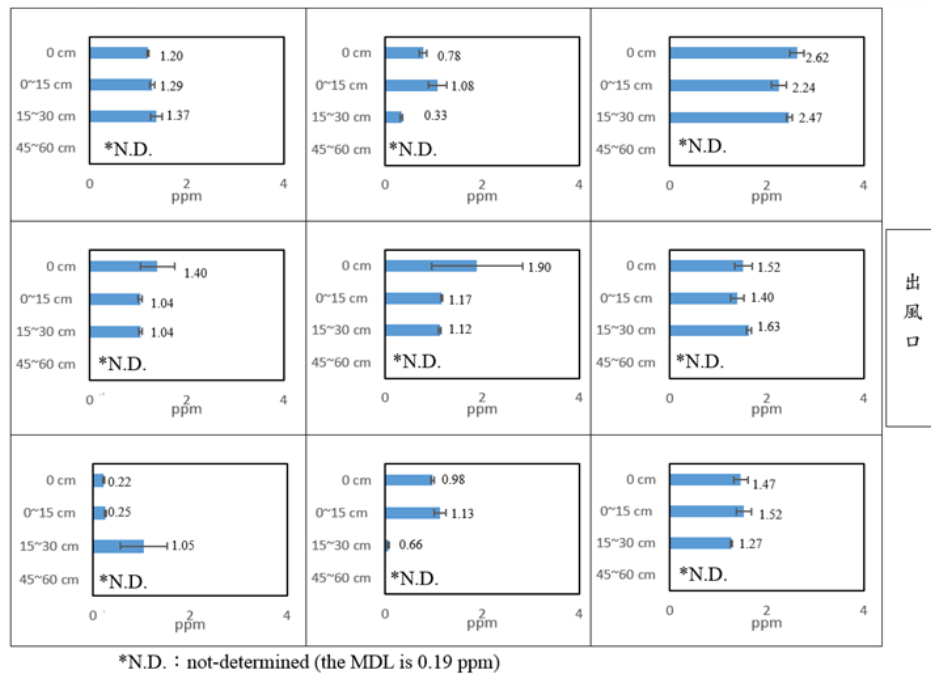


圖3-5 106年桃園地區高污染場址土壤BDE-209濃度(mg/kg)

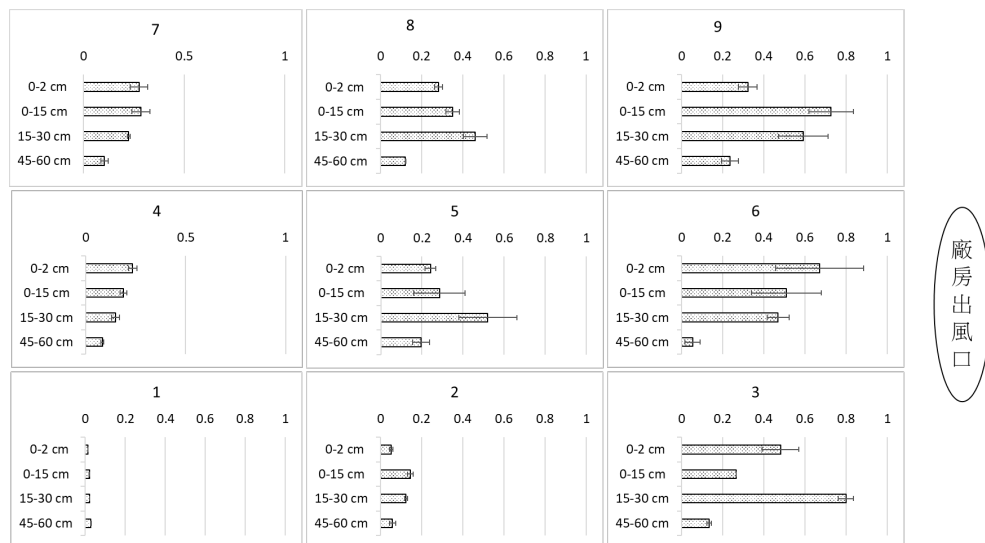


圖3-6 107年桃園地區高污染場址土壤PBDE濃度(mg/kg)



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

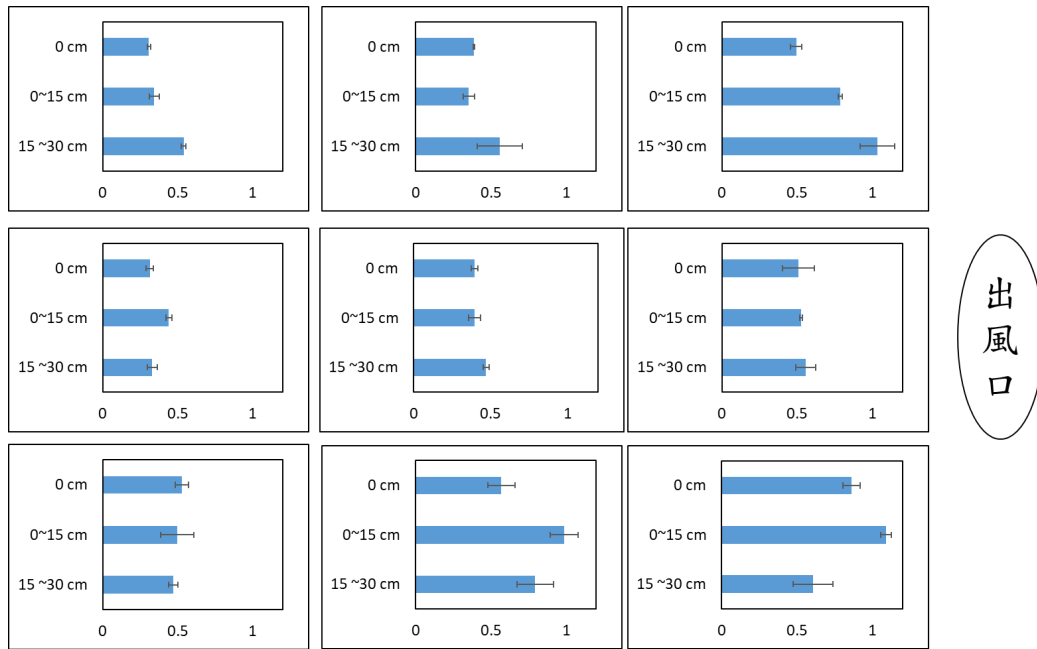


圖3-7 108年桃園地區高污染場址土壤PBDE濃度(mg/kg)

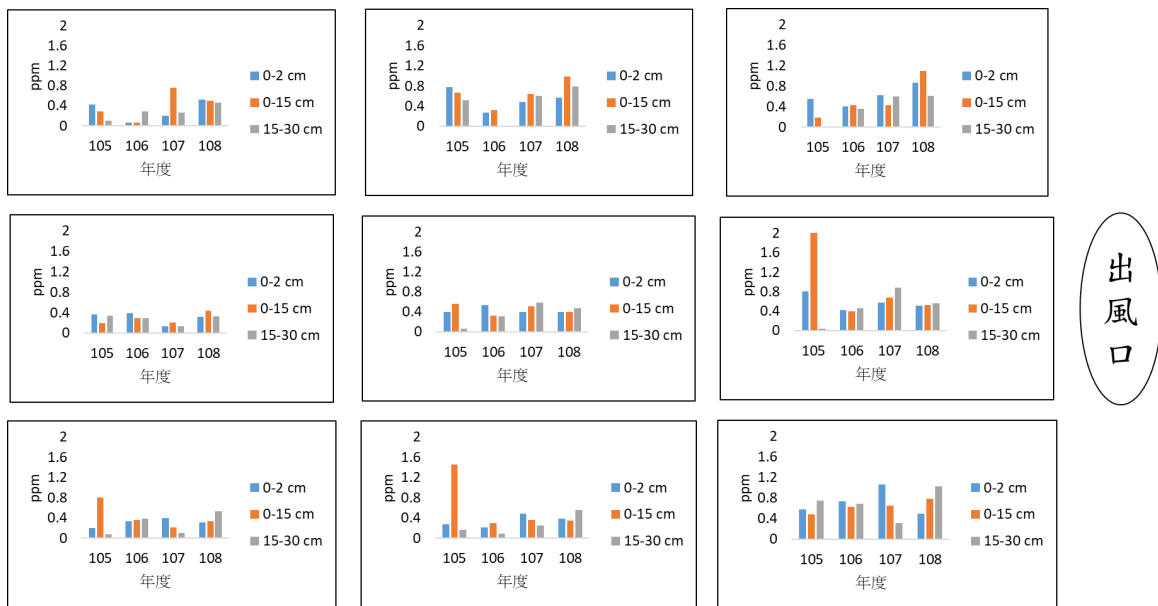


圖3-8 比較105年至108年四年間DBDE濃度變化(mg/kg)



四、研究方法與過程

4.1 實驗規劃

本計畫目標有：(1)持續調查桃園地區一 PBDEs 高污染土壤濃度、(2)檢測此高污染場址不同土壤深度之 PBDEs 含量濃度、(3)持續蒐集國內外對於 PBDEs 之毒性與環境分布報告、(4)篩選降解菌並嘗試結合零價鐵以及(5)測試開發不同條件下之熱處理技術及溶劑清洗方法，尋找最適處理現地土壤之條件，以期達到已知污染地之整治，並且提供未來針對 PBDEs 為目標進行整治之參考與建議。

本計畫中土壤採樣方法參考環境檢驗所公告「土壤採樣方法(NIEA S102.63B)」，此外本單位將先自行分析土壤中 PBDEs 含量，再篩選其中樣品委外分析，分析方法為已公告之「多溴二苯醚檢測方法—氣相層析/高解析質譜法(NIEA M802.00B)」。

4.2 採樣位置與劃分

土壤採樣將參考環境檢驗所公告「土壤採樣方法(NIEA S102.63B)」進行採樣，採樣點為高污染農田每區塊找取一點分別採集該農田表層 0-2 公分土壤、深度 0-15 公分、15 至 30 公分與 30 至 45 公分之土樣，視較深層之土壤情況與實際工作負荷，採至少 27 份土樣，每份約 0.5-1 公斤。

4.2.1 採樣前置作業準備

土壤採樣以採樣器及採樣原則為基礎，地質特性與待檢測項目為分類依據，依據現場範圍、地形地物、疑似污染處所及採樣計畫書，決定採樣點分佈後進行現場標示。採樣前應先騰寫採樣規畫書，內容包括作業項目、時間、地點、應攜帶器具、採樣人員以及相關連絡資料，如表 4-1。依據土壤性質，準備一公尺土鑽做為採樣器具，並備妥樣品容器、包裝用品及標示標籤，以及足夠之清洗溶劑(清水與己烷)。於擬採樣點上，以適當採樣器具採取。其中採表土時，需先清除地表大塊石礫、植被，再採取適當深度土樣；採不同深層土樣時，可以鑽探設備鑽入預定採樣之深度後採樣。每一點之樣品量以不低於 0.1 公斤為原則。

4.2.2 採樣作業

已知高污染農田以矩形網格法進行劃分後，於每區塊進行隨機採樣，但須



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

注意近區塊周邊 50 公分內處不採，藉此確保土樣具有其代表性，採集後分裝入不同塑膠袋中並以區塊位置與編號標記之。採樣期間需戴上塑膠手套以策安全，並於採集不同深度間，須將土鑽以清水與己烷進行清洗。待確認土鑽表面無其他深度之土壤後，方可進行下次取樣，藉此避免污染之疑慮。每次採樣應記錄當天採樣事宜，如表 4-2 所列。

參考 BDE-209 物質安全資料表(chem service 公司)，採樣人員應穿著長袖、長褲及雨鞋，並配戴實驗用手套進行採樣工作。結束後以清水沖淨鞋底泥土，避免直接接觸多溴二苯醚污染土壤。樣品運送回實驗室途中，均妥善放置於密閉容器中，以免洩漏。後續處理土壤樣品時，人員均應配戴口罩、實驗衣、實驗護目鏡以及防護手套作為防護措施，並在通風處或抽風櫃中進行，以確保人員之健康及採樣安全性。

表 4-1 採樣規劃表

項目	說明
採樣項目	
作業項目	
採樣地點	
採樣時間	
採樣範圍	
作物樣品	
分析材質	土壤中PBDEs
採樣器具	塑膠袋/膠帶/簽字筆座標定位/照相機/手機採作物工具
採樣人員	
相關聯絡資料	
備註	



圖4-1 O祿工廠出風口處農田衛星圖與九宮格採樣示意圖

表 4-2 採樣紀錄表

計畫代號：	採樣日期：
計畫名稱：桃園區多溴二苯醚高污染土壤之調查研究	
採樣資料：	
採樣地點：	
採樣樣品：(例：0-15 公分土壤)	
編號：	樣品重量：(至少500公克)
採樣開始時間：	採樣結束時間：
採樣器具：	
採樣人員：	
備註：	

4.2.3 樣品保存

待測有機成份的樣品應保存在 $4\pm 2^{\circ}\text{C}$ 冷藏箱中，並避免照光，儘速送至實驗室執行檢測分析。揮發性有機物最長可以保存 14 天應進行檢測分析；半揮發性有機物、有機氯系殺蟲劑類或除草劑類最長可以保存 14 天應進行萃取淨化處理（檢測多溴二苯醚土樣於 $4\pm 2^{\circ}\text{C}$ 冷藏，不規定保存期限），經處理後之樣品溶液，則可以保存 40 天。

4.3 分析方法

依據環境檢驗所公告之多溴二苯醚檢測方法編號 M802.00B 與美國 EPA 公告之檢測方法進行分析。採用氣相層析/高解析質譜法或 GC/ECD(針對已知高濃度樣本，以節省經費)，使用 DB5-HT 管柱將樣品分離鑑定。其中樣品經預處理與萃取等程序，並包含品質規範與品質保證。



4.3.1 擦拭試驗(Wipe tests)

為確認實驗室工作區有無潛在 PBDEs 污染，執行 PBDEs 分析之實驗室應定期進行工作區內之擦拭試驗，以建立實驗室相關背景資料。用乙醇沾濕濾紙擦拭 10×10 公分 ($10 \times 10 \text{ cm} = 0.01 \text{ m}^2$) 區域，經由萃取上機分析，計算濃度單位為 $\mu\text{g}/\text{m}^2$ ，濃度小於 $1 \mu\text{g}/\text{m}^2$ 表示實驗區未明顯受 PBDEs 污染，高於此濃度則需清理實驗區域，若濃度大於 $100 \mu\text{g}/\text{m}^2$ 表示有立即的危害需進一步徹底清洗實驗區域，並且標示此區域無法進行實驗工作。

4.3.2 樣品清洗

分析過程所使用之玻璃器皿、溶劑及試劑等可能導入未知污染，使高背景基線(Baseline)以及低訊噪比(Signal to noise ratio)，影響層析解析度與分析定量靈敏度。若溶劑純度不夠，對於樣品之淨化效率影響極大，所以溶劑應使用殘量級，或經適當蒸餾後再使用。玻璃器皿浸入清潔液後以超音波震盪洗淨，再以熱水沖洗，依序再以試劑水淋洗晾乾後，使用鋁箔封口備用分液漏斗之鐵氟龍栓拆解後同玻璃器皿步驟清洗。器皿使用前以丙酮、二氯甲烷、甲苯、二氯甲烷淋洗。索氏萃取裝置在使用前需再以萃取之溶劑預先迴流至少 3 小時以上。重複使用之玻璃器皿勿經高溫烘烤，以免增加玻璃表面活性而易吸附多溴二苯醚(PBDEs)化合物。對於特殊或不同類別基質樣品所使用之玻璃器皿，應適當區別，俾便追溯個別樣品可能之干擾來源，尤其對高污染之樣品其玻璃器皿更需額外清洗或直接丟棄，以避免樣品間的交叉污染。

4.3.3 樣品預處理

土壤樣品放置於乾淨的玻璃器皿中或鋁箔紙上置於乾淨區域，先剔除石礫、樹枝等雜物後，自然風乾(約需 7 至 10 天)或冷凍乾燥。風乾過程需偶爾將團粒(如粒徑大於 15 mm)剝散，以免固態樣品因脫水而緊密膠結，並有利於乾燥速度。風乾完成後，以木鎚敲碎，用 2 mm (10 mesh) 標準篩網過篩，再經過研磨使其通過 18 mesh(即孔徑 $\leq 1 \text{ mm}$) 標準篩，再充分混合均勻裝入樣品瓶內，待進行萃取處理程序。另取乾燥前之樣品進行含水率測試，經秤重之樣品以 $110 \pm 5^\circ\text{C}$ 烘 12 小時後，移入乾燥箱內冷卻，計算其含水率。

4.3.4 樣品萃取

採用索氏萃取法或已發表之超音波萃取法(Yang and Shih, 2013)或更佳萃取效率且更環保之萃取方法。



依樣品量選用適當容積之索氏萃取裝置，將加有鐵氟龍沸石之乾淨燒瓶，承接索氏萃管進行索氏萃取迴流，調整熱源令其每小時至少迴流四次，萃取 22 ± 2 小時後冷卻至室溫。經預處理之土壤固相樣品秤取約 10 g（或適量）研磨好的樣品置入纖維濾筒，移入索氏萃取裝置中段後，以甲苯進行索氏萃取，待萃取完畢後靜置至室溫，以減壓濃縮至近乾。

4.3.5 空白測試

製備參考基質模擬樣品以確認方法之分析程序未受污染。在每一批次分析之方法，依製備參考基質模擬樣品，製作空白。其分析程序包含前處理、萃取等均與真實樣品相同，以確認分析系統是否受污染。如果方法空白分析之測值大於最低限值或大於法規管制值之三分之一，即可能有未知之污染物存在，此時批次樣品分析應暫停，並進行修正動作，直到確定無污染之虞後始可進行樣品分析。

4.3.6 儀器分析條件

本計畫以氣相層析/高解析質譜儀作為分析儀器，搭配 DB5-HT 管柱。

1. 氣相層析分析

注射口：接毛細層析管柱，非分流模式，約 300°C 。偵測器：氣相層析儀電子捕獲偵測器(GC-ECD)。載流氣體：氦氣，約 1 mL/min。管柱溫度：30 m DB-5HT 管柱升溫程式： 100°C (3 min)以 $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 升溫至 320°C (5min)。或用 15 m DB-5HT 管柱升溫程式： 110°C (5 min)以 $40^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 升溫至 220°C (5.5 min)以 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 升溫至 330°C (4.5 min)。十溴二苯醚分析條件： N_2 流速 7 mL/min，注射端溫度 310°C ，偵測端溫度 340°C ，樣品注射量 1 μL ；升溫程式初始溫度為 150°C ，滯留 0.5 分鐘，並以 $40^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 升溫至 320°C ，並於 320°C 停留 5 分鐘，總分析時間為 9.75 分鐘。

2. 高解析度質譜儀

參考標準品：perfluorokerosene(PFK)，解析度：5000 (10% 波谷)。離子化模式：電子撞擊式(EI; 28-40eV)，離子源溫度：約 300°C ，監測模式：選擇性離子監測(Selected ion monitoring)。

3. 水浴型超音波萃取裝置(Delta，DC400，台灣)

固定功率 400W 進行超音波輔助萃取。

4. 定性準則

待測物之兩監測離子達最大強度值時之滯留時間差在 2 秒範圍內。待測物之兩監測離子訊噪比(S/N)須為 2.5 以上；在標準檢量校正曲線時必須為 10 以



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

上。由於多溴二苯醚同系物波峰的重疊或其他潛在性干擾物質的存在，是有可能無法符合上述定性規範。高溴數同系物會經由去溴作用形成低溴數同系物而干擾低溴數同系物之定性及定量。若定性規範無法完全符合，有經驗之圖譜分析師得決定待測物存在與否。

5. 定量準則：以待測物之二監測離子之面積和用以定量該待測物的含量。

- (1) 多溴二苯醚待測物是以同位素標幟內標準品為定量參考標準品，例如由 BDE-28L 計算 BDE-28 濃度，餘類推。
- (2) 同位素標幟內標準品是以滯留時間最接近之同位素標幟回收標準品為定量參考標準品。
- (3) 同位素標幟淨化標準品是以同位素標幟回收標準品為定量參考標準品。
- (4) 當樣品待測物濃度超過檢量校正曲線時，可先考慮添加適量之正壬烷溶液，重新上機分析，使其待測物之二監測離子之面積(或強度)，在檢量校正曲線範圍內。若需對數據品質要求較高如法規執行等，則應再秤取較少量樣品，重新進行萃取分析。

4.3.7 品質管制

(一) 須有完整之品保品管程序，包括同位素標幟物添加分析、實驗室空白分析、待測物添加分析等實驗室能力建立資料，據以持續評估實驗室之效能，以期執行樣品分析時能確實符合各項品管指標之規範。

1. 檢驗員依本方法執行多溴二苯醚檢測時，須建立最初分析之起始精密度與回收率資料。實驗室在建立多溴二苯醚之分析技術及能力並產生可接受精密度與回收率數據時，檢驗員執行三重複之參考基質樣品分析，並添加待測物及同位素標幟物內標準品，經前處理、萃取、濃縮、淨化等樣品分析程序，計算其最終定量體積之平均濃度 x (mg/kg)、標準偏差 s (mg/kg)。

1.1 如果待測物及同位素標幟物皆符合品管規範，則可開始進行空白及實際樣品分析。

1.2 如果三重複分析之 x 及 s 超出品管規範，則須執行修正動作解決問題後，再重複此測試步驟。

2. 為克服樣品基質干擾及有效率執行本方法之檢測，檢驗人員可適當變更樣品萃取、濃縮、淨化等程序，惟檢測結果之數據品質不能低於本方法之品管規範。如樣品偵測極限(Detection limit)因檢驗程序變更而有影響時，須證明其樣品偵測極限低於最低檢出量限值。
3. 須執行方法空白以證明分析程序是否遭受污染。
4. 須執行所有分析樣品之同位素標幟物添加以監測方法之效能。



5. 須留存校正標準曲線相關資料，以證明其執行實物分析時之品管指標皆確實可行，並提供可追溯性之紀錄供確認。

4.4 處理方式

4.4.1 DBDE 萃取與分析方法

精秤 2 g 土壤放入棕色瓶中，加入 3 mL 正己烷/丙酮(1:1)溶劑，先將土壤搖散並與萃取溶劑混合，再放入水浴型超音波萃取裝置進行第一次 30 分鐘萃取，而之後兩次萃取均加入 2 mL 正己烷/丙酮(1:1)溶劑，共連續萃取三次；每次萃取完畢後皆將棕色瓶放入離心機，以轉速 4000 rpm 離心 5 分鐘後，取出上清液，以氣相層析儀分析濃度，並以 GC-MS 進行 DBDE 與其降解副產物分析。

4.4.2 零價鐵與微生物降解 DBDE 試驗

參考去年度之方法，先以適當培養基添加 DBDE 水溶液及土壤進行富集培養，再以固態培養基分離出單一菌落測試其降解 DBDE 之能力，持續篩選可有效降解 DBDE 之菌株，並研討(1)添加不同微生物之影響：加入不同菌株於現地受污染土壤樣本之中，探討添加不同微生物對 DBDE 降解的可行性以及對降解 DBDE 效率的影響。(2)結合去年度最佳零價鐵之結果，發展與討論零價鐵與微生物結合降解 DBDE 的效果，探討零價鐵為主與微生物為輔應用於土地整治的可能性。(3)微生物額外添加不同養分對 DBDE 降解效率的影響，例如添加有機碳源於樣本中。此外，所篩選到具備降解能力之菌種若有需要可再透過 16SrDNA 定序的手法進行鑑定。

4.4.3 熱處理法

本計畫將經過曬乾、磨細以及過篩處理後的 DBDE 污染場址土壤，取適量填充於耐熱容器中，以電熱爐加熱進行熱處理試驗，而加熱後從電熱爐取出之土壤，於室溫下自然放涼，收至乾淨夾鏈袋內並存放於黑暗環境中。將測試在如下不同條件下，加熱去除污染土壤中 DBDE 的效果，包括(1)加熱溫度：取同一採樣點之適量土壤，從室溫開始加熱至最終溫度，在不同最終溫度下持續加熱一段時間後取出，以上述萃取分析土壤中 DBDE 濃度，比較 DBDE 的移除效果。(2)加熱時間：每組加熱溫度試驗中，將有三個來自同一採樣點之樣品，用來測試持續加熱的時間長度對 DBDE 移除率的影響。(3)加熱速率：過去文獻指出，加熱速率之快慢影響吸附於土壤顆粒上的 DBDE 將發生熱脫附抑或是熱分解反應，而本實驗以移除污染物取得乾淨土壤為目標，因此有必要進行不同加



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

熱速率之試驗，並分析處理過後土壤中所殘留之 DBDE 濃度與副產物類型。(4) 污染土壤量：取較大量之污染土壤進行熱處理，將土壤混合均勻後分析 DBDE 殘餘量。(5) 污染土壤面積：使用相同高度、不同面積之耐熱容器盛裝土壤進行熱處理試驗，將土壤混合均勻後分析 DBDE 殘餘量。(6) 污染土壤厚度：使用相同面積、不同高度之耐熱容器盛裝土壤進行熱處理試驗，將土壤混合均勻後分析 DBDE 殘餘量。

預計將先進行(1)和(2)之實驗，研討降解狀況與原因，找到一組具有最佳去除效率的溫度與時間，再進行後續(3)至(6)的實驗，以進一步評估各項因素對熱處理去除效率之影響。綜合去除效率、副產物分析等，研討最有效之處理條件以及學理探討，並預估之後進行整治所需消耗的能量與成本評估。此外以管線將電熱爐之出風口連接至一瓶正己烷，收集熱處理過程所產生之氣體，以 GC-MS 進行 DBDE 與降解副產物分析。使用 Nabertherm 高溫爐，型號為 B-150。

4.4.4 溶劑清洗法試驗

本計畫所使用的溶劑配方將以甲醇、乙醇等價格較低之低毒性醇類為主，並依照提取土壤中 DBDE 之實際效果或文獻更新調整溶劑配方。本計畫將研討清洗溶劑在不同土壤/溶劑比例、不同土壤量、不同清洗時間等條件下，從污染土壤中移除 DBDE 之能力。(1) 不同清洗溶劑的移除效果：取 4 mL 棕色樣品瓶裝取少量土壤，加入清洗溶劑充分混合，震盪後離心，以氣相層析儀分析移至上清液中之 DBDE 濃度。(2) 土壤/溶劑比例：取適量土壤裝入棕色樣品瓶中，加入不同比例之清洗溶劑並充分混合，將棕色瓶放入震盪培養箱中，在 25°C 下進行震盪清洗，以過濾方法分離清洗溶劑與土壤。(3) 不同清洗時間：從先前試驗中選出移除效果最佳之溶劑與土壤/溶劑比例，進行不同時間震盪清洗。

熱處理法與溶劑清洗法可將污染物從土壤移出，轉移至收集瓶之溶劑或清洗溶劑中，達到污染物體積縮減的效果。本計畫除探討熱處理法與溶劑清洗法移除土壤中 DBDE 之效率，亦評估各方法所需之整治費用，包括去年計畫中的還原鐵及微生物降解法，比較各方法之效益並探討用於現地污染整治的可能性。

4.4.5 小區域模場試驗

本計畫將評估過去所研究各種整治方法之成本效益，採用能夠最有效整治之法法，以先前試驗所得之最佳處理參數，取場址內其中一個小區域實際進行 DBDE 污染物之處理，以進一步評估該方法用於大面積污染場址整治之可行性。



4.5 實際完成之工作期程及經費報支情形

本計畫實際完成之工作包含：(1) 完成多溴二苯醚國內外相關文獻蒐集；(2) 完成高濃度多溴二苯醚污染場址土壤採樣，並分析該高污染場址旁農田土壤之 DBDE 濃度；(3) 完成微生物降解 DBDE 之篩選與試驗，並探討零價鐵與微生物結合用於污染土壤之降解效果；(4) 完成溶劑清洗試驗；(5) 完成已知受污染土壤之不同熱處理條件，並評估較佳之整治條件；(6) 完成篩選土壤委外分析；(7) 完成評估比較熱處理、溶劑清洗、微生物、零價鐵等方法之整治效益；(8) 成果報告撰寫完成，詳如表4-3。

有關經費報支情形，原編列於「貴重儀器使用含維護費」中之驗證檢測公司樣品檢測費用，由於尋無檢測公司願意檢測本計畫的高濃度多溴二苯醚污染土壤，改由實驗室自行加購多溴二苯醚標準品進行操作，導致「消耗性器材與主要費用」使用量較大，故申請由「貴重儀器使用含維護費」流出14,500元，流入「消耗性器材與主要費用」，以利計畫執行。原編列於「其他研究相關費用」中之怪手、攪拌機具及旋轉窯等熱處理設備租賃費用，經詢問怪手、攪拌機具及旋轉窯等熱處理相關設備廠商，由於租賃金額過低而無廠商願意承租，遂改由實驗室的高溫爐進行實驗，以完成預期之工作項目(熱處理試驗)，故申請由「其他研究相關費用」流出124,109元，流入122,900元至「消耗性器材與主要費用」及1,209元至「雜項費用」，以利計畫執行。目前，所有編列核發之研究經費皆已核銷完畢。



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

表 4-3 研究進度及預期完成之工作項目（甘特圖）

年月	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	備註
工作項目													
相關文獻蒐集													完成100%
採樣規畫與準備													完成100%
高濃度多溴二苯醚污染場址土壤採樣													完成100%
採樣土壤分析													完成100%
微生物試驗													完成100%
零價鐵結合微生物降解DBDE之試驗													完成100%
熱處理試驗													完成100%
溶劑清洗試驗													完成100%
篩選土壤委外分析													完成100%
成果報告													完成100%
投稿文章撰寫													完成100%
工作進度估計百分比 (累積數)	5%	10%	15%	20%	25%	30%	40%	50%	60%	70%	100%		
預定查核點	期中		1. 完成高濃度多溴二苯醚污染場址土壤採樣。 2. 完成微生物降解DBDE之篩選與試驗。										
	期末		1. 完成高濃度多溴二苯醚污染場址土壤 PBDEs 濃度的監控調查。 2. 完成熱處理及溶劑清洗試驗及開發報告。										



五、結果與討論

5.1 執行進度

本計畫之目標包含：(1)持續蒐集國內外對於 PBDEs 之毒理、環境分佈及整治技術文獻；(2)持續追蹤已知高污染場址旁農田土壤之 DBDE 濃度；(3)嘗試篩選出降解 DBDE 之微生物，討論零價鐵與微生物結合用於污染土壤之降解效果；(4)嘗試開發以醇類為主之溶劑清洗法；(5)針對已知受污染土壤嘗試不同熱處理條件，尋找較佳之整治條件；(6)評估比較零價鐵、微生物、熱處理、溶劑清洗等方法之整治效益。

依據本計畫的工作執行內容，已實際完成進度說明如下：(1)已完成國內外文獻之整理與回顧；(2)已完成採樣規劃與分析；(3)已知之重度污染場址不同深度土壤採樣與分析；(4)微生物篩選與降解試驗；(5)零價鐵結合微生物降解試驗；(6)溶劑清洗試驗；(7)不同溫度與持溫時長之熱處理試驗；(8)篩選土壤委外分析；(9)投稿文章撰寫中並將進行投稿。

5.2 高污染潛勢土壤調查

行政院農委會農糧署於 101 年進行國內農作物中多溴二苯醚同源物等持久性有機污染物(POPs)檢測，檢測結果發現桃園某一農田之萵苣之十溴聯苯醚偏高，遂請環保署協助進行污染源查證工作；環保署依據當初農糧署採樣地區，篩選區域附近使用多溴二苯醚之相關產業進行周界採樣，瞭解空氣中多溴聯苯醚濃度，但空氣中 PBDE 濃度很低。

2012 年農委會計畫「農作物中持久性有機污染物檢驗技術開發研究」研究中發現多種蔬菜樣品中含高量 DBDE 殘留(表 5-1)。鄰近的幾個工廠皆有使用 DBDE，其中工廠 B 疑似是其旁邊農田中 PBDEs 之污染源，根據資料顯示該廠 DBDE 的年平均使用量高達 41.5 公噸。檢測樣品中莧菜(amaranth)的 DBDE 含量為 25,103 pg/g，空心菜(convulvulus)為 14,157 pg/g、蔥(shallot)為 11,337 pg/g；BDE/ Σ PBDE 的比例範圍為 91%至 94%，這與市面上 PBDE 組成的百分比 BDE-209(97.5%)、BDE-206(2.2%)、BDE-207(0.24%)、BDE-208(0.06%)相類似。而進一步環保署委託的調查後，發現該廠附近的土壤與空氣樣品皆檢測出高於正常濃度的 PBDEs (表 5-2)。

由於土壤中若含高濃度 PBDEs 污染，將可能被作物吸收而進一步被生物體吸收，造成食物安全等問題。植物與污染物之吸收關係已於數十年前即有學者



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

探討植物根部對多環芳香族碳氫化合物的吸收與親和性，植物體可能藉由根部吸收土壤有機污染物進入植體中，且有傳輸至食用部位之跡象，也因此使得受到 PBDEs 污染之土壤不適於農耕而需整治。本團隊也於近兩年度將食用作物吸收多溴二苯醚的研究成果發表於國際期刊(Yang et al., 2017; Yang et al., 2018)。

表 5-1 2012 年農委會檢測多溴聯苯醚含量較高農作物檢驗結果

目標工廠	採樣日期	農作物	樣本濃度 (pg/g, w. w.)		十溴/Σ總溴
			Σ 總 PBDEs	十溴 BDE	
1. PBDEs A 廠(已搬遷)	102/03/28	萵苣	772	691	90%
2. PBDEs B 廠	102/08/06	莧菜	26,757	25,103	94%
	102/08/06	空心菜	15,304	14,157	93%
	102/08/06	蔥	12,412	11,337	91%
3. PBDEs C 廠	102/08/06	地瓜葉	36,980	33,669	91%
	102/08/06	牧草	348,062	299,293	86%
	102/10/31	構樹葉	13,176	11,139	85%
	102/10/31	地瓜葉	61,203	45,341	74%
	102/10/31	牧草	260,925	185,010	71%
	102/10/31	牧草	245,334	136,562	56%
	102/10/31	牧草	245,334	136,562	56%
4. PBDEs D 廠	102/08/15	構樹葉	16,623	14,834	89%
5. PBDEs E 廠	101/10/22	萵苣	22,236	19,694	89%

表 5-2 2014 年受環保署委託計畫中多溴聯苯醚空氣品質監測結果(陳怡伶, 2014)

監測地點			監測時間	監測濃度 (pg/m ³)	
				總多溴聯苯醚 (ΣPBDEs)	十溴聯苯醚 (deca-BDE)
1. PBDEs A 廠舊址周界	上風	PBDEs A1 測點	103/03/24-03/26	34.48	22.08
	下風	PBDEs A2 測點		185.97	157.02
		PBDEs A3 測點		46.68	31.93
2. PBDEs B 廠周界	上風	PBDEs B1 測點	103/03/31-04/02	42.68	37.30
	下風	PBDEs B2 測點		19,887.60	19,138.61
		PBDEs B3 測點		30.02	24.19
3. PBDEs C 廠周界	上風	PBDEs C1 測點	103/03/31-04/02	448.04	426.83
	下風	PBDEs C2 測點		59.77	52.92
		PBDEs C3 測點		166.42	155.52
4. PBDEs D 廠周界	上風	PBDEs D1 測點	103/03/24-03/26	48.59	39.67
	下風	PBDEs D2 測點		79.96	68.31
		PBDEs D3 測點		114.34	100.40
5. PBDEs E 廠周界	上風	PBDEs E1 測點	102/12/30-12/31	24.12	15.65
	下風	PBDEs E2 測點		42.17	31.24
		PBDEs E3 測點		78.69	65.00



5.3 高污染農地調查分析

由先前調查桃園高污染潛勢地區，以化學局桃園地區進口使用 DBDE 工廠的資料，PBDEs 已無大量進口，前年已挑選出 DBDE 進口量前五多的場址(表 5-3)做進一步調查，由於這些工廠附近土壤濃度皆已不高，故近年的計畫以 O 祿為主要調查整治的對象。第一批次出發前之採樣規劃如表 5-4 所示，第二批次出發前之採樣規劃如表 5-5 所示，並於事前連絡地主預約採樣之進行。

本場址之污染源是由於旁邊工廠過去使用 DBDE，而其出風口正對本場址所致。4 年前經政府經濟部工業局、農業委員會及環境保護署跨部會會議，已請該工廠停用 DBDE。目前，DBDE 在各國已禁用，國內也無 DBDE 大量進口，只有之前有購置之工廠有大量洩露之可能性。建議工廠排風口處應設置污染監控設備，並使用相關吸附裝置過濾排放之氣體，以避免造成空污。O 祿為本團隊先前研究中已知的重度污染農田之場址，從事化學材料製造業，於 97 至 102 年共購入 276 公噸 DBDE，為持續追蹤之對象。今年度第一批次之土壤樣品已於 2 月份採集並進行分析，而第二批次之土壤樣品已於 7 月份採集並進行分析。實驗室人員到達場址後將位於其表面(0-2 cm)、0-15 cm、15-30 cm 以及 30-60 cm 之土壤帶回，所有土壤皆於溫室自然風乾，之後進行分析。過往分析的結果顯示，O 祿工廠出風口所面向之農田 DBDE 的濃度，高污染濃度大部分分布在 0-30 cm 的土層中，但有逐年向深處土層分布之趨勢。故本團隊將持續監測採樣 0-45 cm 的現地土壤，除了持續監測，採得之土壤同時也作為整治方法試驗之用。

表 5-3 近年進口較大量 DBDE 之工廠列表

O 昌樹脂		O 祿		O 彩		O 泰		O 駿	
年度	採購量	年度	採購量	年度	採購量	年度	採購量	年度	採購量
97	33t	97	33t	100	5t	98	1.8t	103	20t
98	51t	98	40t	101	20t	99	18t		
99	66t	99	66t	102	38t	100	5t		
100	51t	100	51t	103	2t				
101	4t	101	40t						
		102	46t						



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

表 5-4 109 年 2 月高污染農田採樣規畫表

項目	說明
採樣項目	污染場址 0-2 公分表層土、0-15 公分、15-30 公分以及 30-60 公分四種深度土樣。
採樣地點	○ 祿股份有限公司：桃園市蘆竹區坑口村三德街 47 號 地號：45-46 農戶：坑口村三德街 15 巷 22 號 徐慶宏：03-3541587
採樣時間	109 年 2 月 22 日(六) PM 12:30 台大出發至當日 18:30 返回
採樣範圍	污染場址土壤
土壤樣品	預計 36 件 1. 分析多溴二苯醚污染場址土壤濃度，劃分九宮格(地號 45-46)，每格分別採樣 0-2 公分表層土、0-15 公分、15-30 公分以及 30-60 公分四種深度土樣，共計 36 件樣品。 3. 每份土樣約 0.5-1 公斤
分析物質	土壤中 PBDEs
送樣分析	前處理(風乾/磨碎過篩)
採樣器具	1. 塑膠袋/膠帶/簽字筆/去離子水/己烷/75%酒精/紙巾/手套/口罩/座標定位/手推車/手機 2. 土鑽採樣組 (Hand-held auger) --土用土鑽/鏟子
採樣人員	楊蕙真、王柏堯、蘇強升、黃聖恩
相關聯絡資料	02-3366-9442 台灣大學農業化學系 R227



表 5-5 109 年 7 月高污染農田採樣規畫表

項目	說明
採樣項目	污染場址 0-2 公分表層土、0-15 公分、15-30 公分以及 30-60 公分四種深度土樣。
採樣地點	○ 祿股份有限公司：桃園市蘆竹區坑口村三德街 47 號 地號：45-46 農戶：坑口村三德街 15 巷 22 號 徐慶宏：03-3541587
採樣時間	109 年 7 月 16 日(四) PM 12:30 台大出發至當日 18:30 返回
採樣範圍	污染場址土壤
土壤樣品	預計 36 件 1. 分析多溴二苯醚污染場址土壤濃度，劃分九宮格(地號 45-46)，每格分別採樣 0-2 公分表層土、0-15 公分、15-30 公分以及 30-60 公分四種深度土樣，共計 36 件樣品。 3. 每份土樣約 0.5-1 公斤
分析物質	土壤中 PBDEs
送樣分析	前處理(風乾/磨碎過篩)
採樣器具	1. 塑膠袋/膠帶/簽字筆/去離子水/己烷/75%酒精/紙巾/手套/口罩/座標定位/手推車/手機 2. 土鑽採樣組 (Hand-held auger) --土用土鑽/鏟子
採樣人員	楊蕙真、柯琪峰、賴玳汶、Rama Shanker Sahu
相關聯絡資料	02-3366-9442 台灣大學農業化學系 R227

表 5-6 為第一批次高污染農田場址採樣記錄表，於 109 年 2 月 22 日 13:00 出發，14:30 到達場址並開始採樣，17:30 採樣結束，當日 19:00 返回學校。當天天氣晴朗，風大。場址表面覆有雜草等植被，無積水，土壤表面呈現乾燥狀



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

態，深度越深之土壤越顯濕潤，但均可挖起。

表 5-7 為第二批次高污染農田場址採樣記錄表，於 109 年 7 月 16 日 12:30 出發，14:00 到達場址並開始採樣，17:00 採樣結束，當日 18:30 返回學校。當天天氣多雲時陰，無風。場址表面覆有雜草等植被，由於近日天氣良好，表土乾燥，表土以下土壤些微溼潤，並隨深度越深，土壤含水量越高。

表 5-6 109 年 2 月高污染農田場址採樣記錄表

計畫代號：		採樣日期：109 年 2 月 22 日	
計畫名稱：高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試			
採樣地點： O 祿股份有限公司附近地號：45-46			
採樣樣品：污染場址 0-2 公分表層土、0-15 公分、15-30 公分以及 30-60 公分四種深度土樣。			
天氣：多雲時晴 土壤環境：表土無積水，但取出的土均接近漿狀，非常濕潤			
編號：		採樣時間：	樣品重量：
1-0、1-0-15、1-15-30、1-30-60		14:30 ~ 14:50	500g ~ 1000g
2-0、2-0-15、2-15-30、2-30-60		14:50 ~ 15:10	
3-0、3-0-15、3-15-30、3-30-60		15:10 ~ 15:30	
4-0、4-0-15、4-15-30、4-30-60		15:30 ~ 15:50	
5-0、5-0-15、5-15-30、5-30-60		15:50 ~ 16:10	
6-0、6-0-15、6-15-30、6-30-60		16:10 ~ 16:30	
7-0、7-0-15、7-15-30、7-30-60		16:30 ~ 16:50	
8-0、8-0-15、8-15-30、8-30-60		16:50 ~ 17:10	
9-0、9-0-15、9-15-30、9-30-60		17:10 ~ 17:30	
採樣開始時間：14:30		結束時間：17:30	
採樣器具：			
1. 塑膠袋/膠帶/簽字筆/去離子水/己烷/75%酒精/紙巾/手套/口罩/座標定位/手推車/手機			
2. 土鑽採樣組（Hand-held auger）--土用土鑽/鏟子			
採樣人員：楊蕙真、王柏堯、蘇強升、黃聖恩			



表 5-7 109 年 7 月高污染農田場址採樣記錄表

計畫代號：		採樣日期：109 年 7 月 16 日	
計畫名稱：高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試			
採樣地點： O 祿股份有限公司附近地號：45-46			
採樣樣品：污染場址 0-2 公分表層土、0-15 公分、15-30 公分以及 30-60 公分四種深度土樣。			
天氣：多雲時陰。 土壤環境：表土乾燥，表土以下土壤溼潤，並隨深度越深，土壤含水量越高。			
編號：		採樣時間：	樣品重量：
1-0、1-0-15、1-15-30、1-30-60		14:00 ~ 14:20	500g ~ 1000g
2-0、2-0-15、2-15-30、2-30-60		14:20 ~ 14:40	
3-0、3-0-15、3-15-30、3-30-60		14:40 ~ 15:00	
4-0、4-0-15、4-15-30、4-30-60		15:00 ~ 15:20	
5-0、5-0-15、5-15-30、5-30-60		15:20 ~ 15:40	
6-0、6-0-15、6-15-30、6-30-60		15:40 ~ 16:00	
7-0、7-0-15、7-15-30、7-30-60		16:00 ~ 16:20	
8-0、8-0-15、8-15-30、8-30-60		16:20 ~ 16:40	
9-0、9-0-15、9-15-30、9-30-60		16:40 ~ 17:00	
採樣開始時間：14:00		結束時間：17:00	
採樣器具：			
1. 塑膠袋/膠帶/簽字筆/去離子水/己烷/75%酒精/紙巾/手套/口罩/座標定位/手推車/手機			
2. 土鑽採樣組（Hand-held auger）--土用土鑽/鏟子			
採樣人員：楊蕙真、柯琪峰、賴玳汶、Rama Shanker Sahu			

5.4 分析品質管制結果

本實驗的方法偵測極限(MDL)為 0.0708 mg/kg、儀器偵測極限(IDL)為 0.00787 mg/kg、添加回收率為 89%及空白試驗測值為 Not detected (N.D.)，如表 5-8 所示。實驗區域定期擦試測試如表 5-9，測試時間為 3 月、5 月、7 月及 9 月。篩選委外檢測之土壤樣品，分別為 7 月份採樣 3 號區 0 cm 土樣及 1 號區 30-60 cm 土樣、2 月份採樣 6 號區 0 cm 土樣及 2 號區 30-60 cm 土樣、以及經熱處理之土樣以 10°C/min 升溫速率加熱至 450°C 時維持 2 小時，其委外檢測之結果比較，如表 5-10。



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

表 5-8 方法偵測極限、儀器偵測極限、添加回收率與空白試驗測值

項目	方法偵測極限 (MDL)	儀器偵測極限 (IDL)	添加回收率	空白試驗
數值	0.0708 mg/kg	0.00787 mg/kg	89%	N.D.

表 5-9 多溴二苯醚於實驗區域定期擦拭測試

擦拭測試時間	多溴二苯醚濃度
2020年3月	N.D
2020年5月	N.D
2020年7月	N.D
2020年9月	N.D

表 5-10 篩選土壤委外檢測結果比較

委託編號	1	2	3	4	5
BDE#209 (mg/kg)	1.307	0.013	0.371	0.106	0.0004
Soil sample	7月, 3號區, 0 cm	7月, 1號區, 30-60 cm	2月, 6號區, 0 cm	2月, 2號區, 30-60 cm	450°C, 2h 10°C/min
DBDE (mg/kg)	1.868 ± 0.8442	0.078 ± 0.0408	0.366 ± 0.0338	0.194 ± 0.1019	N.D.

5.5 高濃度污染場址旁農田土壤採樣與 DBDE 濃度分析

往年所發現 O 祿廠房出風口處之嚴重污染農田(圖 5-1 及圖 5-2)，於今年持續監測其 DBDE 的濃度變化。45 地號農田尺寸約 20 公尺 x 45 公尺，今年 2 月前往現地後針對如圖 4-1 所示劃分的九宮格區域進行採樣，包含 0-2 cm 表土、2-15 cm、15-30 cm 以及 30-60 cm 四種不同深度的現地土壤，每份約 0.5-1 公斤。



圖5-1 O祿附近高濃度污染周界衛星圖，圈選處為採樣地點



圖5-2 O祿工廠出風口處農田現地採樣之照片

第一批次高污場址染農田 1-9 號土壤濃度於 2020 年 4 月 1 日之分析結果如表 5-11、圖 5-3 至圖 5-11。O 祿-1 號區土壤的污染狀況對比去年的污染情況，不同深度土層測得之 DBDE 濃度均為下降，然污染物有向深處移動之明顯趨勢，與去年較均勻之污染濃度分布相比，今年分析結果顯示 0 公分表土及 15-30 公分土層中之污染物有分別向下移動至 0-15 公分及 30-60 公分土層的情形。O 祿-2 號區土壤今年 2 月檢測到最高 DBDE 濃度為 15-30 公分土層的 0.664 mg/kg，對比去年之結果，發現 0-30 公分土層之污染濃度皆有增加，但 30-60 公分深度之濃度及總濃度則較去年為低。O 祿-3 號區靠近工廠出風口，為 DBDE 濃度總和最高之區塊，0-15 公分土層檢測出之 0.706 mg/kg 亦為今年於此高污染農田中測得之最高



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

濃度值，此外相較於去年 DBDE 濃度主要分佈在 0 公分表土及 0-15 公分土層，今年分析結果顯示 DBDE 較為均勻地分布於不同深度土壤中，濃度介在 0.623 mg/kg 至 0.706 mg/kg 間，可能是在與前一次採樣的時間間隔中，污染物附著於土壤有機質並隨雨水移動至不同深度土壤，而造成濃度稀釋的效果。O 祿-4 號區土壤檢測結果顯示，越深處的土壤受到的污染程度越高，DBDE 向下移動之趨勢十分明顯。O 祿-5 號區土壤 DBDE 濃度在 0 公分表層較高，有 0.440 mg/kg，而 0-15 公分、15-30 公分以及 30-60 公分土層之污染物濃度則相差不大，皆落在 0.3 mg/kg 上下。O 祿-6 號區為最靠近工廠出風口之區塊，但測得之表土 DBDE 濃度為 0.366 mg/kg，與該高污染農田其他地區相比下並非偏高之濃度值，此外本區塊之 DBDE 污染濃度隨著土壤深度增加有些微上升。O 祿-7 號區土壤以 15-30 cm 的濃度 0.349 mg/kg 為最高，表層污染濃度較低，分布情形與去年相似。O 祿-8 號區土壤 DBDE 污染狀況以 0 公分表土 0.367 mg/kg 及 30-60 公分土層 0.348 mg/kg 之濃度較高，中間土層 0-30 公分處濃度則下降，此分布情形與 O 祿-5 號區相似。O 祿-9 號區土壤中 DBDE 濃度以 15-30 公分處最高，另三個深度之土層則濃度相近，此外污染物濃度的分布情形與去年相比也有向深處移動的趨勢。

表 5-11 109 年度 2 月第一批次 O 祿旁污染地九宮格分析不同深度之 DBDE 濃度

土壤深度	各區塊濃度(mg/kg)		
區塊	7	8	9
0 公分	0.222±0.0314	0.367±0.0197	0.264±0.00773
0-15 公分	0.190±0.0145	0.253±0.0560	0.257±0.0196
15-30 公分	0.349±0.168	0.276±0.00970	0.354±0.0514
30-60 公分	0.242±0.0408	0.348±0.101	0.247±0.102
區塊	4	5	6
0 公分	0.187±0.0202	0.440±0.139	0.366±0.0338
0-15 公分	0.189±0.0368	0.273±0.0125	0.315±0.0266
15-30 公分	0.257±0.0123	0.303±0.0283	0.443±0.135
30-60 公分	0.398±0.120	0.309±0.0466	0.436±0.0743
區塊	1	2	3
0 公分	0.241±0.0218	0.428±0.0482	0.660±0.166
0-15 公分	0.354±0.131	0.520±0.0527	0.706±0.0501
15-30 公分	0.211±0.0604	0.664±0.336	0.648±0.0552
30-60 公分	0.380±0.204	0.194±0.102	0.623±0.102



結果與討論

綜合以上結果，觀察不同深度土壤之濃度分布，15-30 公分土層 DBDE 濃度大於 0-15 公分土層的區塊便包含了 2 號區、4 號區、號區、6 號區、7 號區、8 號區以及 9 號區，而 3 號區所有深度土層及 2 號區 15-30 公分土層皆測得超過 0.6 mg/kg 之高濃度 DBDE 污染。整體而言，今年 2 月之土壤採樣分析結果顯示，農田 2 號區、3 號區以及 6 號區的 DBDE 污染濃度相對較高，而農田整體之總污染濃度雖較往年減少，但明顯有向土壤深處移動的情形，由於此農田停止耕作已有數年時間，因此污染向下移動可能肇因於雨水淋洗，令吸附有污染物之土壤有機質向土層深處移動所導致。

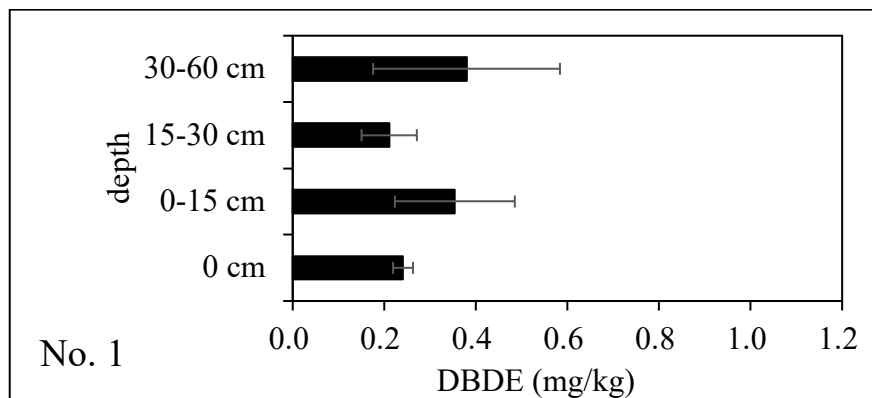


圖5-3 109年度2月O祿-1土壤不同深度之DBDE濃度測值(mg/kg)

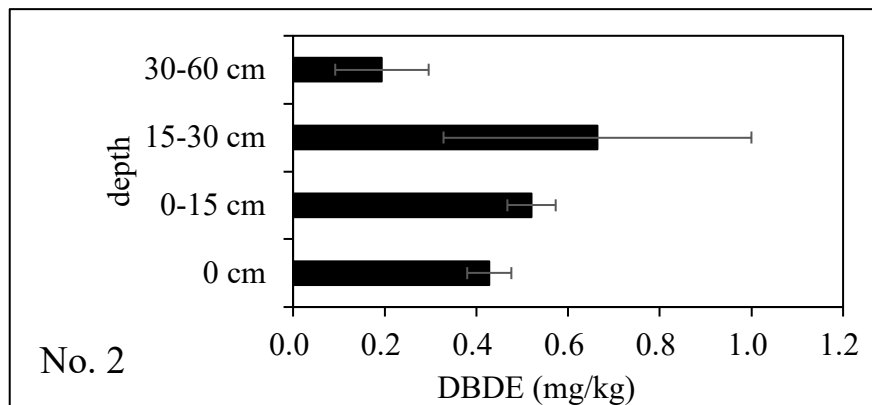


圖5-4 109年度2月O祿-2土壤不同深度之DBDE濃度測值(mg/kg)



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

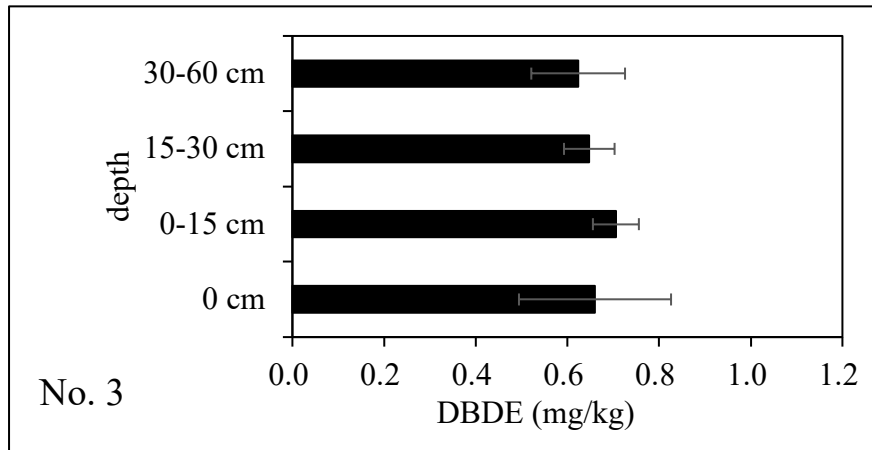


圖5-5 109年度2月O祿-3土壤不同深度之DBDE濃度測值(mg/kg)

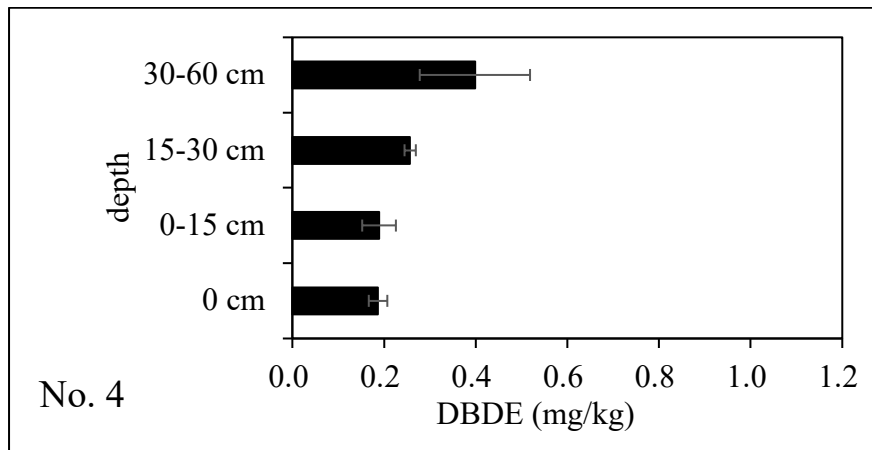


圖5-6 109年度2月O祿-4土壤不同深度之DBDE濃度測值(mg/kg)

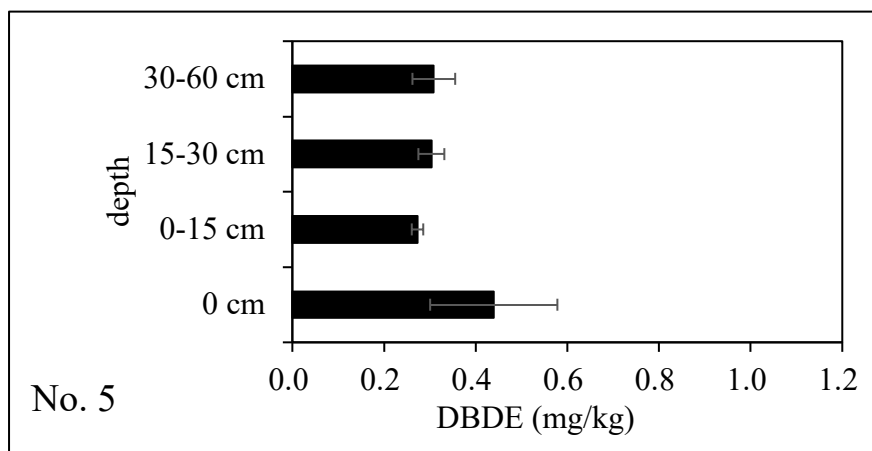


圖5-7 109年度2月O祿-5土壤不同深度之DBDE濃度測值(mg/kg)

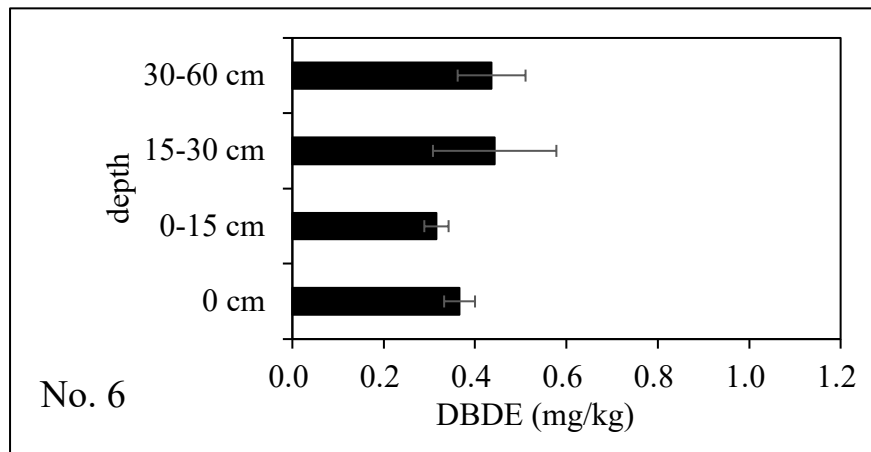


圖5-8 109年度2月O祿-6土壤不同深度之DBDE濃度測值(mg/kg)

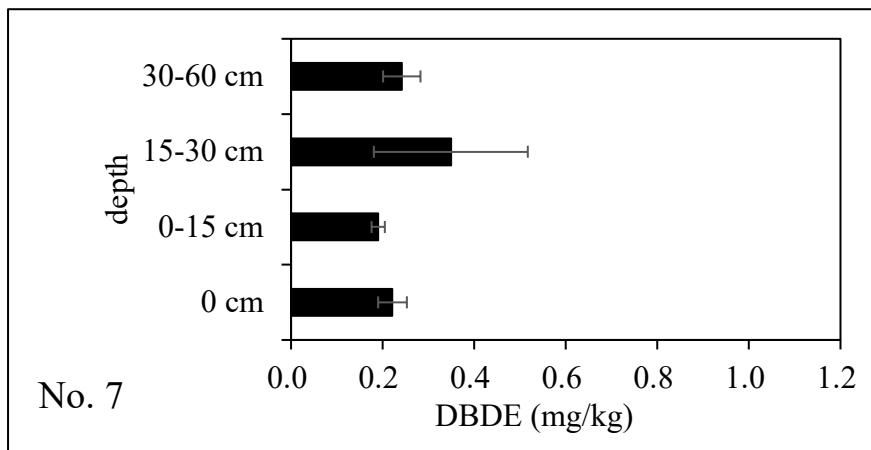


圖5-9 109年度2月O祿-7土壤不同深度之DBDE濃度測值(mg/kg)

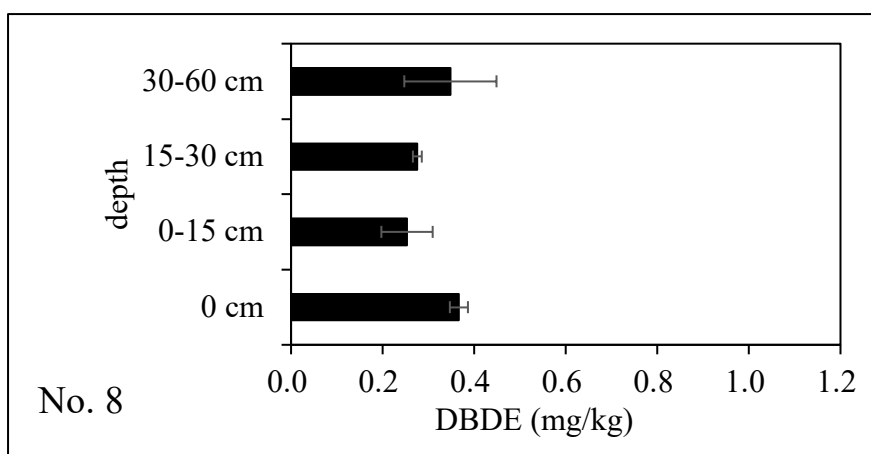


圖5-10 109年度2月O祿-8土壤不同深度之DBDE濃度測值(mg/kg)



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

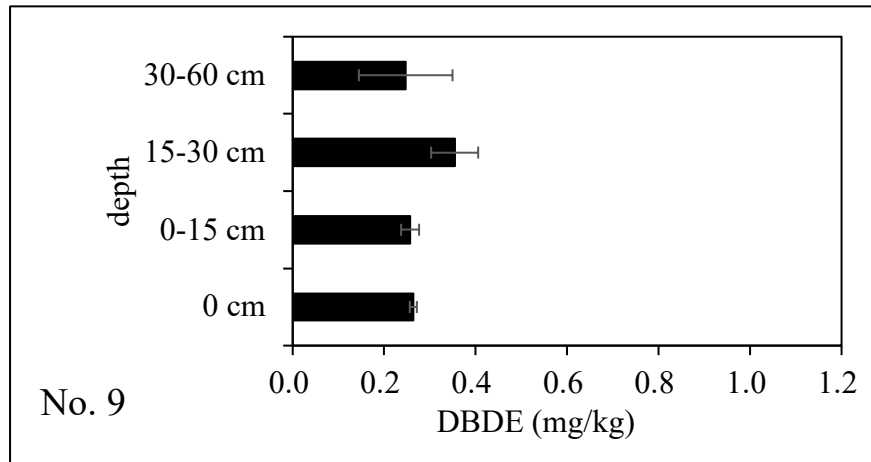


圖 5-11 109 年度 2 月 O 祿-9 土壤不同深度之 DBDE 濃度測值(mg/kg)

第二批次採樣土共 36 袋，帶回後置於溫室自然風乾後磨碎過篩(35 網目篩網)。磨碎過篩後取土樣萃取，每個樣品萃取三次並且進行三重複之分析，分析當中測得主要污染物為十溴二苯醚。第二批高污染場址農田 1-9 號土壤濃度於 2020 年 8 月 5 日之分析結果如表 5-12、圖 5-12 至圖 5-20。

表 5-12 109 年度 7 月 O 祿旁污染地九宮格分析不同深度之 DBDE 濃度

土壤深度	各區塊濃度(mg/kg)		
區塊	7	8	9
0 公分	0.316±0.0756	0.396±0.1560	0.539±0.0185
0-15 公分	0.283±0.0253	0.453±0.1609	0.174±0.0985
15-30 公分	0.318±0.0335	0.086±0.0260	0.059±0.0234
30-60 公分	0.221±0.0977	0.260±0.0882	0.152±0.0421
區塊	4	5	6
0 公分	0.289±0.0037	0.547±0.1333	0.871±0.1577
0-15 公分	0.355±0.0742	0.846±0.0573	1.045±0.1650
15-30 公分	0.250±0.0834	0.434±0.0238	0.444±0.0575
30-60 公分	0.100±0.0156	0.083±0.0260	0.139±0.0619
區塊	1	2	3
0 公分	0.412±0.1753	0.400±0.0995	1.868±0.8442
0-15 公分	0.668±0.1355	0.396±0.0571	0.710±0.4447
15-30 公分	0.338±0.0276	0.190±0.0431	1.175±0.1900
30-60 公分	0.078±0.0408	0.083±0.0099	0.105±0.0035



結果與討論

第二批 O 祿-1 號區土壤的污染狀況，在 0-15 公分土層污染濃度較高為 0.668 mg/kg，而 30-60 公分土層污染濃度較低為 0.078 mg/kg，其餘濃度介於 0.338 mg/kg 到 0.412 mg/kg 之間；第二批 O 祿-2 號區土壤之檢測濃度較前次低，且污染濃度隨著深度逐漸下降，其污染濃度介於 0.083 mg/kg 至 0.4 mg/kg；第二批 O 祿-3 號區土壤污染濃度依然偏高，表土濃度高達 1.868 mg/kg，15-30 公分土層污染濃度達 1.175 mg/kg，污染狀況較為嚴重；第二批 O 祿-4 號區土壤污染分佈也較為均勻，其污染濃度介於 0.25 mg/kg 至 0.355 mg/kg，唯獨 30-60 公分污染濃度較低為 0.1 mg/kg；第二批 O 祿-5 號區在表土與 0-15 公分土層污染較高，濃度分別為 0.547 mg/kg 與 0.846 mg/kg，而在較深之土層污染些微下降，分別為 0.434 mg/kg 與 0.083 mg/kg；第二批 O 祿-6 號區為最靠近出風口之區域，污染濃度程度雖非最嚴重但也偏高，濃度由淺至深分別為 0.87 mg/kg、1.045 mg/kg、0.444 mg/kg 與 0.139 mg/kg，第二批 O 祿-7 號區土壤對比之前的污染狀況，分佈較為均勻，其污染濃度介於 0.221 mg/kg 至 0.318 mg/kg；第二批 O 祿-8 號區土壤與前次的污染狀況相似，且分佈較為均勻，唯 15-30 公分污染濃度降低至 0.086 mg/kg；第二批 O 祿-9 號區在表土濃度較高為 0.539 mg/kg，其餘土層濃度介於 0.059 mg/kg 至 0.174 mg/kg。

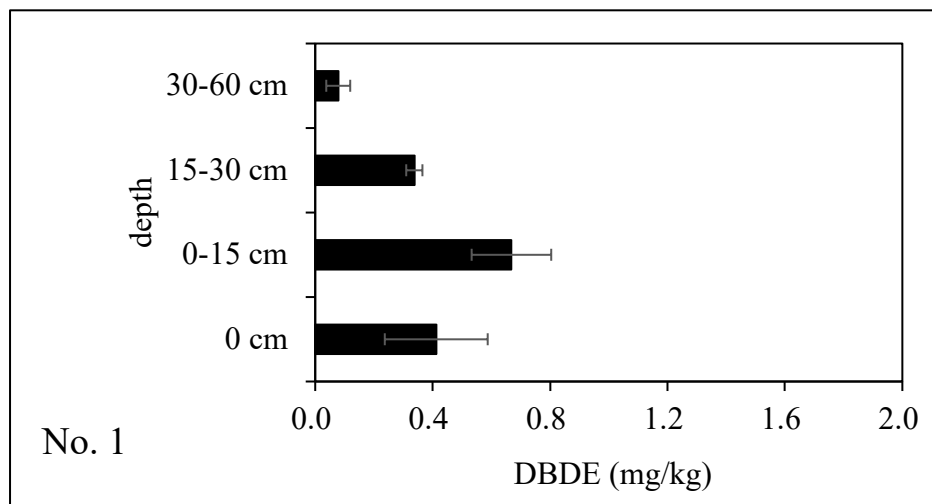


圖5-12 109年度7月O祿-1土壤不同深度之DBDE濃度測值(mg/kg)



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

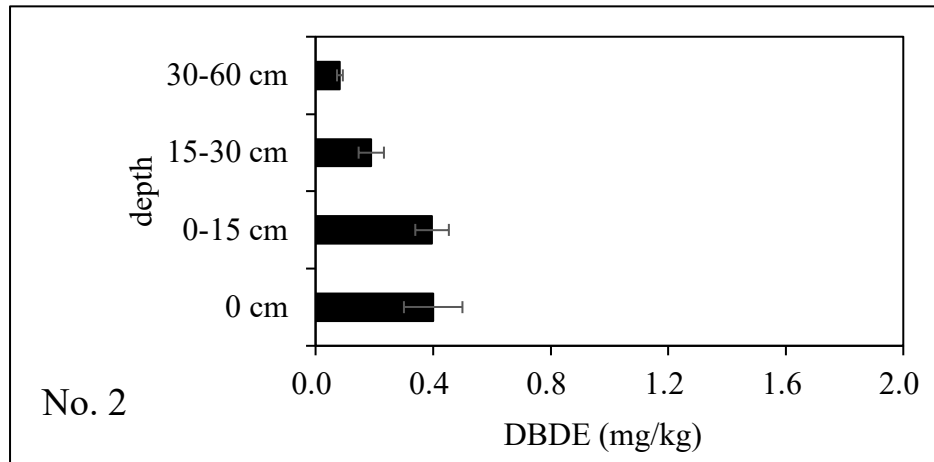


圖5-13 109年度7月O祿-2土壤不同深度之DBDE濃度測值(mg/kg)

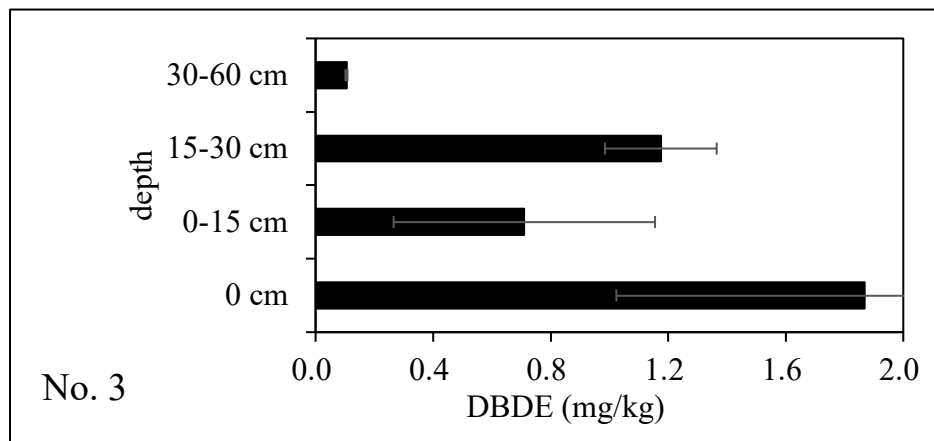


圖5-14 109年度7月O祿-3土壤不同深度之DBDE濃度測值(mg/kg)

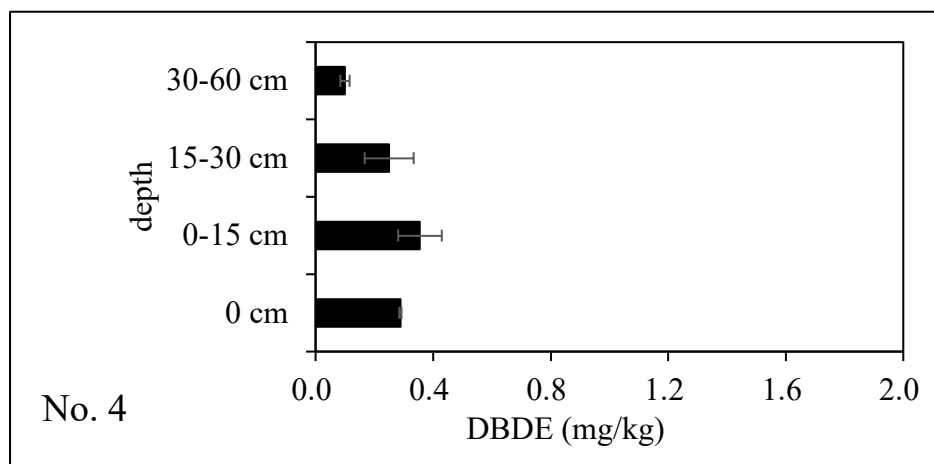


圖5-15 109年度7月O祿-4土壤不同深度之DBDE濃度測值(mg/kg)



結果與討論

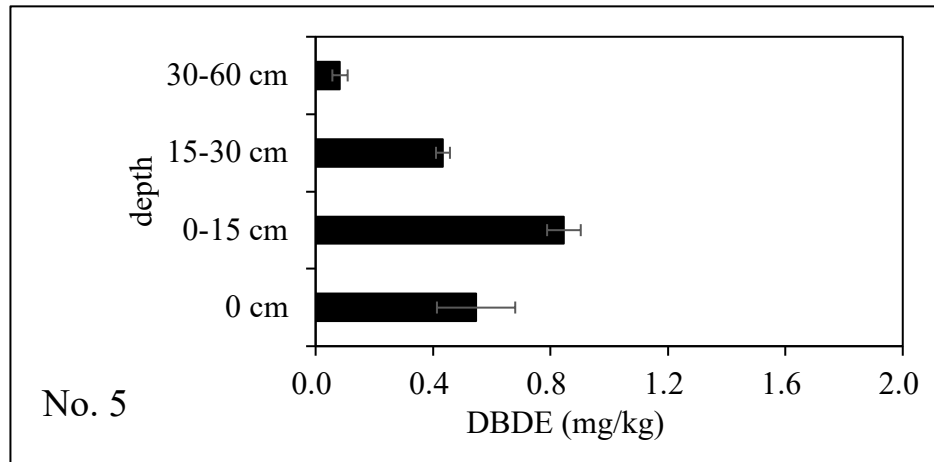


圖5-16 109年度7月O祿-5土壤不同深度之DBDE濃度測值(mg/kg)

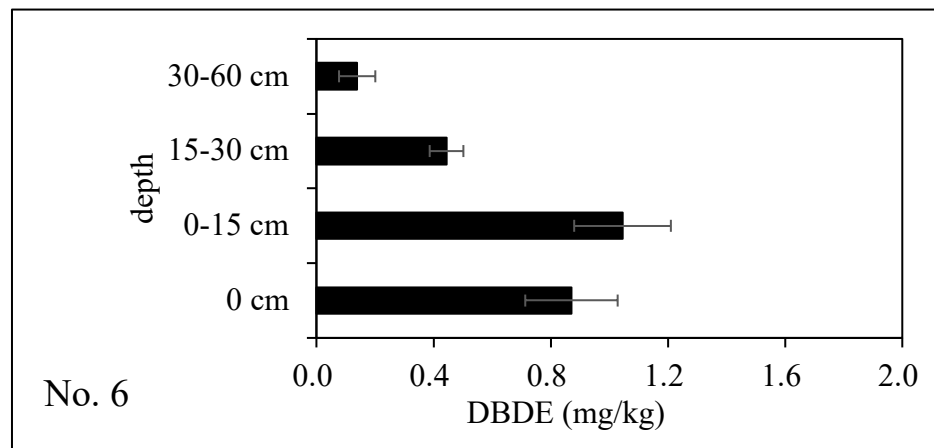


圖5-17 109年度7月O祿-6土壤不同深度之DBDE濃度測值(mg/kg)

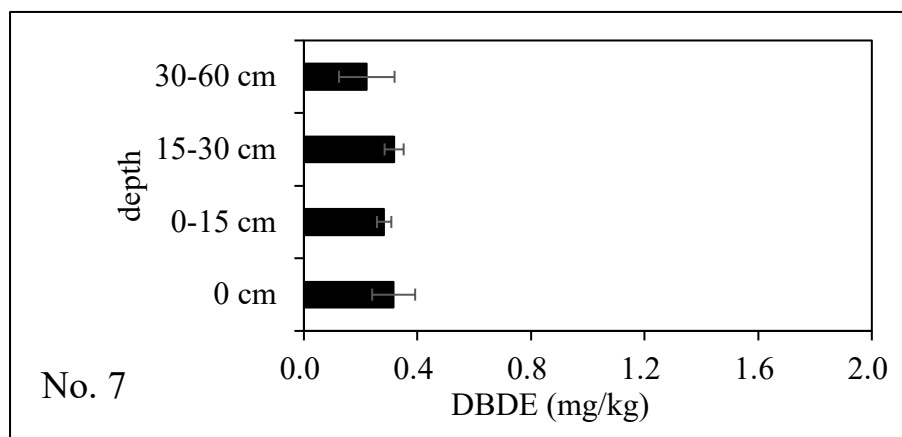


圖5-18 109年度7月O祿-7土壤不同深度之DBDE濃度測值(mg/kg)



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

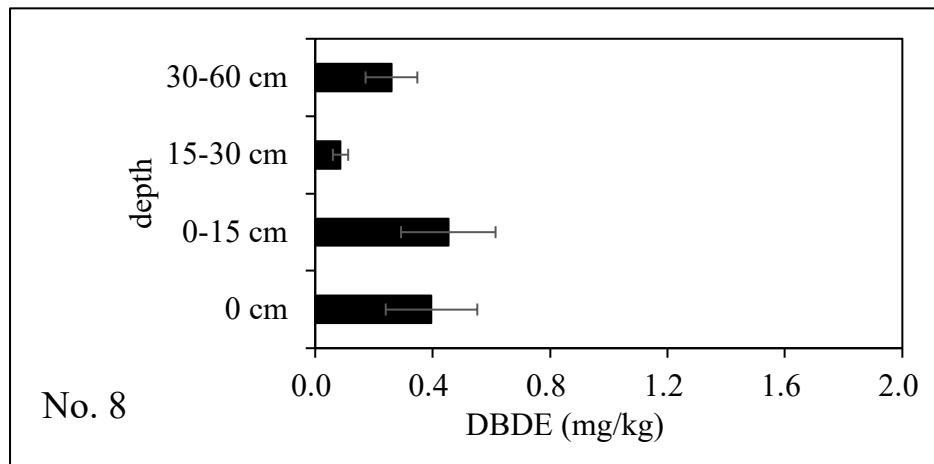


圖5-19 109年度7月O祿-8土壤不同深度之DBDE濃度測值(mg/kg)

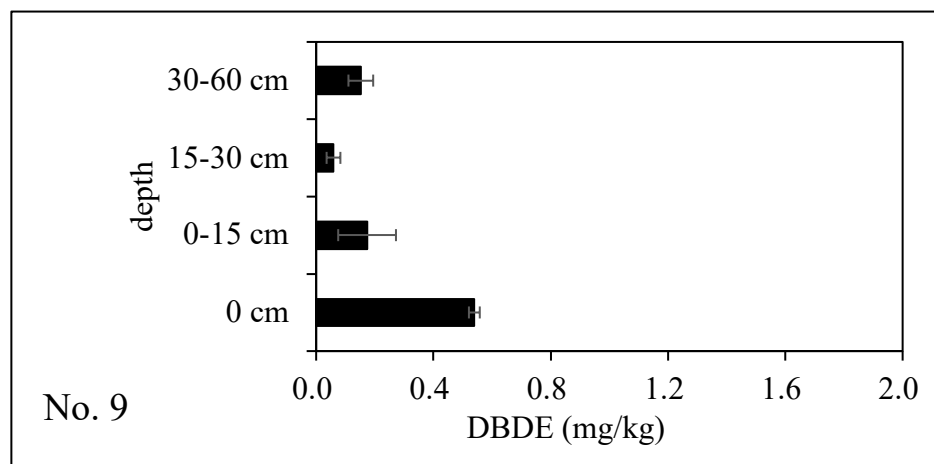


圖5-20 109年度7月O祿-9土壤不同深度之DBDE濃度測值(mg/kg)

綜合以上結果，觀察今年7月之土壤採樣分析結果顯示，不同深度土壤之濃度分布，1號區0-15公分土層、3號區除了30-60公分土層之外所有深度土層、5號區0-15公分土層、6號區表土層與0-15公分土層皆測得超過0.6 mg/kg之高濃度DBDE污染。然而，唯獨O祿-3號區土壤所分析表層土壤受DBDE污染程度則相對增加許多，尤其是表層與15-30公分深度土壤中測得的DBDE污染濃度有持續增加的趨勢。整體而言，今年7月之土壤採樣分析結果顯示，農田3號區以及6號區的DBDE污染濃度相對較高，而農田整體之總污染濃度雖較往年減少，但明顯有向土壤深處移動的情形，由於此農田停止耕作已有數年時間，因此污染向下移動可能肇因於雨水淋洗，可能因吸附有污染物之土壤有機質向土層深處移動所導致。另外，此場址之垂直濃度的分佈並無統一規律，但較多土壤中



DBDE 分析結果，有濃度隨著深度下降之趨勢，也有一些位置則是在淺層土測出較高濃度，該情況與先前國外的研究報告中類似 (Li et al., 2015; Jin et al., 2007; Hassanin et al., 2004)。

相較往年多於表土測得較高濃度 DBDE 污染之情況，雖然今年所分析 O 祿各區（除 O 祿-3 號區外），各層土壤受 DBDE 污染程度並沒有持續增高，不過 15-30 公分與 30-60 公分深度土壤中測得的 DBDE 污染濃度增加了，而雨水的淋洗滲漏及當地多雨的天氣狀態可能是導致 DBDE 向深層移動的原因。結合往年的監測數據，說明 DBDE 正向下移動並進一步污染深層土壤。該農田今年分析得出 DBDE 污染濃度介於 0.138~1.264 mg/kg 之範圍，36 個樣品的平均濃度為 0.419 mg/kg，對比加拿大(Federal Environmental Quality Guidelines, FEQGs)對底泥十溴二苯醚規範的 0.019 mg/kg 的濃度，高了約 22 倍左右，考量現存之高濃度 DBDE 以及其向下污染深層土壤的情形，對其持續的監控與整治實屬必要。

比對往年監測之資料(圖 5-21 至圖 5-29)後可得知，O 祿-1 區土壤於 105 年期間於表土有較高的污染濃度，至 106 年時污染情況有往較深層土壤(15-30 公分層)移動的情況，至 107 年時整體濃度則有上升趨勢，108 年分布較為平均，109 年則是 0-15 公分處濃度較為突出。O 祿-2 土壤於 105 年時檢測出較高之污染濃度，於 106 年時測得整體濃度下降，至 107 年回升，108 年與 109 年濃度分佈由表土移動至 0-15 公分土層，DBDE 可能有隨積水移動的趨勢。O 祿-3 土壤在 105 年測得之污染濃度較低，主要分布於表土，自 106 到 109 年間所分析測得之 DBDE 濃度不斷上升，且分佈由表土移動至 0-15 公分土層，甚至有往 15-30 公分土層擴散的趨勢。O 祿-4 土壤於 105 年與 106 年之污染濃度主要分佈在表土，至 107 年時整體濃度下降，108 年濃度則略增加且有移動至 0-15 公分處的趨勢，109 年濃度再度減少並於 0-15 公分處有較高濃度。O 祿-5 土壤於 105 年的污染主要分佈於 0-15 公分之土層，106 年至 107 年則見污染有向下移動之至 15-30 公分土層之趨勢，108 年因為積水使得分佈較為平均，109 年仍以 0-15 公分土層濃度最高，可能是 DBDE 吸附於土壤有機質再隨積水移動所導致。O 祿-6 土壤於 105 年曾於 0-15 公分土層測得高達 2.2 mg/kg 之濃度，但至 106 年已有下降之趨勢，然 107 年濃度又回升且主要分布在 15-30 公分處，108 年所檢測濃度略為下降且分布變得較平均，109 年濃度雖有減少，仍以 0-15 公分土層濃度最高。O 祿-7 土壤於 105 年 0-15 公分測得較高之污染濃度，106 年濃度看起來則較為平均，107 年測得濃度是表土最高，而 108 年則濃度有些微提升，109 年整體濃度又略減。O 祿-8 土壤於 105 年曾測得高達 1.46 mg/kg 之污染濃度，於 106 年所檢測之濃度已下降，於 107 年所檢測之濃度略為增加且主要分佈在表土，108 年則測得較平均之濃度



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

分佈，109 年的污染物濃度則主要分佈於表土。O 祿-9 土壤於 105 至 106 年間之污染濃度及分佈均相似，而於 107 年時表土所測得之濃度上升，108 年則是 0-15 公分處有較高濃度，109 年濃度雖減低，但以表土之濃度最高。

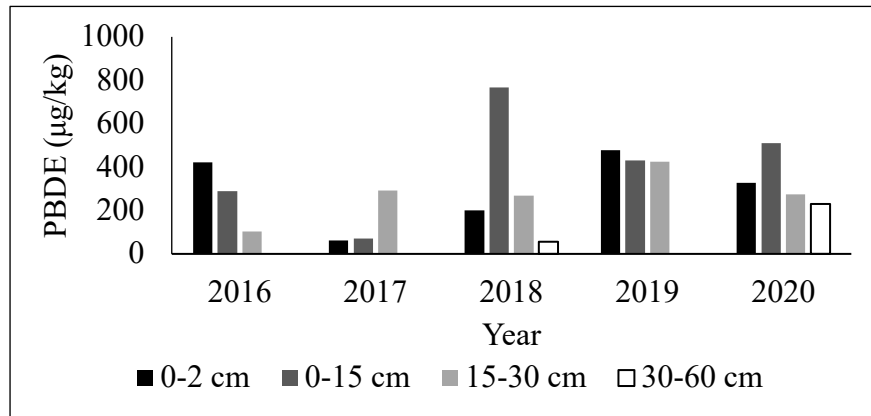


圖5-121 105-109年O祿-1號區不同深度土壤之DBDE污染濃度變化

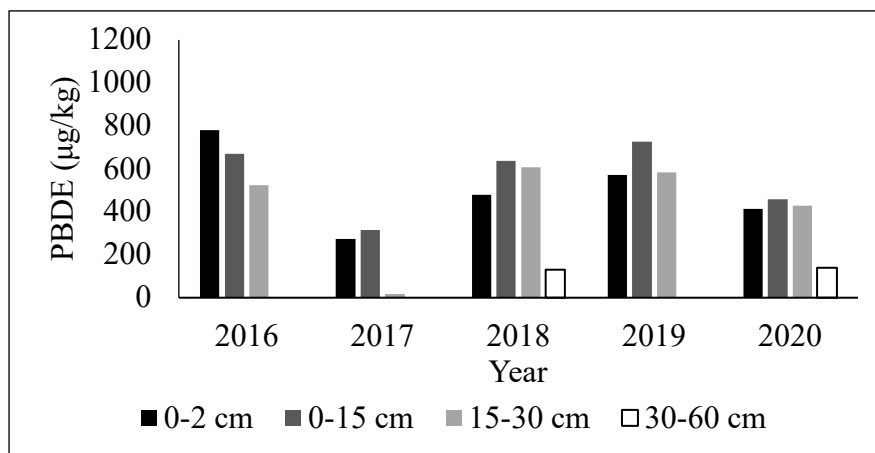


圖5-22 105-109年O祿-2號區不同深度土壤之DBDE污染濃度變化

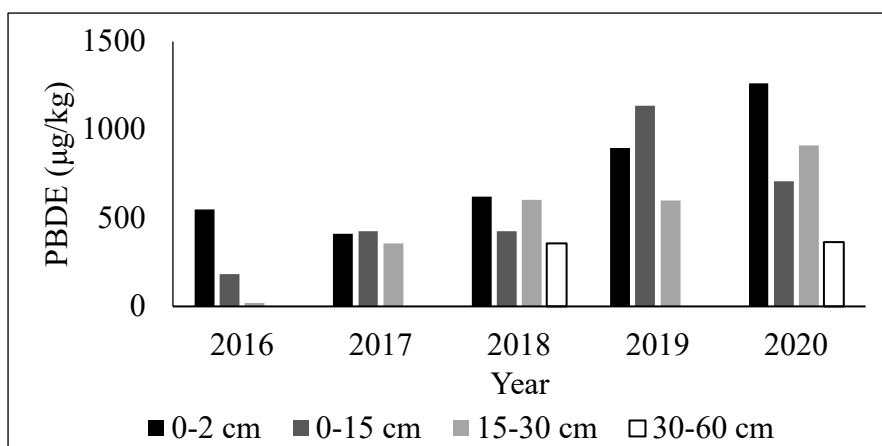


圖5-23 105-109年O祿-3號區不同深度土壤之DBDE污染濃度變化



結果與討論

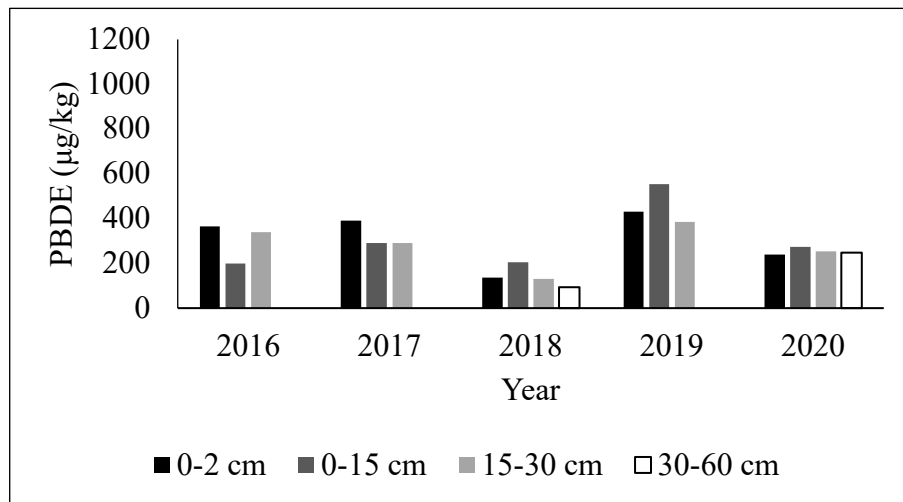


圖5-24 105-109年O祿-4號區不同深度土壤之DBDE污染濃度變化

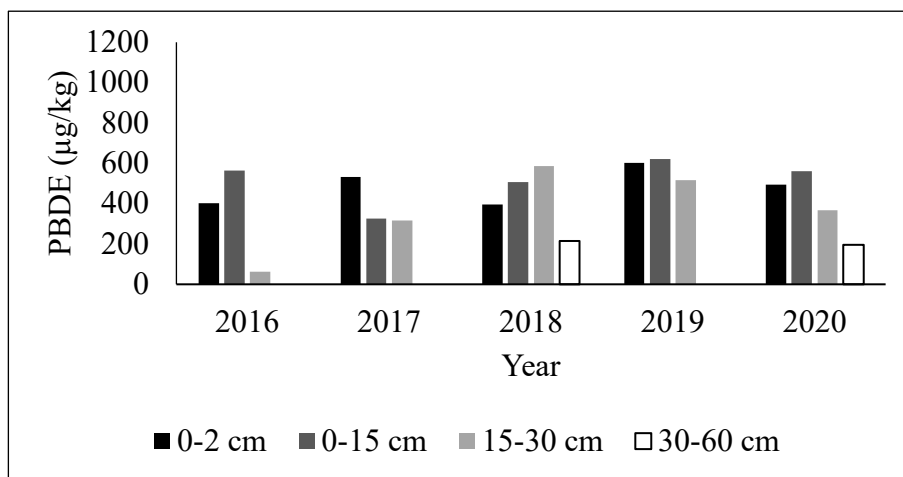


圖5-25 105-109年O祿-5號區不同深度土壤之DBDE污染濃度變化

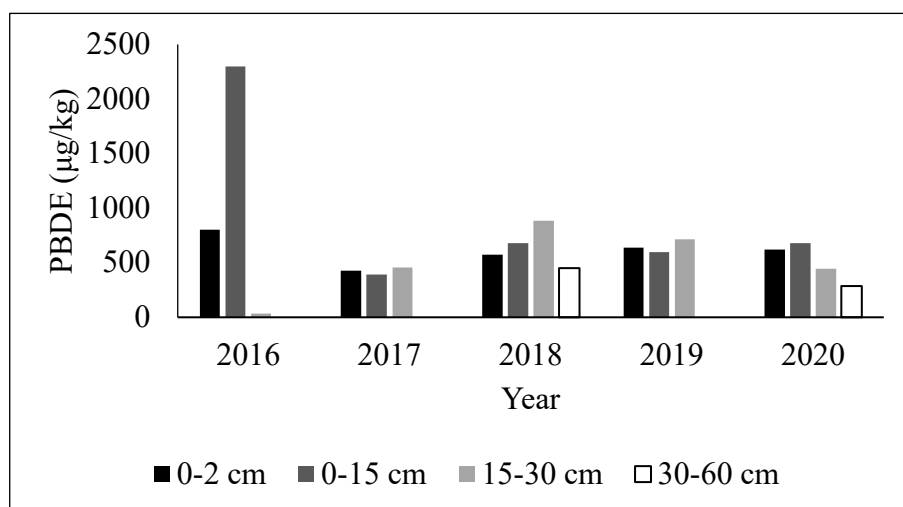


圖5-26 105-109年O祿-6號區不同深度土壤之DBDE污染濃度變化



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

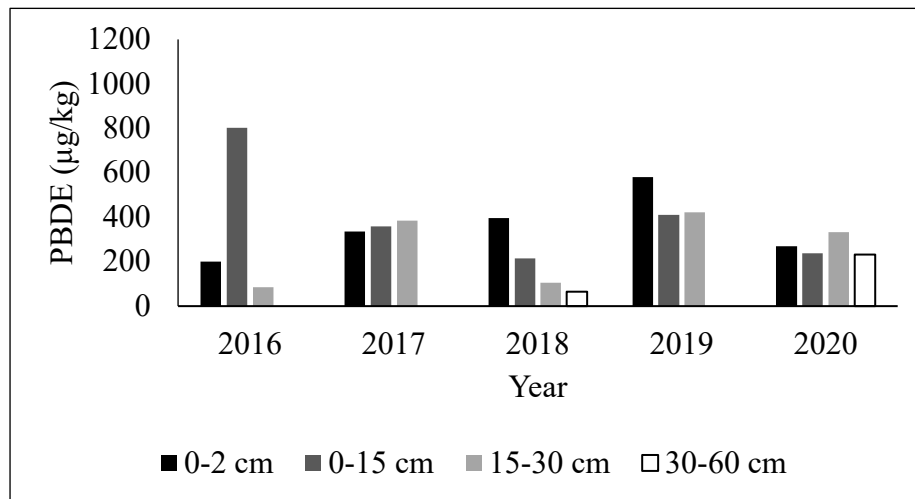


圖5-27 105-109年O祿-7號區不同深度土壤之DBDE污染濃度變化

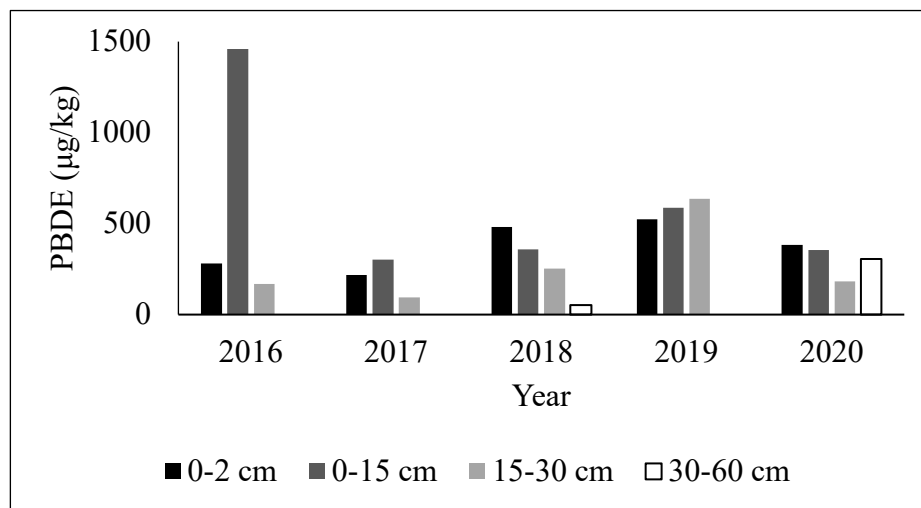


圖5-28 105-109年O祿-8號區不同深度土壤之DBDE 污染濃度變化

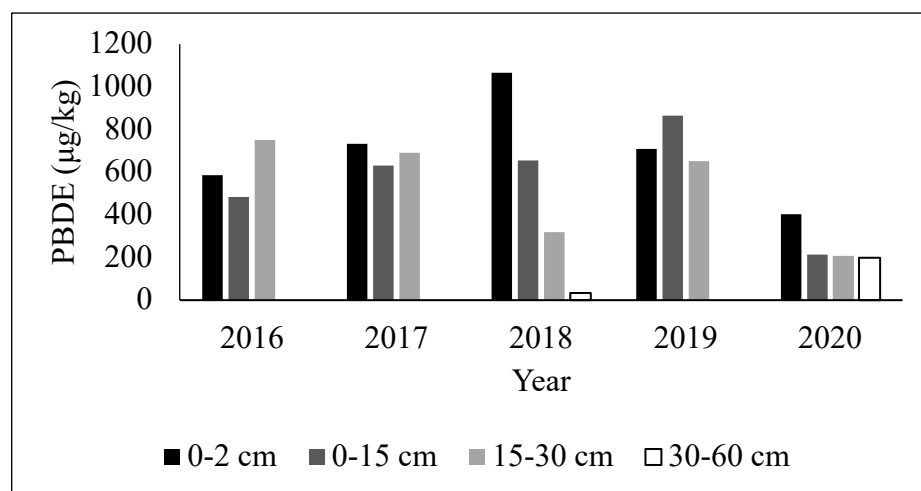


圖5-29 105-109年O祿-9號區不同深度土壤之DBDE污染濃度變化



依據以上調查分析結果發現，在不同區塊/深度之區域中 DBDE 的濃度具差異性，尤其是 105-108 年土壤中 30- 60 cm 處 DBDE 濃度較低，但今年此處濃度較高，以及其他特定區域中的 DBDE 濃度持續升高。由於現地土壤質地不均質性及污染物分布差異，可能造成各取樣點間之濃度差異，但已採取相同地點採樣。過去有研究指出在潮濕土壤中，DBDE 容易隨積水或吸附於土壤細小顆粒以及有機質而隨水移動(Cheng et al., 2014; Chou et al., 2019)。故現地可能是因為土壤經過雨水淋洗作用導致淺層污染物有向下移動擴散的趨勢；另外，該農田曾為水田應有耕犁層存在，使得污染物可能在該土層產生水平傳輸的現象。

5.6 DBDE 污染現地土壤試驗

5.6.1 土壤性質分析

本計畫高濃度污染場址農地土壤經比重計法測定砂土 54 %，坩土 38 %，粘土 8 %，屬於砂壤土，而土壤 pH 約 6.78，屬於 pH 中性。土壤中碳、氮與硫組成分別為碳含量 1.06 %、氮含量 0.15 %與硫含量 0.36 %，土壤有機碳含量約 1.6 %。一般而言，土壤中有機質含量越高，越容易吸附有機污染物。此外該地區之地下水層深度超過一公尺以上。

5.6.2 零價鐵與微生物降解 DBDE 試驗

5.6.2.1 篩選微生物處理 DBDE 試驗

本年度以 DBDE 污染現地之表面土壤水溶液塗佈於含高濃度 DBDE 之固態培養基，挑選型態明顯相異之菌落，以四區畫線法進一步分離，篩選出四株菌株，以其來源 Taoyuan 縮寫命名為 TY1、TY2、TY3 和 TY4，用以進行後續之 DBDE 降解試驗。

圖 5-30 為四區畫線於 DBDE 固態培養基之菌株型態與生長情形。TY1 菌落直徑約 0.3 公分，呈白色絮狀之圓形，外有一圈透明物，菌落間生長分布較分散。TY2 菌落直徑約 0.3 公分，呈現為絮狀小顆粒，整顆泛水光，菌落之間生長分布密集。TY3 菌落為直徑約 0.1 公分之黃色均勻小圓形顆粒，菌落間生長分布較密集。TY4 之菌落直徑約為 1.0 公分，內部為白色絮狀，絮狀外緣則有許多觸角形狀之結構為成圓周向外延伸，最外側則有一圈淡黃色物。



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

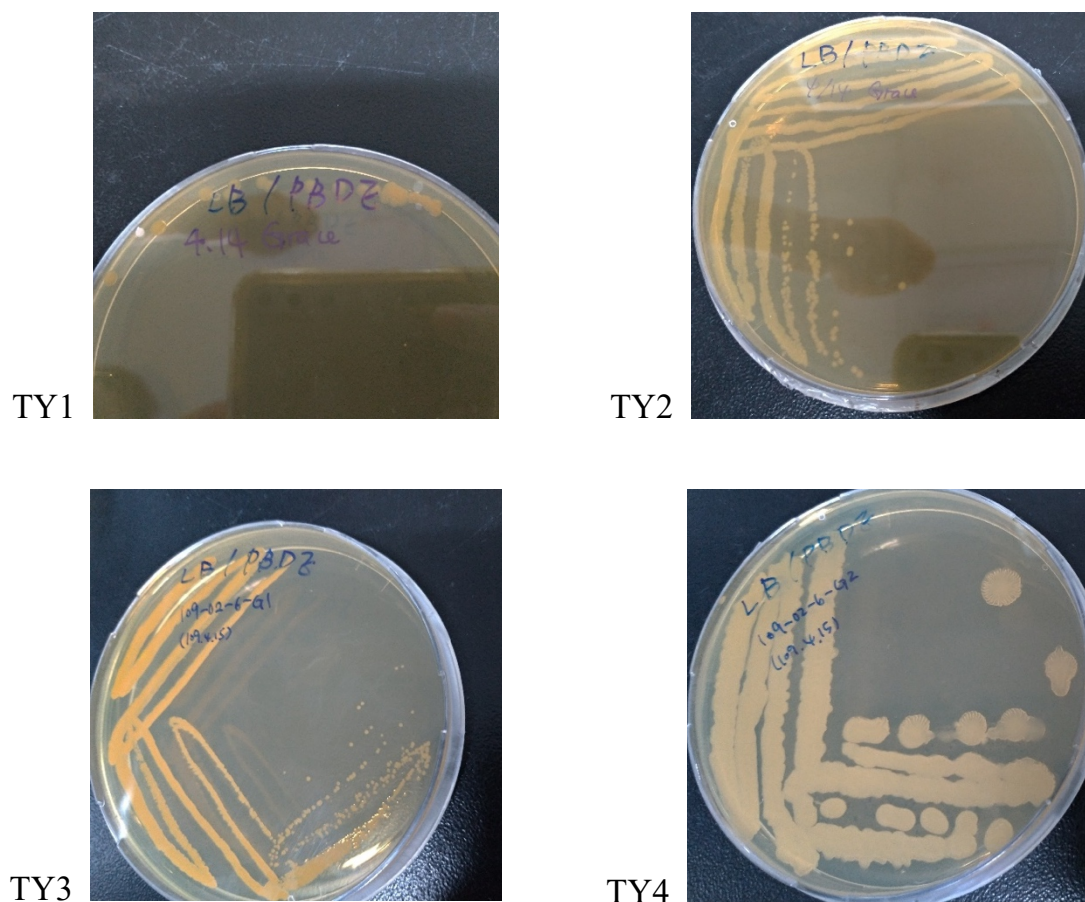


圖 5-30 由現地土壤篩選出之菌株，四區畫線於 DBDE 固態培養基上之菌株型態與生長情形。

以前述之 TY1、TY2、TY3 以及 TY4 於好氧情況下進行為期四天的 DBDE 移除試驗。從不同菌株之四區劃線固態培養基中，各挑選一單一菌株接入低鹽 LB 培養液，於 35°C，110 rpm 下震盪培養一天，調整至菌液 O.D. 值為 1 進行試驗。每個時間點為單一個樣品，每個樣品三重複。實驗組每個樣品添加 1 mL 菌液，空白組添加 1 mL 低鹽 LB。所添加之 DBDE 濃度均為 1 ppm。所有樣品在 35°C，110 rpm 下震盪培養。於固定時間點取出樣品，添加 3 倍體積之正己烷進行全萃取 40 分鐘後，以氣相層析儀進行 DBDE 濃度分析。

四株菌的移除試驗結果如圖 5-31 至圖 5-34 所示。TY1 在經過第一天後，便降解超過一半之 DBDE 濃度，降解第二天測得之 DBDE 濃度與第一天相近，移除約 58%，第四天降解之 DBDE 濃度增至 80%，速率常數為 0.269 day^{-1} ，是四株菌當中移除效果最佳的。TY2 在兩天後的降解表現不明顯，僅分別移除 12% 及 9% 之 DBDE，至第四天時降解約 45% 之 DBDE，速率常數為 0.0499 day^{-1} 。TY3 和 TY4 在試驗進行的兩天後有明顯降解，在第二天時移除的 DBDE 分別為 22%



及 39%，速率常數分別為 0.00290 day^{-1} 及 0.0262 day^{-1} 。比較上述四株菌的 DBDE 降解情形，TY1 在好氧條件下具有降解 DBDE 之潛力，可應用於暴露在空氣中之高濃度污染表土，因此將取 TY1 作後續 16S rDNA 定序與鑑定，確認其菌種並分辨是否屬於動植物或人類之病原菌，再考慮是否進行後續之試驗。另外，在降解實驗中，部分菌種(TY3 與 TY4)在四天後，污染物有回升的趨勢，可能是由於土壤不均質與回收率變異未來將持續改善。

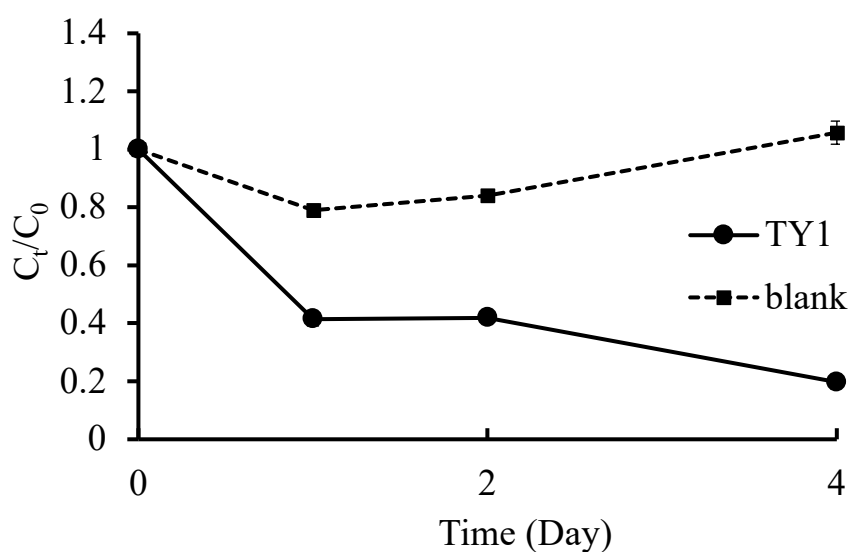


圖5-31 菌株TY1處理1 ppm十溴二苯醚濃度變化。

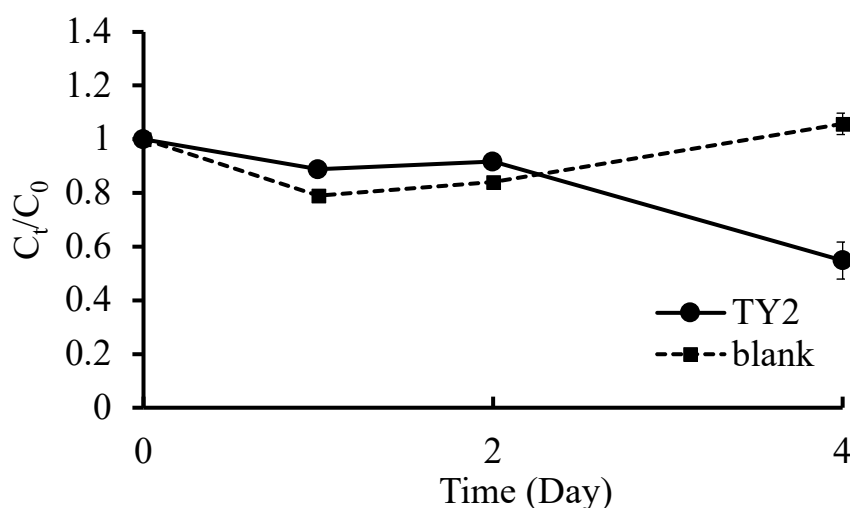


圖5-32 菌株TY2處理1 ppm十溴二苯醚濃度變化。



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

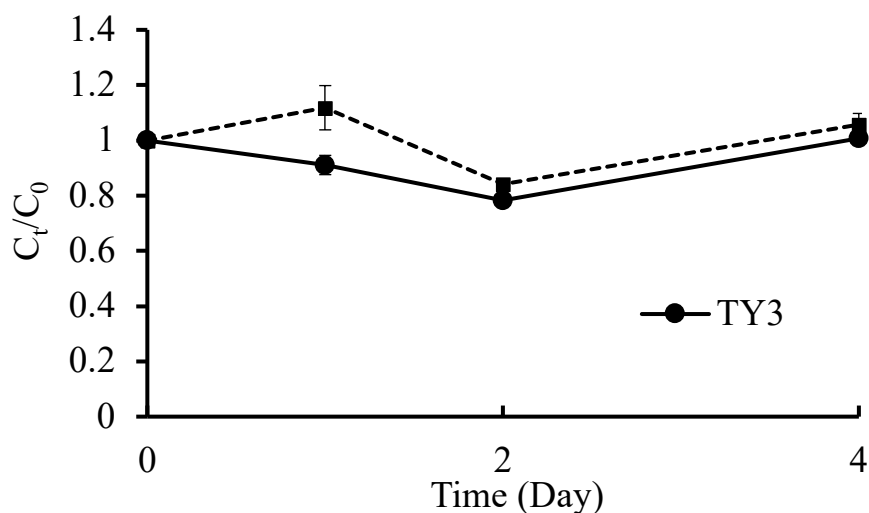


圖5-33 菌株TY3處理1 ppm十溴二苯醚濃度變化。

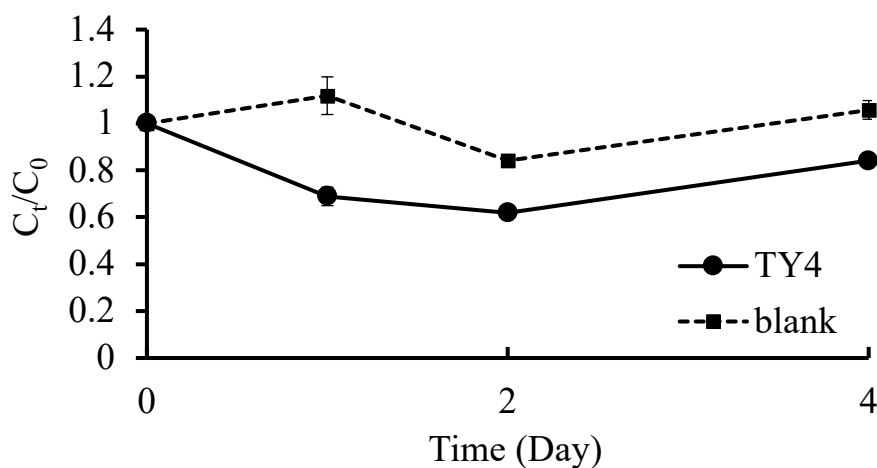


圖5-34 菌株TY4處理1 ppm十溴二苯醚濃度變化。

將四種未知菌序列進行NCBI資料庫比對，四種菌之序列顯示於附表一。發現TY1為 *Bacillus megaterium* 是一種革蘭氏陽性菌，能幫助植物的根抵抗病原菌的侵襲，也被證時具有固氮作用，在過去研究中發現該菌種可以分解有害有機化合物(Feng et al., 2018; Akcay and Kaya, 2019)，其生物安全度為 1。TY2 為 *Pseudomonas plecoglossicida*，是一種革蘭氏陰性菌，其生物安全度為 1。TY3 為 *Chryseobacterium cucumeris*，是一種革蘭氏陰性菌，為黃色素菌落，其生物安全度為 1。TY4 為 *Bacillus subtilis*，是一種革蘭氏陽性菌，普遍存在於土壤及植物體表，其生物安全度為 1。因為這四種菌生物安全度皆為 1，皆不是人類或動植物的病原菌，因此進行後續十溴二苯醚降解試驗。



5.5.2.2 微生物結合零價鐵去除 DBDE 試驗

利用現地土壤篩選出的 TY1 在好氧條件下具有降解十溴二苯醚之潛力，故將其與零價鐵結合進行去除十溴二苯醚試驗。取 2 g 採樣自現地 6 號區 0 公分 DBDE 濃度為 0.871ppm 之風乾污染土壤，加入 2.5 mL 去離子水配置成污染土水溶液於 4 mL 棕色血清瓶，空白組為不含微生物和零價鐵，對照組中分別加入 0.25 mL，O.D 值為 0.400 之 TY1 以及 0.6 g 零價鐵，實驗組則將 0.25 mL，O.D 值為 0.400 之 TY1 結合 0.6 g 零價鐵進行試驗，之後放進 25°C，120 rpm 恆溫水浴槽，取點 0、2、4、6 及 8 天，萃取後以氣相層析儀分析。

圖 5-35 可以看出，在加入零價鐵處理下之情況，2 天後移除約 72 %之十溴二苯醚，但之後則持平不再降解更多的十溴二苯醚；另外，在加入微生物 TY1 處理下之情況，2 天後移除約 59%之十溴二苯醚，之後其降解速率趨緩，直到第 8 天時共移除約 87%之十溴二苯醚；而在微生物與零價鐵搭配之實驗組，在 2 天後移除約 50%之十溴二苯醚，但之後移除效率下降緩慢，在 4 天後移除約 54%之十溴二苯醚，6 天後達到 61%之移除率，最後在第 8 天時僅能移除約 62%之十溴二苯醚。整體來看，在添加零價鐵或是微生物 TY1 之處理組中，能在 48 小時內迅速移除一半以上之十溴二苯醚，唯結合微生物與零價鐵之共同處理下，其十溴二苯醚移除速率些微降低，此結果顯示微生物與零價鐵結合會降低其移除十溴二苯醚之能力。

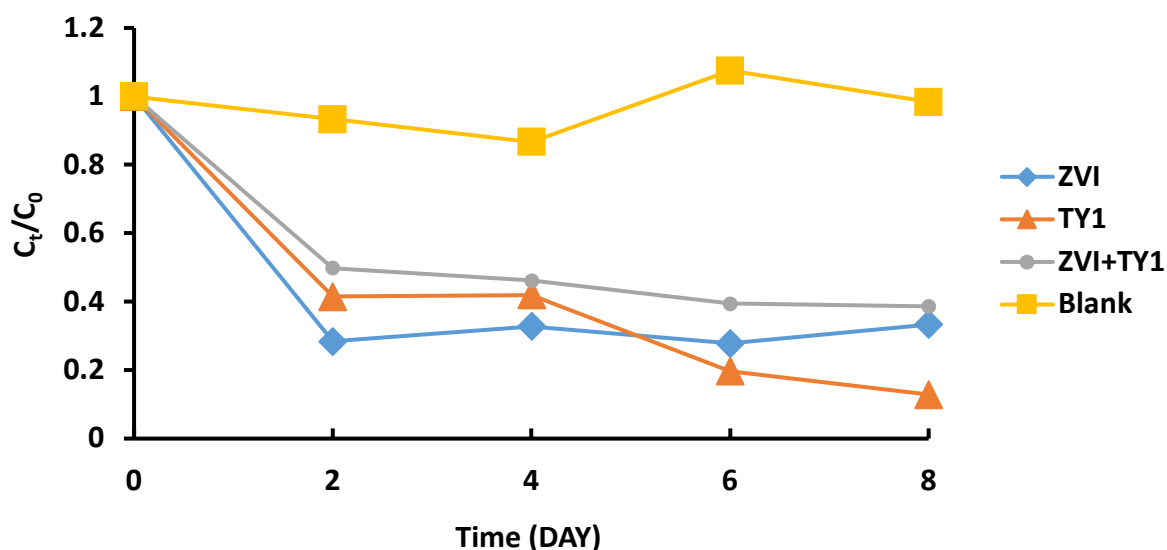


圖 5-35 微生物 TY1 結合零價鐵(ZVI)去除含 0.871ppm 十溴二苯醚現地污染土壤試驗。



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

單獨加入微生物於土壤中之移除十溴二苯醚表現較差但也能穩定移除，當單獨加入零價鐵時能較有效地移除十溴二苯醚，而零價鐵與微生物混合處理時會些微降低移除速率。目前實驗發現的零價鐵與微生物混合處理導致多溴二苯醚降解速率略微下降之現象，可能由於實驗中土壤溶液因浸水呈還原態，較適合零價鐵還原多溴二苯醚；而現地篩選出的微生物為好氧菌，在缺氧的情況下難以生存，同時亦會去消耗零價鐵供應的電子，從而導致抑制降解的現象發生，造成零價鐵與微生物混合處理多溴二苯醚時會些微降低移除速率。預計將以較低劑量還原鐵處理污染土壤，而針對污染濃度較高之土壤區塊再施用較高劑量還原鐵，並將還原鐵以少量多次之方式，添加於污染場址之土壤後，進行全區覆水，再以翻土機進場翻土混合，試圖弭補以微生物結合零價鐵去除 DBDE 時所衍生的問題。一般而言，由於微生物不易於現地土壤生存，而添加過多零價鐵會使土壤鐵含量過高，不易未來對植物的生長。綜合微生物與零價鐵也未有大幅增加去除效果，所以建議考慮其他方法處理。

5.6.3 溶劑清洗試驗

5.6.3.1 不同溶劑與清洗時間之 DBDE 去除試驗

如圖 5-36 所示，為比較不同溶劑應用於污染土壤之可行性，本計畫使用甲醇 (MeOH)、乙醇 (EtOH) 等低毒性醇類作為溶劑配方，並與 hexane/acetone 溶液作比較，每一組樣品秤 10 g 污染土壤(W1)與 30 mL 清洗溶劑加入 125 mL 錐形瓶中，以石蠟膜封口後秤總重(W2)。放入設定為 25°C、125 rpm 之恆溫震盪槽搖盪 4 小時後取出，再秤一次總重(W3)以確認溶劑揮發量。在剛取出及取出後一小時後，觀察不同清洗溶劑中土壤顆粒的沉降情形。放置一小時後，將錐形瓶上層的清液倒至一 50 mL 的離心管中，盡量不倒入底部的土壤顆粒；將錐形瓶放於通風櫥中抽風 24 小時，待土壤乾燥後，每一樣品取 2 g 土壤，以 7 mL hexane/acetone (1:1) 進行震盪萃取，萃取液上 GC 分析。

觀察實驗後不同清洗溶劑中土壤顆粒的沉降情形，剛從震盪槽取出時，四組樣品中的大部分土壤都沉降回錐形瓶底部，然 hexane/acetone 溶液雖仍有土壤顆粒懸浮，卻明顯較澄清的淡土黃色；而其他三組之清洗溶液目視混濁度相近，呈現混濁的土棕色。經過一小時，四組樣品之清洗溶液都有變得更加澄清，觀察完後便將各組之清洗溶液清倒至離心管。另外，使用各種溶劑會使土壤產生脫水的現象，間接造成微生物無法存活之影響。

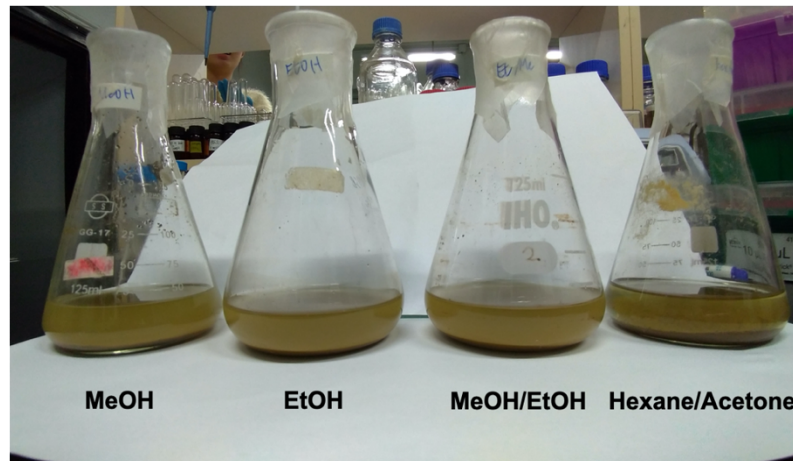


圖 5-36 甲醇 (MeOH)、乙醇 (EtOH)、MeOH/EtOH (1:1)、Hexane/Acetone (1:1) 等溶劑之清洗試驗。

圖 5-37 可以看出，在 4 小時之恆溫震盪後，甲醇 (MeOH) 移除約 80 % 之十溴二苯醚，乙醇 (EtOH) 移除約 53 % 之十溴二苯醚，MeOH/EtOH (1:1) 移除約 60 % 之十溴二苯醚，Hexane/Acetone (1:1) 則移除約 88 % 之十溴二苯醚。然而，Hexane/Acetone 價格較高，並不適宜大量使用於農地處理。整體來看，在溶劑清洗試驗之處理中，顯示單獨使用甲醇 (MeOH) 比單獨使用乙醇 (EtOH) 及 MeOH/EtOH (1:1) 具有較好的移除污染土壤中十溴二苯醚之能力。

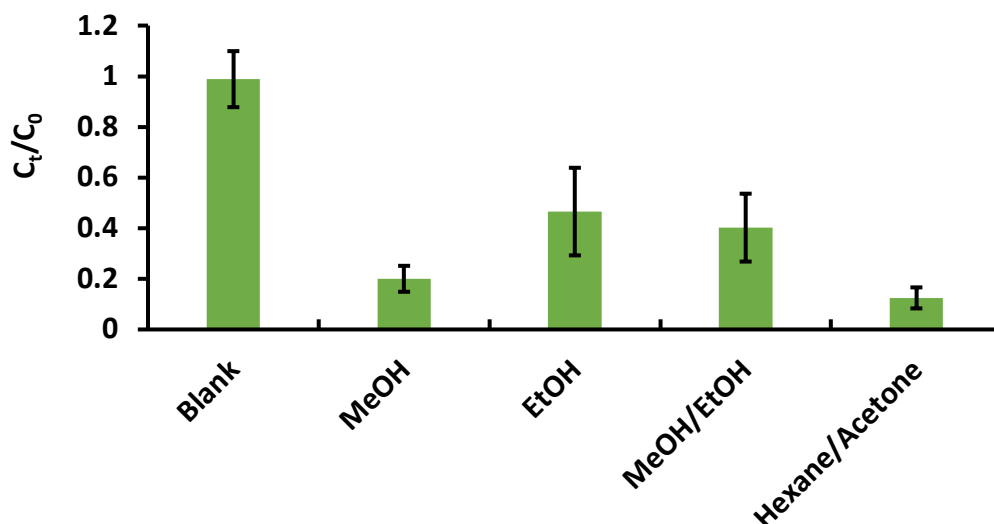


圖 5-37 使用甲醇 (MeOH)、乙醇 (EtOH)、MeOH/EtOH (1:1)、Hexane/Acetone (1:1) 等溶劑對污染土壤進行溶劑清洗試驗。



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

因為甲醇 (MeOH) 具有較好的移除污染土壤中十溴二苯醚之能力，故以甲醇 (MeOH) 進行不同清洗時間條件下，從污染土壤中移除 DBDE 之能力試驗。如上述方法，取適量污染土壤，在震盪培養箱中，以 25°C 進行震盪清洗。圖 5-38 可以看出，隨著清洗時間的增加，甲醇 (MeOH) 移除污染土壤中十溴二苯醚之能力也隨之上升，分別從 10 min、20min 及 30min 可移除污染土壤中 54%、73% 及 82% 的十溴二苯醚，到可以移除污染土壤中十溴二苯醚。然而，土壤清洗技術因有機溶劑使用量大在處理成本上較高，不適宜污染土壤整治，而且處理後的溶劑需再進行後續處理，又需要另外一筆處理的成本。另外，雖然甲醇對污染土壤具有較好的移除能力，但溶劑使用量大及後續殘留甲醇可能造成土壤生態不良影響的問題，應加以考量未來實場應用時的因應方法。

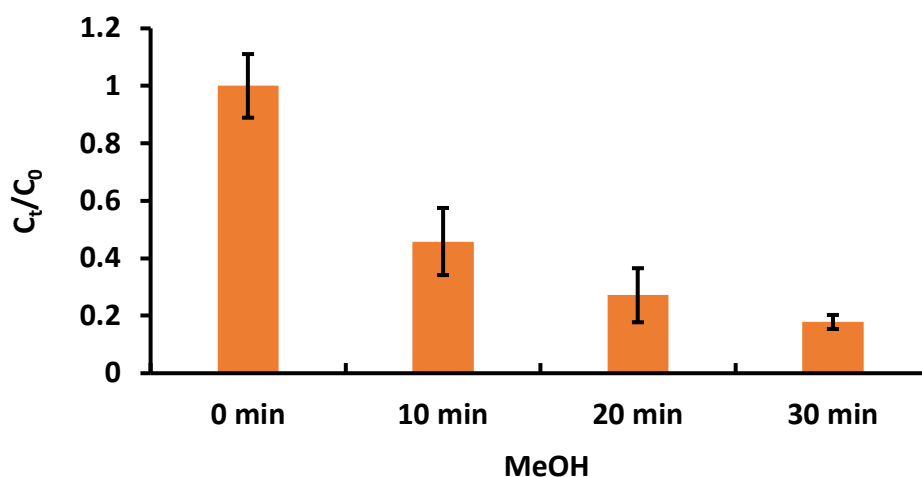


圖 5-38 使用甲醇 (MeOH) 溶劑進行不同清洗時間條件下，對污染土壤進行溶劑清洗試驗。

5.6.4 熱處理法

5.6.4.1 不同溫度與持溫時間熱處理試驗

高濃度污染場址農地土壤經過曬乾、磨細以及過篩處理後，取適量填充於耐熱容器中，以電熱爐加熱進行熱處理試驗，而加熱後從電熱爐取出之土壤，於室溫下自然放涼，收至乾淨夾鏈袋內並存放於黑暗環境中，之後進行在不同條件下，測試加熱去除污染土壤中 DBDE 的效果。取同一採樣點之適量土壤，



從室溫開始加熱至最終溫度，在不同最終溫度下持續加熱一段時間後取出，以上述萃取分析土壤中 PBDEs 濃度，比較不同溫度與持溫時間熱處理試驗對 DBDE 的移除效果的影響。在 300°C 至 450°C 下，進行 10 分鐘、20 分鐘以及 30 分鐘持溫之不同組熱處理試驗組別。每個組別有三重複樣品，每一樣品為盛裝於陶瓷坩堝中約 10 公克之現地污染土壤。試驗時，電熱爐排風口以不鏽鋼集氣管連接至一正己烷收集瓶，收集熱處理廢氣。每組試驗結束後，繼續持溫 30 分鐘收集電熱爐中廢氣，並更換新的集氣管與正己烷收集瓶再進行下一組試驗。

原 DBDE 濃度 0.394 至 0.528 mg/kg 之現地污染土壤經過 300°C、350°C、400°C 以及 450°C 下不同持溫時間之熱處理後，其中 DBDE 殘留濃度之分析結果如圖 5-39 至圖 5-42。在 300°C 溫度 30 分鐘熱處理下，可將 DBDE 濃度減少至 0.0347 mg/kg，與未經處理之現地污染濃度相比，移除約 91.2% 之 DBDE，而相同溫度下熱處理 10 分鐘及 20 分鐘後 DBDE 殘留濃度分別為 0.0760 mg/kg 及 0.0628 mg/kg，移除率約為 80.7% 和 84.1%。在 350°C 溫度下，處理 30 分鐘後 DBDE 減少至 0.0301 mg/kg，濃度減少約 92.4%，對移除 DBDE 有最好的成效，而熱處理 10 分鐘及 20 分鐘後殘餘 DBDE 濃度則分別為 0.0812 mg/kg 與 0.0333 mg/kg，移除率約 79.4% 及 91.5%。經過 400°C 處理 30 分鐘後，現地污染土壤中的 DBDE 移除率達 100%，處理 20 分鐘後殘餘 0.00562 mg/kg，移除率約 98.6%，處理 10 分鐘後殘餘 0.0248 mg/kg，移除率約 94%。在 450°C 溫度下，處理 10 分鐘、20 分鐘以及 30 分鐘後，現地污染土壤中殘餘濃度分別為 0.0447 mg/kg、0.0173 mg/kg 以及 0.0139 mg/kg，移除率分別約為 91.5%、96.7% 以及 97.4%。

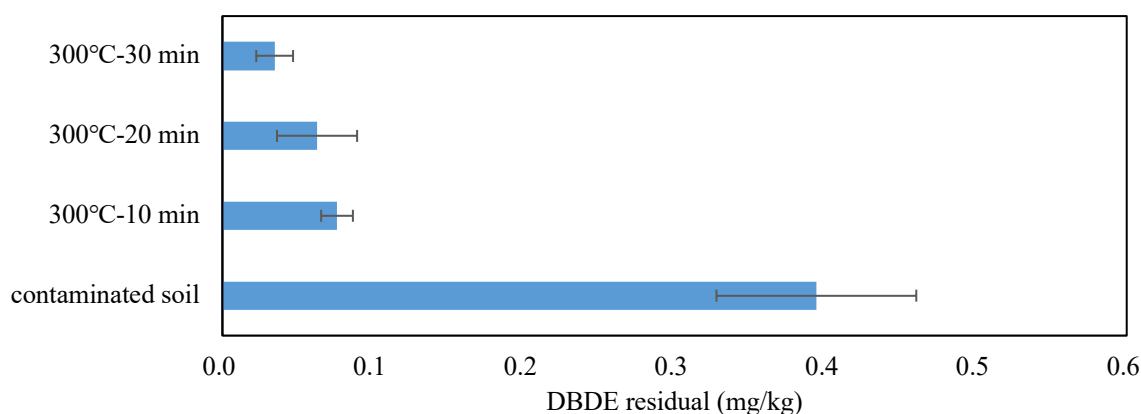


圖5-39 300°C下不同持溫時間對污染土壤中DBDE之移除效果。



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

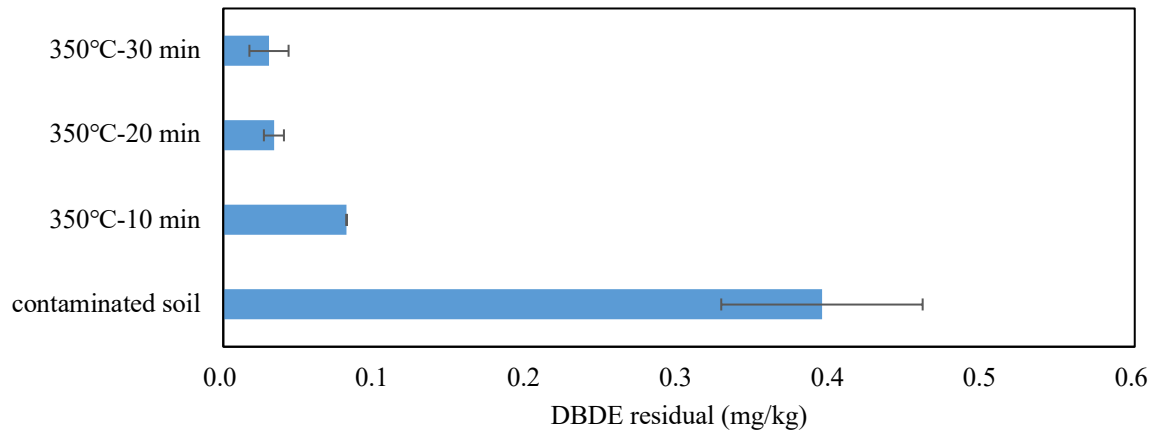


圖5-40 350°C下不同持溫時間對污染土壤中DBDE之移除效果。

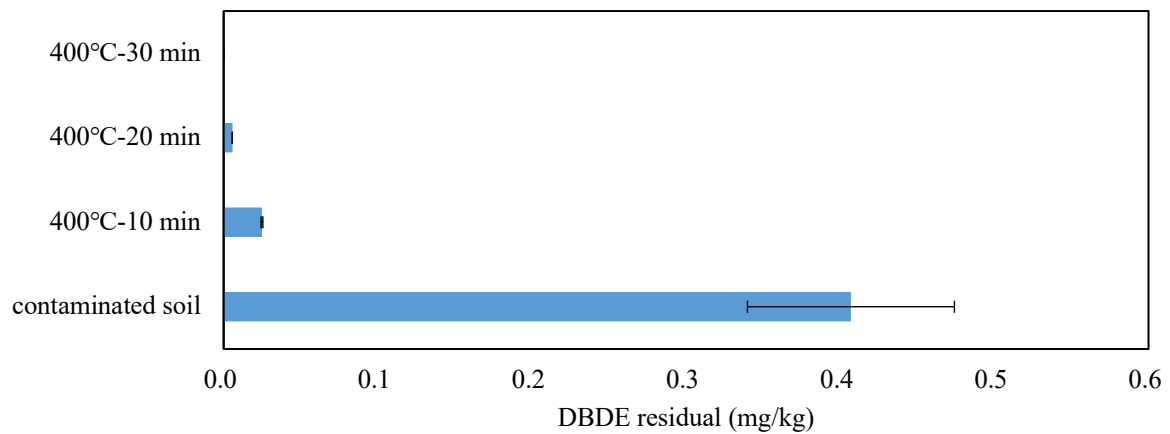


圖5-41 400°C下不同持溫時間對污染土壤中DBDE之移除效果。

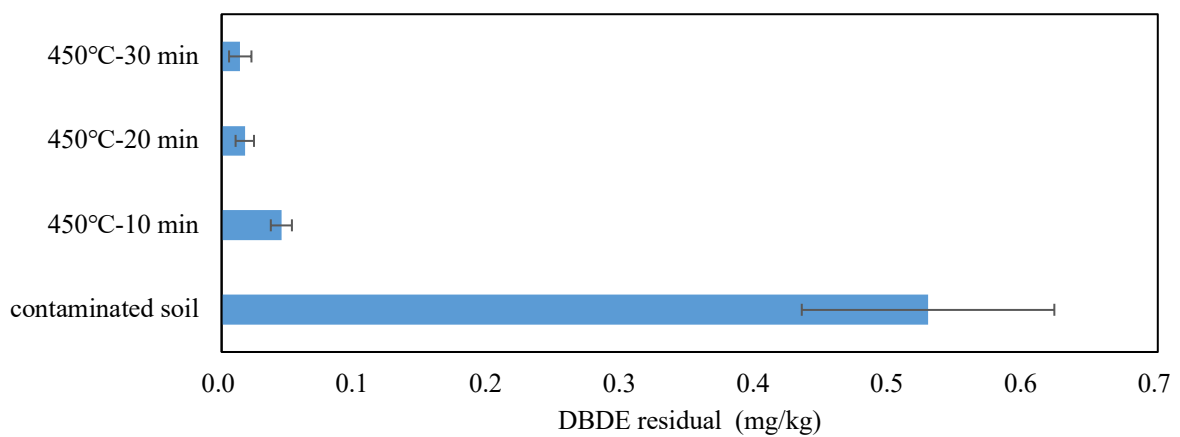


圖5-42 450°C下不同持溫時間對污染土壤中DBDE之移除效果。



如表 5-13 所示，從熱處理結果可看出以 300°C 以上之溫度進行 10 分鐘至 30 分鐘熱處理，便可有效將現地土壤中之 DBDE 污染濃度大幅降低。此外，參考 DBDE 之熱分解溫度約為 450°C，在本次計畫之高溫處理下，比對所購買之低溴數及中間產物等標準品，但 DBDE 降解之相關中間產物濃度皆低於可偵測濃度，而收集瓶中之正己烷亦無檢出 DBDE(如表 5-13)，故目前推測多溴二苯迷的移除可能是發生熱分解，或者是在高溫下與土壤中礦物發生催化分解反應。目前結果顯示，有效破壞溫度為 300°C 以上，450°C 以上之熱處理有完全破壞土壤中 DBDE 之可能性。根據處理溫度的條件，熱處理可分為低溫(100–350 °C)和高溫(350–600 °C)熱脫附。熱處理的優點在於能夠快速移除污染，將土壤中的污染物經揮發移除或氧化破壞(Barontini et al., 2004a; Sato et al., 2010; Qi et al., 2014)。

表 5-13 不同溫度與持溫時間熱處理後污染土壤與收集瓶中之 DBDE 濃度

	DBDE conc. (mg/kg)	
	土壤	收集瓶
contaminated soil	0.3941 ± 0.0663	N.D.
300°C-10 min	0.0760 ± 0.0105	N.D.
300°C-20 min	0.0628 ± 0.0266	N.D.
300°C-30 min	0.0347 ± 0.0122	N.D.

	DBDE conc. (mg/kg)	
	土壤	收集瓶
contaminated soil	0.3941 ± 0.0663	N.D.
350°C-10 min	0.0812 ± 0.0001	N.D.
350°C-20 min	0.0333 ± 0.0066	N.D.
350°C-30 min	0.0376 ± 0.0129	N.D.

	DBDE conc. (mg/kg)	
	土壤	收集瓶
contaminated soil	0.4069 ± 0.0671	N.D.
400°C-10 min	0.0248 ± 0.0006	N.D.
400°C-20 min	0.0056 ± 0.0001	N.D.
400°C-30 min	N.D.	N.D.

	DBDE conc. (mg/kg)	
	土壤	收集瓶
contaminated soil	0.5282 ± 0.0944	N.D.
450°C-10 min	0.0447 ± 0.0079	N.D.
450°C-20 min	0.0173 ± 0.0069	N.D.
450°C-30 min	0.0139 ± 0.0084	N.D.

* N.D. = Not detected. MDL = 0.0708 mg/kg and IDL = 0.00787 mg/kg.

本計劃利用熱處理使污染土壤中的 DBDE 濃度大幅降低，但 300°C 至 450°C 的高溫熱處理，會造成土壤有機態碳的分解，以及對土壤結構產生破壞等影響。為了探討不同溫度對土壤有機質的破壞，透過元素分析儀分析熱處理後污



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

染土壤中的 C、N 及 H 元素之重量百分比，結果如圖表 5-13，在不同溫度熱處理 30 min 後污染土壤中的 C 元素含量從原本 1.442-1.45%，分別下降至 300°C 的 0.967-1.025%、350°C 的 0.631-0.645%、400°C 的 0.309-0.333% 以及 450°C 的 0.155-0.16%；而其中的 N 元素含量從原本 0.125-0.137%，分別下降至 350°C 的 0.123-0.133%、400°C 的 0.076-0.083% 以及 450°C 的 0.048-0.062%；另外，H 元素含量從原本 0.597-0.614%，分別下降至 300°C 的 0.472-0.477%、350°C 的 0.437-0.441%、400°C 的 0.428-0.430% 以及 450°C 的 0.395-0.399%。

目前結果顯示，有效破壞溫度為 300°C 以上，450°C 以上之熱處理有完全破壞土壤中 DBDE 之可能性。高溫熱處理能夠有效去除土壤中 DBDE，同時也會造成土壤有機態碳的分解，我們的試驗結果發現，於 300°C、350°C、400°C 及 450°C 的熱處理分別造成 31%、56%、78% 及 89% 的土壤有機態碳的分解

表 5-14 以元素分析儀分析不同溫度熱處理 30 min 後污染土壤中的 C、N 及 H 元素之重量百分比。

Sample	C (%)	N (%)	H (%)
6 號區-0 cm	1.450	0.137	0.614
6 號區-0 cm	1.442	0.125	0.597
300°C	0.967	0.142	0.477
300°C	1.025	0.159	0.472
350°C	0.645	0.123	0.437
350°C	0.631	0.133	0.441
400°C	0.333	0.083	0.428
400°C	0.309	0.076	0.430
450°C	0.155	0.048	0.399
450°C	0.160	0.062	0.395



5.6.4.2 不同升溫速率

加熱速率之快慢可能影響吸附於土壤顆粒上的 PBDEs 將發生熱脫附抑或是熱分解反應(Bai et al., 2014; Zhao et al., 2019)，而本實驗以移除污染物取得乾淨土壤為目標，因此有必要進行不同加熱速率之試驗，並分析處理過後土壤中所殘留之 DBDE 濃度。原 DBDE 濃度 0.531 至 0.801 mg/kg 之現地污染土壤經過 400°C 以及 450°C 下不同持溫時間及升溫速率之熱處理後，其中 DBDE 殘留濃度之分析結果如圖 5-43。在 400°C 溫度 10 分鐘熱處理下，以 5°C/min、10°C/min、20°C/min 與 40°C/min 處理之現地污染土壤移除率分別為 85%、95%、81% 及 77%；在 400°C 溫度 30 分鐘熱處理下，以 5°C/min、10°C/min、20°C/min 與 40°C/min 處理之現地污染土壤移除率分別為 96%、99%、67% 及 30%；在 450°C 溫度 10 分鐘熱處理下，以 5°C/min、10°C/min、20°C/min 與 40°C/min 處理之現地污染土壤移除率分別為 97%、98%、70% 及 52%；在 450°C 溫度 30 分鐘熱處理下，以 5°C/min、10°C/min、20°C/min 與 40°C/min 處理之現地污染土壤移除率分別為 87%、85%、53% 及 70%。有關升溫速率對熱處理的影響，之前的研究報導指出快速升溫條件會限制脫溴反應發生(Grause et al., 2011)。

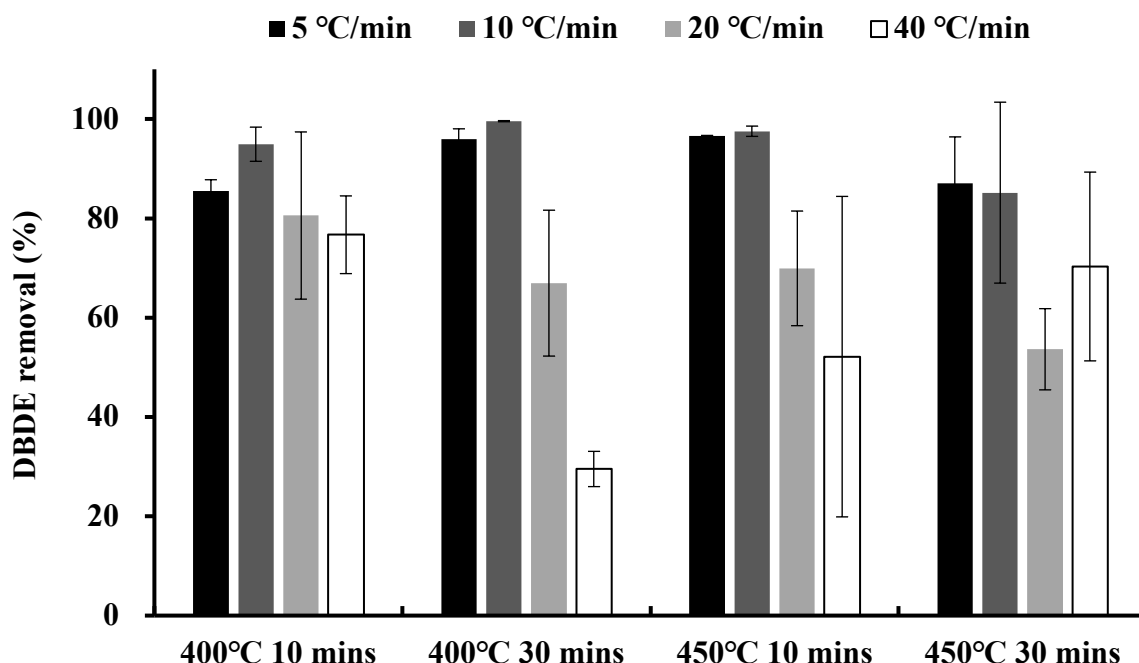


圖 5-43 不同溫度、持溫時間及升溫速率對污染土壤中 DBDE 之移除效果。



5.6.4.3 不同加熱時間

取同一採樣點之適量土壤，從室溫開始以 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 之升溫速率加熱至 450°C 溫度熱處理下，在不同持溫時間持續加熱一段時間後取出，以上述萃取分析土壤中 PBDEs 濃度，比較不同持溫時間熱處理試驗對 DBDE 的移除效果的影響。在 450°C 下，分別進行 1 小時、1.5 小時、2 小時、4 小時、6 小時及 8 小時之不同組熱處理試驗。每個組別有三重複樣品，每一樣品為盛裝於陶瓷坩堝中約 10 公克之現地污染土壤。原 DBDE 濃度 1.868 mg/kg 之現地 6 號區污染土壤以 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 之升溫速率加熱至 450°C 下，經過不同持溫時間之熱處理後，其中 DBDE 殘留濃度之分析結果如圖 5-44。1 小時之熱處理試驗，DBDE 移除率達 93%；1.5 小時之熱處理試驗，DBDE 移除率達 95%；2 小時、4 小時、6 小時及 8 小時之不同加熱時間處理試驗，DBDE 移除率高達 100%。

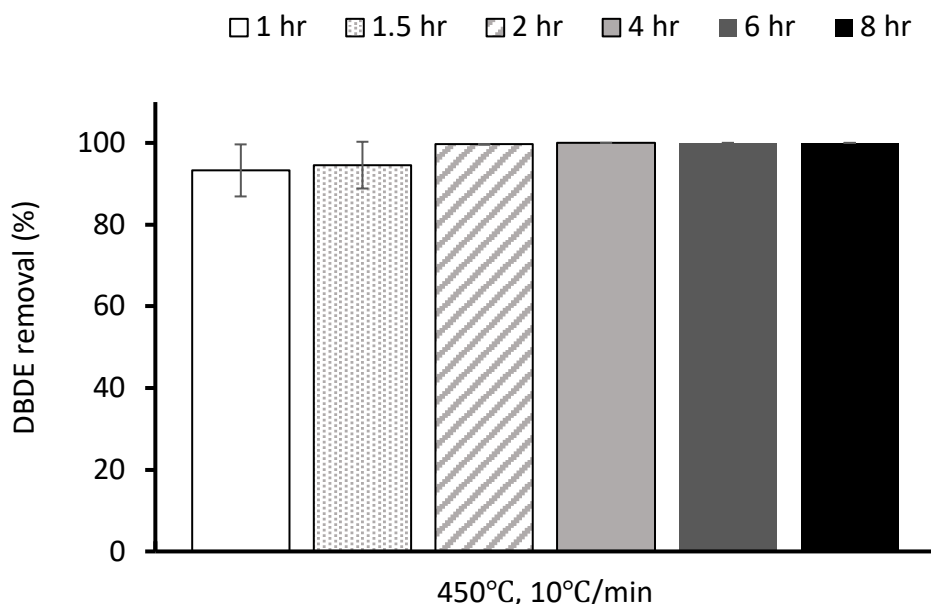


圖 5-44 以 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 之升溫速率加熱至 450°C 時，不同持溫時間對污染土壤中 DBDE 之移除效果。

5.6.4.4 不同污染土壤量

為進一步執行小區域現地土壤試驗，因此有必要取較大量之污染土壤進行熱處理試驗，以釐清不同土壤厚度及不同面積之耐熱容器盛裝，對於吸附於土壤顆粒上的 DBDEs 發生熱脫附抑或是熱分解反應影響。分別取樣 1.0 kg、1.5 kg、2.0 kg 等原 DBDE 濃度 1.868 mg/kg 之現地 6 號區污染土壤，以 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 之升溫速



率加熱至450°C下，經過2小時持溫時間之熱處理後，其中 DBDE 殘留濃度之分析結果如表5-15。取樣1.0 kg、1.5 kg、2.0 kg 之污染土壤經熱處理試驗，均已處理到 DBDE 無法偵測。

表 5-15 以 10°C/min 之升溫速率加熱至 450°C時，持溫 2 小時對不同重量之污染土壤中 DBDE 之移除效果。

	Contaminated soil	1.0 kg	1.5 kg	2.0 kg
DBDE residual (mg/kg)	1.87 ± 0.844	N.D.	N.D.	N.D.

* N.D. = Not detected. MDL = 0.0708 mg/kg.

5.6.5 小區域污染土壤試驗

以先前試驗所得之最佳處理參數，取場址內3號區塊之土壤實際進行PBDEs 污染物之處理，以進一步評估該方法用於大面積污染場址整治之可行性。本計畫評估比較零價鐵結合微生物、溶劑清洗、熱處理等方法之整治效益，其中零價鐵結合微生物之多溴二苯醚移除試驗，當單獨加入零價鐵時能較有效的移除多溴二苯醚，而單獨加入微生物於土壤中之移除多溴二苯醚表現較差但也能穩定移除。然而，目前實驗發現的零價鐵與微生物混合處理，反而導致多溴二苯醚降解速率略微下降之現象。

目前實驗發現，熱處理法與溶劑清洗法皆可將多溴二苯醚從土壤移除，轉移至收集瓶之溶劑或清洗溶劑中，達到污染物縮減的效果。雖然土壤清洗可以有效處理多溴二苯醚污染土壤，但是經過土壤清洗程序之後，所收集產生之受污染固體基質(如污泥)與廢水，必須進一步加以處置。另外，該多溴二苯醚高濃度污染場址之農地土壤分析結果，粉土佔 38 %，黏土佔 8 %，由於土壤清洗程序一般較不適用於粉土與黏土含量較高(30 ~ 50 %)的土壤，或含高腐植質的土壤，可能使得土壤清洗處理程序變得較為複雜，且土壤清洗系統設置的空間需求大。此外，處理時具有增加二次污染的風險。因此，對於將來進行土壤整治之處置尚存有疑慮。

故本計畫探討小區域污染土壤試驗以熱處理法作為主要之處置方法，並評估其用於現地污染整治的可能性。如表5-15所示，目前處理現地污染場址3號區



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

之0 cm 表土 (125 公斤) 及0-15 cm 土壤 (126 公斤)，共計251公斤，其多溴二苯醚污染濃度分別為 1.87 ± 0.844 mg/kg 及 0.71 ± 0.444 mg/kg。為了加速試驗進度，首先取剛採樣之潮濕土壤23 kg 進行熱處理試驗，以 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 之升溫速率加熱至 450°C 時，持溫2小時來測試現地污染土壤中 DBDE 之移除效果。結果顯示，熱處理後土壤中多溴二苯醚之殘留量為 0.07 ± 0.041 mg/kg，其移除率為96%。為了降低水分蒸發在熱處理多溴二苯醚之影響，先將現地土壤進行風乾，再進一步以 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 之升溫速率加熱至 450°C 時，持溫2小時來移除現地污染土壤之多溴二苯醚，其中 DBDE 殘留濃度之分析結果如表5，不論是0 cm 表土或是0-15 cm 土壤，經熱處理試驗後，均已移除 DBDE 到偵測極限以下。

表 5-16 以 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 之升溫速率加熱至 450°C 時，持溫 2 小時對小區域污染土壤進行試驗，探討熱處理法移除多溴二苯醚污染之效益。

土壤樣品	重量 (kg)	熱處理前 DBDE conc. (mg/kg)	土壤狀態	熱處理後 DBDE conc. (mg/kg)
0 cm 總重 125 公斤	12.5	1.87 ± 0.844	潮濕土壤	0.07 ± 0.041
	10.5	1.87 ± 0.844	潮濕土壤	0.07 ± 0.041
	12	1.87 ± 0.844	風乾土壤	N.D.
	11	1.87 ± 0.844	風乾土壤	N.D.
	14	1.87 ± 0.844	風乾土壤	N.D.
	13.5	1.87 ± 0.844	風乾土壤	N.D.
	13	1.87 ± 0.844	風乾土壤	N.D.
	15	1.87 ± 0.844	風乾土壤	N.D.
	11	1.87 ± 0.844	風乾土壤	N.D.
	12.5	1.87 ± 0.844	風乾土壤	N.D.
3號區				
0-15 cm 總重 126 公斤	15	0.71 ± 0.444	風乾土壤	N.D.
	12	0.71 ± 0.444	風乾土壤	N.D.
	13	0.71 ± 0.444	風乾土壤	N.D.
	10	0.71 ± 0.444	風乾土壤	N.D.
	13.5	0.71 ± 0.444	風乾土壤	N.D.
	11.5	0.71 ± 0.444	風乾土壤	N.D.
	13.5	0.71 ± 0.444	風乾土壤	N.D.
	11	0.71 ± 0.444	風乾土壤	N.D.
	14	0.71 ± 0.444	風乾土壤	N.D.
	12.5	0.71 ± 0.444	風乾土壤	N.D.

* N.D. = Not detected. MDL = 0.0708 mg/kg.

5.6.6 經濟效益評估

為了評估各種處理法移除多溴二苯醚污染之經濟效益，我們設定處理之污



染土壤總重為100 kg，並應用成本效益分析方法，計算本計畫使用的各種處理法對於移除多溴二苯醚污染土壤所引發之成本，為便於進行比較分析，均以貨幣計量方法，予以計算評估其成本效益。

利用現地土壤篩選出的 TY1在好氧條件下，將其與零價鐵結合進行去除十溴二苯醚試驗。依據之前的結果，以2 g 風乾之現地污染土壤，加入2.5 mL 去離子水配成污染土水溶液置於4 mL 棕色血清瓶，實驗組則將0.25 mL，O.D 值為0.400之 TY1結合0.6 g 零價鐵進行試驗。依上述設定處理之污染土壤總重為100 kg，需要12.5 L 之菌液，經詢問菌株培養發酵廠商，預估生產一噸之菌液需花費20萬元，預估生產12.5 L 之菌液需花費2,500元；另為結合零價鐵去除 DBDE 試驗，需要3 kg 之零價鐵粉，其成本為600元。故欲結合微生物與零價鐵處理100 kg 之污染土壤，其所需成本為3,100元，即31,000元/公噸土壤。

使用甲醇 (MeOH)作為溶劑配方，用來進行十溴二苯醚清洗試驗。依據之前的結果，每一組樣品秤10 g 污染土壤與30 mL 清洗溶劑加入125 mL 瓶中。依上述設定處理之污染土壤總重為100 kg，需要300 L 之甲醇溶液，預估需花費3萬3千元，即33萬元/公噸土壤。在不同溶劑清洗試驗中，雖然甲醇對污染土壤具有較好的移除能力，但溶劑使用成本及甲醇廢液的後續處理費用，可能造成更高的成本效益，使得溶劑清洗並非一個經濟的整治方案。

本計劃的熱脫附試驗結果可知，以10°C/min 之升溫速率加熱至450°C時，持溫2小時，作為去除土壤中 PBDEs 之最佳參數。以台電的電費每度電1.36元計算，目前使用高溫爐其功率為3.6 kW，每次可處理12 kg，使用時間2.75小時，故欲熱處理100 kg 之污染土壤，其所需成本為133.9元，即1,339元/公噸土壤。

綜合以上分析，可以得知熱處理與其他試驗方法相比較，其經濟效益最高。因此，將來可以著手規劃以熱處理為主要的處理技術，以發展出有效率且可執行的 PBDEs 高濃度污染土壤整治手段。

5.6 結論與建議

近年來在世界各地多處土壤中均可偵測到 PBDEs 存在，包括製造與使用的工廠及電子廢棄物掩埋場，都可能對周遭土地造成污染。此外亦有調查指出，處理含 PBDEs 廢棄物的過程中，也會釋放出這類潛在的有害物質。根據現有的研究資料指出中國、其他亞洲及非洲地區的污染情況最為嚴重，背後原因可能來自對電子廢棄物的不當處置所造成(McGrath et al., 2017)。本計畫中研究的 PBDEs 污染農田相較世界各地土壤污染研究資料而言污染濃度偏高，但鑒於近



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

年來的研究報告與國際間的重視程度，對於 PBDEs 的持續監控及整治有其迫切性及必要性。

目前針對高濃度污染農田土壤採樣分析對比往年結果後，發現在特定區域中仍含有高濃度的 PBDEs，並且污染物有向下移動擴散的趨勢，可能由於土壤淋洗作用導致污染下潛移動。因此，建議應當持續對該高濃度污染農田進行土壤中 PBDEs 的濃度監控。

由 DBDE 污染土壤篩選出四株可能之降解菌，其中 TY1 結合零價鐵進行污染土壤 DBDE 移除試驗。微生物 TY1 與零價鐵混合處理污染土壤時，反而產生抑制其降解 DBDE 的影響。因此，不建議使用微生物與零價鐵結合作為污染土壤整治之處理方法。

使用甲醇、乙醇等醇類作為溶劑配方進行 PBDEs 清洗試驗，結果發現甲醇具有較好的移除污染土壤中十溴二苯醚之能力。然而，土壤清洗技術因清洗劑使用量大在處理成本上較高，且需再處理廢液等，使得土壤清洗不是一個經濟的整治方案。

由本計劃試驗結果可知，藉由嘗試不同溫度、加熱時間、土量等熱處理條件，以 10°C/min 之升溫速率加熱至 450°C 時，持溫 2 小時，作為去除土壤中 PBDEs 之最佳參數。而且熱脫附是常用於修復受污染土壤的方法之一，其優點為處理週期短、效率高，以及回收土壤和污染物的能力等，已被廣泛運用於修復受到高濃度污染迫切需要處理的場址。經進行小區域之整治試驗，結果熱處理對於去除土壤中的 PBDEs 確實具有相當好的效果，加上初步的經濟效益分析，建議將來可以著手規劃以熱處理為最終處理技術，以發展出有效率且可執行的 PBDEs 高濃度污染土壤整治手段。

由於斯德哥爾摩公約已將多溴二苯醚列為持久性污染物(persistent organic pollutants, POPs)，更在 106 年 5 月將十溴二苯醚(decabrominated diphenyl ether, DBDE)列入並禁用。此些化合物不僅對環境有害，近年來有更多文獻證實 PBDEs 對人體等具有危害性與致癌性。但目前國內對 DBDE 尚未有相關規範標準，故建議國內相關單位應著手進行規劃，根據本研究之調查結果及初步之整治試驗，提供政府相關部會對於 DBDE 的危害風險評估與未來的整治方法等需求。有鑒於近年來的研究報告與國際間的重視程度，對於 PBDEs 的持續監控及整治有其迫切性及必要性。未來除了需要持續監控此高污染場址土壤之污染濃度以外，也需持續研究發展更有效之整治技術，並研討規劃如何應用優化技術於實際現地之整治。



六、參考文獻

- 李俊璋, 田倩蓉, 孫逸民, 2014. 103-104 年度毒性化學物質環境流布背景調查計畫 (第一年).
- 李俊璋, 孫, 田倩蓉, 2017. 105-106 年度毒性化學物質環境流布背景調查計畫 (第 2 年). 108 年化學物質環境流布調查成果手冊.
- 陳怡伶, 2013. 固定污染源戴奧辛及重金屬排放調查及管制計畫.
- 陳怡伶, 2014. 103 年度固定污染源戴奧辛及重金屬調查及管制計畫固定污染源戴奧辛及重金屬調查及管制計畫.
- Abbasi, G., Li, L., Breivik, K., 2019. Global Historical Stocks and Emissions of PBDEs. *Environmental science & technology*.
- Akcaay, K., Kaya, Y., 2019. Isolation, characterization and molecular identification of a halotolerant *Bacillus megaterium* CTBmeg1 able to grow on halogenated compounds. *Biotechnology & Biotechnological Equipment* 33, 945-953.
- Altarawneh, M., Dlugogorski, B.Z., Kennedy, E.M., Mackie, J.C., 2009. Mechanisms for formation, chlorination, dechlorination and destruction of polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans (PCDD/Fs). *Progress in energy and combustion science* 35, 245-274.
- Bai, S., Chen, T., Qi, Z., Liu, J., Lu, S., Bo, Z., Li, X., 2014. Effect of carrier gas flow rate and heating rate on thermal desorption of polychlorinated biphenyls in contaminated soil. *CIESC Journal* 6, 2256-2263.
- Barontini, F., Cozzani, V., Marsanich, K., Raffa, V., Petarca, L., 2004a. An experimental investigation of tetrabromobisphenol A decomposition pathways. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis* 72, 41-53.
- Barontini, F., Marsanich, K., Petarca, L., Cozzani, V., 2004b. The thermal degradation process of tetrabromobisphenol A. *Industrial & engineering chemistry research* 43, 1952-1961.
- Bieniek, D., Bahadir, M., Korte, F., 1989. Formation of heterocyclic hazardous compounds by thermal degradation of organic compounds. *Heterocycles (Sendai)* 28, 719-722.
- Branchi, I., Capone, F., Alleva, E., Costa, L.G., 2003. Polybrominated diphenyl ethers: Neurobehavioral effects following developmental exposure. *Neurotoxicology* 24, 449-462.
- Breivik, K., Armitage, J.M., Wania, F., 2014. Long-range transport of industrial-use organic contaminants with e-waste: Possible implications for emissions, transport and environmental exposure.
- Chai, M., Ding, H., Shen, X., Li, R., 2019. Contamination and ecological risk of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in surface sediments of mangrove wetlands: A nationwide study in China. *Environmental pollution* 249, 992-1001.
- Chen, C.-Y., Wang, C.-K., Shih, Y.-H., 2010. Microbial degradation of 4-monobrominated diphenyl ether in an aerobic sludge and the DGGE analysis of diversity. *Journal of Environmental Science and Health Part B* 45, 379-385.
- Chen, J., Wang, C., Pan, Y., Farzana, S.S., Tam, N.F.-Y., 2018. Biochar accelerates microbial reductive debromination of 2,2',4,4'-tetrabromodiphenyl ether (BDE-47) in anaerobic mangrove sediments. *Journal of hazardous materials* 341, 177-186.
- Chen, Y., Li, J., Chen, L., Chen, S., Diao, W., 2012. Brominated flame retardants



- (BFRs) in waste electrical and electronic equipment (WEEE) plastics and printed circuit boards (PCBs). *Procedia environmental sciences* 16, 552-559.
- Chen, Y., Zhang, A., Li, H., Peng, Y., Lou, X., Liu, M., Hu, J., Liu, C., Wei, B., Jin, J., 2020. Concentrations and distributions of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in surface soils and tree bark in Inner Mongolia, northern China, and the risks posed to humans. *Chemosphere* 247, 125950.
- Cheng, J.-O., Ko, F.-C., 2018. Occurrence of PBDEs in surface sediments of metropolitan rivers: Sources, distribution pattern, and risk assessment. *Science of the Total Environment* 637, 1578-1585.
- Cheng, Z., Wang, Y., Wang, S., Luo, C., Li, J., Chaemfa, C., Jiang, H., Zhang, G., 2014. The influence of land use on the concentration and vertical distribution of PBDEs in soils of an e-waste recycling region of South China. *Environmental Pollution* 191, 126-131.
- Chou, T.-H., Ou, M.-H., Wu, T.-Y., Chen, D.-Y., Shih, Y.-h., 2019. Temporal and spatial surveys of polybromodiphenyl ethers (PBDEs) contamination of soil near a factory using PBDEs in northern Taiwan. *Chemosphere* 236, 124117.
- Das, S., Aria, A., Cheng, J.-O., Souissi, S., Hwang, J.-S., Ko, F.-C., 2020. Occurrence and distribution of anthropogenic persistent organic pollutants in coastal sediments and mud shrimps from the wetland of central Taiwan. *PloS one* 15, e0227367.
- Deng, C., Chen, Y., Li, J., Li, Y., Li, H., 2016. Environmental pollution of polybrominated diphenyl ethers from industrial plants in China: a preliminary investigation. *Environmental Science and Pollution Research* 23, 7012-7021.
- Dien, N.T., Hirai, Y., Miyazaki, T., Sakai, S.-i., 2016. Factors influencing atmospheric concentrations of polybrominated diphenyl ethers in Japan. *Chemosphere* 144, 2073-2080.
- Elie, M.R., Williamson, R.E., Clausen, C.A., Yestrebky, C.L., 2014. Application of a magnesium/co-solvent system for the degradation of polycyclic aromatic hydrocarbons and their oxygenated derivatives in a spiked soil. *Chemosphere* 117, 793-800.
- Evangelopoulos, P., Kantarelis, E., Yang, W., 2015. Investigation of the thermal decomposition of printed circuit boards (PCBs) via thermogravimetric analysis (TGA) and analytical pyrolysis (Py-GC/MS). *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis* 115, 337-343.
- Feng, N.-X., Yu, J., Mo, C.-H., Zhao, H.-M., Li, Y.-W., Wu, B.-X., Cai, Q.-Y., Li, H., Zhou, D.-M., Wong, M.-H., 2018. Biodegradation of di-n-butyl phthalate (DBP) by a novel endophytic *Bacillus megaterium* strain YJB3. *Science of The Total Environment* 616-617, 117-127.
- Gao, S., Hong, J., Yu, Z., Wang, J., Yang, G., Sheng, G., Fu, J., 2011. Polybrominated diphenyl ethers in surface soils from e-waste recycling areas and industrial areas in South China: Concentration levels, congener profile, and inventory. *Environmental toxicology and chemistry* 30, 2688-2696.
- Giordano, G., Kavanagh, T.J., Costa, L.G., 2008. Neurotoxicity of a polybrominated diphenyl ether mixture (DE-71) in mouse neurons and astrocytes is modulated by intracellular glutathione levels. *Toxicology and applied pharmacology* 232, 161-168.



- Grause, G., Karakita, D., Ishibashi, J., Kameda, T., Bhaskar, T., Yoshioka, T., 2011. TG-MS investigation of brominated products from the degradation of brominated flame retardants in high-impact polystyrene. *Chemosphere* 85, 368-373.
- Gu, S.-Y., Ekpeghere, K.I., Kim, H.-Y., Lee, I.-S., Kim, D.-H., Choo, G., Oh, J.-E., 2017. Brominated flame retardants in marine environment focused on aquaculture area: Occurrence, source and bioaccumulation. *Science of the Total Environment* 601, 1182-1191.
- Hong, W.-J., Jia, H., Ding, Y., Li, W.-L., Li, Y.-F., 2018. Polychlorinated biphenyls (PCBs) and halogenated flame retardants (HFRs) in multi-matrices from an electronic waste (e-waste) recycling site in Northern China. *Journal of Material Cycles and Waste Management* 20, 80-90.
- Ilyas, M., Sudaryanto, A., Setiawan, I.E., Riyadi, A.S., Isobe, T., Takahashi, S., Tanabe, S., 2011. Characterization of polychlorinated biphenyls and brominated flame retardants in sediments from riverine and coastal waters of Surabaya, Indonesia. *Marine pollution bulletin* 62, 89-98.
- Ji, K., Choi, K., Giesy, J.P., Musarrat, J., Takeda, S., 2011. Genotoxicity of several polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and hydroxylated PBDEs, and their mechanisms of toxicity. *Environmental science & technology* 45, 5003-5008.
- Jonsson, S., Lind, H., Lundstedt, S., Haglund, P., Tysklind, M., 2010. Dioxin removal from contaminated soils by ethanol washing. *Journal of hazardous materials* 179, 393-399.
- Kim, U.-J., Yen, N.T.H., Oh, J.-E., 2014. Hydroxylated, methoxylated, and parent polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in the inland environment, Korea, and potential OH-and MeO-BDE source. *Environmental science & technology* 48, 7245-7253.
- Kim, Y.-J., Osako, M., Sakai, S.-i., 2006. Leaching characteristics of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) from flame-retardant plastics. *Chemosphere* 65, 506-513.
- Klinčić, D., Dvorščak, M., Jagić, K., Mendaš, G., Herceg Romanić, S., 2020. Levels and distribution of polybrominated diphenyl ethers in humans and environmental compartments: a comprehensive review of the last five years of research. *Environmental Science and Pollution Research* 27, 5744-5758.
- Law, R.J., Covaci, A., Harrad, S., Herzke, D., Abdallah, M.A.-E., Fernie, K., Toms, L.-M.L., Takigami, H., 2014. Levels and trends of PBDEs and HBCDs in the global environment: status at the end of 2012. *Environment International* 65, 147-158.
- Lee, B.-D., Hosomi, M., 2000. Ethanol washing of PAH-contaminated soil and Fenton oxidation of washing solution. *Journal of Material Cycles and Waste Management* 2, 24-30.
- Lee, C.-C., Hsieh, C.-Y., Chen, C.S., Tien, C.-J., 2020. Emergent contaminants in sediments and fishes from the Tamsui River (Taiwan): Their spatial-temporal distribution and risk to aquatic ecosystems and human health. *Environmental Pollution* 258, 113733.
- Lee, E., Kim, T.H., Choi, J.S., Nabanata, P., Kim, N.Y., Ahn, M.Y., Jung, K.K., Kang, I.H., Kim, T.S., Kwack, S.J., 2010. Evaluation of liver and thyroid toxicity in Sprague-Dawley rats after exposure to polybrominated diphenyl ether BDE-209. *The Journal of toxicological sciences* 35, 535-545.



- Leung, A.O., Luksemburg, W.J., Wong, A.S., Wong, M.H., 2007. Spatial distribution of polybrominated diphenyl ethers and polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans in soil and combusted residue at Guiyu, an electronic waste recycling site in southeast China. *Environmental science & technology* 41, 2730-2737.
- Li, B., Sun, S.-J., Huo, C.-Y., Li, W.-L., Zhu, N.-Z., Qi, H., Kong, L.-J., Li, Y.-F., Ma, W.-L., 2016a. Occurrence and fate of PBDEs and novel brominated flame retardants in a wastewater treatment plant in Harbin, China. *Environmental Science and Pollution Research* 23, 19246-19256.
- Li, R., Ding, H., Guo, M., Shen, X., Zan, Q., 2020. Do pyrene and *Kandelia obovata* improve removal of BDE-209 in mangrove soils? *Chemosphere* 240, 124873.
- Li, T.-Y., Zhou, J.-F., Wu, C.-C., Bao, L.-J., Shi, L., Zeng, E.Y., 2018. Characteristics of polybrominated diphenyl ethers released from thermal treatment and open burning of E-waste. *Environmental science & technology* 52, 4650-4657.
- Li, W.-L., Huo, C.-Y., Liu, L.-Y., Song, W.-W., Zhang, Z.-F., Ma, W.-L., Qiao, L.-N., Li, Y.-F., 2016b. Multi-year air monitoring of legacy and current-use brominated flame retardants in an urban center in northeastern China. *Science of the Total Environment* 571, 633-642.
- Li, Y., Lin, T., Hu, L., Feng, J., Guo, Z., 2016c. Time trends of polybrominated diphenyl ethers in East China Seas: response to the booming of PBDE pollution industry in China. *Environment international* 92, 507-514.
- Liu, J., Lu, G., Zhang, F., Nkoom, M., Yan, Z., Wu, D., 2018. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in a large, highly polluted freshwater lake, China: occurrence, fate, and risk assessment. *International journal of environmental research and public health* 15, 1529.
- Luo, Y., Luo, X.-J., Lin, Z., Chen, S.-J., Liu, J., Mai, B.-X., Yang, Z.-Y., 2009. Polybrominated diphenyl ethers in road and farmland soils from an e-waste recycling region in Southern China: concentrations, source profiles, and potential dispersion and deposition. *Science of the Total Environment* 407, 1105-1113.
- Lv, Q.-Y., Wan, B., Guo, L.-H., Zhao, L., Yang, Y., 2015. In vitro immune toxicity of polybrominated diphenyl ethers on murine peritoneal macrophages: apoptosis and immune cell dysfunction. *Chemosphere* 120, 621-630.
- Macaulay, L.J., Chen, A., Rock, K.D., Dishaw, L.V., Dong, W., Hinton, D.E., Stapleton, H.M., 2015. Developmental toxicity of the PBDE metabolite 6-OH-BDE-47 in zebrafish and the potential role of thyroid receptor β . *Aquatic toxicology* 168, 38-47.
- Mahmood, A., Malik, R.N., Syed, J.H., Li, J., Zhang, G., 2015. Dietary exposure and screening-level risk assessment of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and dechloran plus (DP) in wheat, rice, soil and air along two tributaries of the River Chenab, Pakistan. *Chemosphere* 118, 57-64.
- McGrath, T.J., Ball, A.S., Clarke, B.O., 2017. Critical review of soil contamination by polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and novel brominated flame retardants (NBFRs); concentrations, sources and congener profiles. *Environmental Pollution* 230, 741-757.
- Metelkova, L., Zhakovskaya, Z., Kukhareva, G., Rybalko, A., Nikiforov, V., 2019. Occurrence of PCDD/PCDFs, dioxin-like PCBs, and PBDEs in surface sediments from the Neva River and the Eastern Gulf of Finland



- (Russia). *Environmental Science and Pollution Research* 26, 7375-7389.
- Moltó, J., Egea, S., Conesa, J.A., Font, R., 2011. Thermal decomposition of electronic wastes: mobile phone case and other parts. *Waste management* 31, 2546-2552.
- Mwangi, J.K., Lee, W.-J., Wang, L.-C., Sung, P.-J., Fang, L.-S., Lee, Y.-Y., Chang-Chien, G.-P., 2016. Persistent organic pollutants in the Antarctic coastal environment and their bioaccumulation in penguins. *Environmental pollution* 216, 924-934.
- O'Driscoll, K., Robinson, J., Chiang, W.-S., Chen, Y.-Y., Kao, R.-C., Doherty, R., 2016. The environmental fate of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in western Taiwan and coastal waters: evaluation with a fugacity-based model. *Environmental Science and Pollution Research* 23, 13222-13234.
- Odabasi, M., Bayram, A., Elbir, T., Seyfioglu, R., Dumanoglu, Y., Ornektekin, S., 2010. Investigation of soil concentrations of persistent organic pollutants, trace elements, and anions due to iron-steel plant emissions in an industrial region in Turkey. *Water, Air, & Soil Pollution* 213, 375-388.
- Odabasi, M., Dumanoglu, Y., Falay, E.O., Tuna, G., Altioek, H., Kara, M., Bayram, A., Tolunay, D., Elbir, T., 2016. Investigation of spatial distributions and sources of persistent organic pollutants (POPs) in a heavily polluted industrial region using tree components. *Chemosphere* 160, 114-125.
- Ortuño, N., Lundstedt, S., Lundin, L., 2015. Emissions of PBDD/Fs, PCDD/Fs and PBDEs from flame-retarded high-impact polystyrene under thermal stress. *Chemosphere* 123, 64-70.
- Park, S., Kim, S., Lee, J., Lim, J.-E., Moon, H.-B., Lee, H.-K., Kho, Y., 2018. Monitoring of Polybrominated Diphenyl Ethers (PBDEs) in Soil and Vegetation from South Korea. *ISEE Conference Abstracts*.
- Peng, Y.-H., Chen, M.-k., Shih, Y.-h., 2013. Adsorption and sequential degradation of polybrominated diphenyl ethers with zerovalent iron. *Journal of hazardous materials* 260, 844-850.
- Qi, Z., Chen, T., Bai, S., Yan, M., Lu, S., Buekens, A., Yan, J., Bulmau, C., Li, X., 2014. Effect of temperature and particle size on the thermal desorption of PCBs from contaminated soil. *Environmental Science and Pollution Research* 21, 4697-4704.
- Rotander, A., van Bavel, B., Polder, A., Rigét, F., Auðunsson, G.A., Gabrielsen, G.W., Víkingsson, G., Bloch, D., Dam, M., 2012. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in marine mammals from Arctic and North Atlantic regions, 1986–2009. *Environment international* 40, 102-109.
- Sato, T., Todoroki, T., Shimoda, K., Terada, A., Hosomi, M., 2010. Behavior of PCDDs/PCDFs in remediation of PCBs-contaminated sediments by thermal desorption. *Chemosphere* 80, 184-189.
- Shih, Y.-h., Chou, H.-L., Peng, Y.-H., 2012a. Microbial degradation of 4-monobrominated diphenyl ether with anaerobic sludge. *Journal of hazardous materials* 213, 341-346.
- Shih, Y.-h., Chou, H.-L., Peng, Y.-H., Chang, C.-y., 2012b. Synergistic effect of microscale zerovalent iron particles combined with anaerobic sludges on the degradation of decabromodiphenyl ether. *Bioresource technology* 108, 14-20.
- Shih, Y.-h., Tai, Y.-t., 2010. Reaction of decabrominated diphenyl ether by zerovalent iron nanoparticles. *Chemosphere* 78, 1200-1206.



- Tombesi, N., Pozo, K., Álvarez, M., Příbylová, P., Kukučka, P., Audy, O., Klánová, J., 2017. Tracking polychlorinated biphenyls (PCBs) and polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in sediments and soils from the southwest of Buenos Aires Province, Argentina (South eastern part of the GRULAC region). *Science of The Total Environment* 575, 1470-1476.
- Trellu, C., Mousset, E., Pechaud, Y., Huguenot, D., Van Hullebusch, E.D., Esposito, G., Oturan, M.A., 2016. Removal of hydrophobic organic pollutants from soil washing/flushing solutions: a critical review. *Journal of hazardous materials* 306, 149-174.
- Trinh, M.M., Tsai, C.L., Chang, M.B., 2019. Characterization of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in various aqueous samples in Taiwan. *Science of the total environment* 649, 388-395.
- Tso, C.-P., Shih, Y.-H., 2017. The influence of carboxymethylcellulose (CMC) on the reactivity of Fe NPs toward decabrominated diphenyl ether: The Ni doping, temperature, pH, and anion effects. *Journal of hazardous materials* 322, 145-151.
- Vecchiato, M., Zambon, S., Argiriadis, E., Barbante, C., Gambaro, A., Piazza, R., 2015. Polychlorinated biphenyls (PCBs) and polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in Antarctic ice-free areas: influence of local sources on lakes and soils. *Microchemical Journal* 120, 26-33.
- Venier, M., Salamova, A., Hites, R.A., 2015. Halogenated flame retardants in the Great Lakes environment. *Accounts of chemical research* 48, 1853-1861.
- Vetter, W., Bendig, P., Blumenstein, M., Hägele, F., Behnisch, P.A., Brouwer, A., 2015. Formation of polybrominated dibenzofurans (PBDFs) after heating of a salmon sample spiked with decabromodiphenyl ether (BDE-209). *Environmental Science and Pollution Research* 22, 14530-14536.
- Wang, G., Peng, J., Xu, X., Zhang, D., Li, X., 2016. Polybrominated diphenyl ethers in sediments from the Southern Yellow Sea: Concentration, composition profile, source identification and mass inventory. *Chemosphere* 144, 2097-2105.
- Wang, L.-C., Hsi, H.-C., Wang, Y.-F., Lin, S.-L., Chang-Chien, G.-P., 2010. Distribution of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and polybrominated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans (PBDD/Fs) in municipal solid waste incinerators. *Environmental Pollution* 158, 1595-1602.
- Wang, P., Zhang, Q.-h., Wang, T., Chen, W.-h., Ren, D.-w., Li, Y.-m., Jiang, G.-b., 2012. PCBs and PBDEs in environmental samples from king george island and ardley island, Antarctica. *Rsc Advances* 2, 1350-1355.
- Weber, R., Kuch, B., 2003. Relevance of BFRs and thermal conditions on the formation pathways of brominated and brominated-chlorinated dibenzodioxins and dibenzofurans. *Environment international* 29, 699-710.
- Wu, M.-H., Pei, J.-C., Zheng, M., Tang, L., Bao, Y.-Y., Xu, B.-T., Sun, R., Sun, Y.-F., Xu, G., Lei, J.-Q., 2015. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in soil and outdoor dust from a multi-functional area of Shanghai: levels, compositional profiles and interrelationships. *Chemosphere* 118, 87-95.
- Wu, Z., Xie, M., Li, Y., Gao, G., Bartlam, M., Wang, Y., 2018. Biodegradation of decabromodiphenyl ether (BDE 209) by a newly isolated bacterium from an e-waste recycling area. *AMB Express* 8, 27.
- Xiang, X.-X., Lu, Y.-T., Ruan, Q.-Y., Lai, C., Sun, S.-B., Yao, H., Zhang, Z.-S.,



2020. Occurrence, Distribution, Source, and Health Risk Assessment of Polybrominated Diphenyl Ethers in Surface Soil from the Shen-Fu Region, Northeast China. *Huan Jing ke Xue= Huanjing Kexue* 41, 368-376.
- Yang, C., Shih, Y., 2013. Comparison of microwave-assisted extraction and ultrasonic extraction on recovery for monobrominated diphenyl ether in root crops. *Taiwanese Journal of Agricultural Chemistry and Food Science* 51, 1-6.
- Yang, C.-Y., Chang, M.-l., Wu, S.C., Shih, Y.-h., 2017. Partition uptake of a brominated diphenyl ether by the edible plant root of white radish (*Raphanus sativus* L.). *Environmental Pollution* 223, 178-184.
- Yang, C.-Y., Wu, S.C., Lee, C.-C., Shih, Y.-h., 2018. Translocation of polybrominated diphenyl ethers from field-contaminated soils to an edible plant. *Journal of hazardous materials* 351, 215-223.
- Yin, W., Zhang, Y., Wang, P., Zheng, S., Zhu, C., Han, X., Zhang, Q., Liang, Y., Jiang, G., 2018. Distribution of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in feather and muscle of the birds of prey from Beijing, China. *Ecotoxicology and environmental safety* 165, 343-348.
- Yu, Y., Yin, H., Peng, H., Lu, G., Dang, Z., 2019. Biodegradation of decabromodiphenyl ether (BDE-209) using a novel microbial consortium GY1: Cells viability, pathway, toxicity assessment, and microbial function prediction. *Science of The Total Environment* 668, 958-965.
- Yu, Y.-j., Lin, B.-g., Qiao, J., Chen, X.-c., Li, L.-z., Chen, X.-y., Yang, L.-y., Yang, P., Zhang, G.-z., Zhou, X.-q., 2020. Levels and congener profiles of halogenated persistent organic pollutants in human serum and semen at an e-waste area in South China. *Environment International* 138, 105666.
- Yun, S.H., Addink, R., McCabe, J.M., Ostaszewski, A., Mackenzie-Taylor, D., Taylor, A.B., Kannan, K., 2008. Polybrominated diphenyl ethers and polybrominated biphenyls in sediment and floodplain soils of the Saginaw River watershed, Michigan, USA. *Archives of environmental contamination and toxicology* 55, 1-10.
- Zhang, M., Buekens, A., Li, X., 2016. Brominated flame retardants and the formation of dioxins and furans in fires and combustion. *Journal of hazardous materials* 304, 26-39.
- Zhao, C., Dong, Y., Feng, Y.P., Li, Y.Z., Dong, Y., 2019. Thermal desorption for remediation of contaminated soil: A review. *Chemosphere* 221, 841-855.
- Zhao, L., Jiang, J., Chen, C., Zhan, S., Yang, J., Yang, S., 2017. Efficiency and mechanism of the phytoremediation of decabromodiphenyl ether-contaminated sediments by aquatic macrophyte *Scirpus validus*. *Environmental Science and Pollution Research* 24, 12949-12962.
- Zhu, X., Zhong, Y., Wang, H., Li, D., Deng, Y., Peng, P.a., 2019. New insights into the anaerobic microbial degradation of decabrominated diphenyl ether (BDE-209) in coastal marine sediments. *Environmental Pollution* 255, 113151.



高濃度多溴二苯醚污染場址之土壤調查與整治測試

附表一 由現地土壤篩選出之四種菌株16S rDNA定序及比對結果。

TY1 : *Bacillus megaterium*Range 1: 341 to 790 [GenBank](#) [Graphics](#)[▼ Next Match](#) [▲ Previous](#)

Score	Expect	Identities	Gaps	Strand
832 bits(450)	0.0	450/450(100%)	0/450(0%)	Plus/Plus
Query 1	CTTCGGGTCGTAAAGCTCTGTTGTTAGGGAAGAACAAGTACCGGAGTAACTGCCGGTACC	60		
Sbjct 341	CTTCGGGTCGTAAAGCTCTGTTGTTAGGGAAGAACAAGTACCGGAGTAACTGCCGGTACC	400		
Query 61	TTGACGGTACCTAACCAGAAAGCCACGGCTAACTACGTGCCAGCAGCCGCGGTAATACGT	120		
Sbjct 401	TTGACGGTACCTAACCAGAAAGCCACGGCTAACTACGTGCCAGCAGCCGCGGTAATACGT	460		
Query 121	AGGTGGCAAGCGTTGTCCGGAATTATTGGGCGTAAAGCGCGCAGGCGGTCTTTAAGT	180		
Sbjct 461	AGGTGGCAAGCGTTGTCCGGAATTATTGGGCGTAAAGCGCGCAGGCGGTCTTTAAGT	520		
Query 181	CTGATGTGAAAGCCACGGCTCAACCGTGGAGGGTCATTGGAACTGGGGACTTGAGTG	240		
Sbjct 521	CTGATGTGAAAGCCACGGCTCAACCGTGGAGGGTCATTGGAACTGGGGACTTGAGTG	580		
Query 241	CAGAAGAGGAAAGCGGAATTCACGTGTAGCGGTGAAATGCGTAGAGATGTGGAGGAACA	300		
Sbjct 581	CAGAAGAGGAAAGCGGAATTCACGTGTAGCGGTGAAATGCGTAGAGATGTGGAGGAACA	640		
Query 301	CCAGTGGCGAAGGCGGCTTTCTGGTCTGTAAGTACGCTGAGGCGCGAAAGCGTGGGGAG	360		
Sbjct 641	CCAGTGGCGAAGGCGGCTTTCTGGTCTGTAAGTACGCTGAGGCGCGAAAGCGTGGGGAG	700		
Query 361	CAACAGGATTAGATACCCTGGTAGTCCACGCCGTAACGATGAGTGCTAAGTGTTAGGG	420		
Sbjct 701	CAACAGGATTAGATACCCTGGTAGTCCACGCCGTAACGATGAGTGCTAAGTGTTAGGG	760		
Query 421	GGTTTCCGCCCTTAGTGCTGCAGCTAACG	450		
Sbjct 761	GGTTTCCGCCCTTAGTGCTGCAGCTAACG	790		

TY2 : *Pseudomonas plecoglossicida*Range 1: 246 to 645 [GenBank](#) [Graphics](#)[▼ Next Match](#) [▲ Previous](#)

Score	Expect	Identities	Gaps	Strand
739 bits(400)	0.0	400/400(100%)	0/400(0%)	Plus/Plus
Query 1	AGGAAGGGCAGTAAGCTAATACCTTGCTGTTTTGACGTTACCGACAGAATAAGCACCGGC	60		
Sbjct 246	AGGAAGGGCAGTAAGCTAATACCTTGCTGTTTTGACGTTACCGACAGAATAAGCACCGGC	305		
Query 61	TAACTCTGTGCCAGCAGCCGCGGTAATACAGAGGGTGCAAGCGTTAATCGGAATTACTGG	120		
Sbjct 306	TAACTCTGTGCCAGCAGCCGCGGTAATACAGAGGGTGCAAGCGTTAATCGGAATTACTGG	365		
Query 121	GCGTAAAGCGCGCTAGGTGGTTCGTTAAGTTGGATGTGAAAGCCCCGGGCTCAACCTGG	180		
Sbjct 366	GCGTAAAGCGCGCTAGGTGGTTCGTTAAGTTGGATGTGAAAGCCCCGGGCTCAACCTGG	425		
Query 181	GAAGTGCATCCAAACTGGCGAGCTAGAGTACGGTAGAGGGTGGTGAATTTCTGTGTA	240		
Sbjct 426	GAAGTGCATCCAAACTGGCGAGCTAGAGTACGGTAGAGGGTGGTGAATTTCTGTGTA	485		
Query 241	GCGGTGAAATGCGTAGATATAGGAAGGAACACCAAGTGGCGAAGGCGACCACTGGACTGA	300		
Sbjct 486	GCGGTGAAATGCGTAGATATAGGAAGGAACACCAAGTGGCGAAGGCGACCACTGGACTGA	545		
Query 301	TACTGACACTGAGGTGCGAAAGCGTGGGGAGCAAACAGGATTAGATACCCTGGTAGTCCA	360		
Sbjct 546	TACTGACACTGAGGTGCGAAAGCGTGGGGAGCAAACAGGATTAGATACCCTGGTAGTCCA	605		
Query 361	CGCCGTAAACGATGTCAACTAGCCGTTGGAATCCTTGAGA	400		
Sbjct 606	CGCCGTAAACGATGTCAACTAGCCGTTGGAATCCTTGAGA	645		

TY3 : *Chryseobacterium cucumeris*Range 1: 401 to 800 [GenBank](#) [Graphics](#)

▼ Next Match ▲ Previous

Score	Expect	Identities	Gaps	Strand
739 bits(400)	0.0	400/400(100%)	0/400(0%)	Plus/Plus
Query 1		GATAAACCTACCTCTCGTGAGGGTAGCTGAAGGTACTATACGAATAAGCACCGGCTAACTC		60
Sbjct 401		GATAAACCTACCTCTCGTGAGGGTAGCTGAAGGTACTATACGAATAAGCACCGGCTAACTC		460
Query 61		CGTGCCAGCAGCCGCGGTAATACGGAGGGTGCAAGCGTTATCCGGATTATTGGGTTTAA		120
Sbjct 461		CGTGCCAGCAGCCGCGGTAATACGGAGGGTGCAAGCGTTATCCGGATTATTGGGTTTAA		520
Query 121		AGGGTCCGTAGGCGGATCTGTAAGTCAGTGGTGAAATCTCACAGCTTAACTGTGAACTG		180
Sbjct 521		AGGGTCCGTAGGCGGATCTGTAAGTCAGTGGTGAAATCTCACAGCTTAACTGTGAACTG		580
Query 181		CCATTGATACTGCAGGTCTTGAGTGTGTTGAAGTAGCTGGAATAAGTAGTGTAGCGGTG		240
Sbjct 581		CCATTGATACTGCAGGTCTTGAGTGTGTTGAAGTAGCTGGAATAAGTAGTGTAGCGGTG		640
Query 241		AAATGCATAGATATTACTTAGAACACCAATTGCGAAGGCAGGTTACTAAGCAACAACCTGA		300
Sbjct 641		AAATGCATAGATATTACTTAGAACACCAATTGCGAAGGCAGGTTACTAAGCAACAACCTGA		700
Query 301		CGCTGATGGACGAAAGCGTGGGGAGCGAACAGGATTAGATACCCTGGTAGTCCACGCCGT		360
Sbjct 701		CGCTGATGGACGAAAGCGTGGGGAGCGAACAGGATTAGATACCCTGGTAGTCCACGCCGT		760
Query 361		AAACGATGCTAACTCGTTTTTGAATGTAAGTTTCAGAGA	400	
Sbjct 761		AAACGATGCTAACTCGTTTTTGAATGTAAGTTTCAGAGA	800	

TY4 : *Bacillus subtilis*Range 1: 381 to 780 [GenBank](#) [Graphics](#)

▼ Next Match ▲ Previous

Score	Expect	Identities	Gaps	Strand
739 bits(400)	0.0	400/400(100%)	0/400(0%)	Plus/Plus
Query 1		AAGAACAAGTACCGTTTGAATAGGGCGGTACCTTGACGGTACCTAACCGAAGGCCACGG		60
Sbjct 381		AAGAACAAGTACCGTTTGAATAGGGCGGTACCTTGACGGTACCTAACCGAAGGCCACGG		440
Query 61		CTAACTACGTGCCAGCAGCCGCGGTAATACGTAGGTGGCAAGCGTTGTCCGGAATTATTG		120
Sbjct 441		CTAACTACGTGCCAGCAGCCGCGGTAATACGTAGGTGGCAAGCGTTGTCCGGAATTATTG		500
Query 121		GGCGTAAAGGGCTCGCAGGCGGTTTCTTAAGTCTGATGTGAAAGCCCCGGCTCAACCGG		180
Sbjct 501		GGCGTAAAGGGCTCGCAGGCGGTTTCTTAAGTCTGATGTGAAAGCCCCGGCTCAACCGG		560
Query 181		GGAGGGTCATTGGAACTGGGGAACCTTGAGTGCAGAAGAGGAGAGTGGAATTCCACGTGT		240
Sbjct 561		GGAGGGTCATTGGAACTGGGGAACCTTGAGTGCAGAAGAGGAGAGTGGAATTCCACGTGT		620
Query 241		AGCGGTGAAATGCGTAGAGATGTGGAGGAACACCAGTGGCGAAGGCGACTCTCTGGTCTG		300
Sbjct 621		AGCGGTGAAATGCGTAGAGATGTGGAGGAACACCAGTGGCGAAGGCGACTCTCTGGTCTG		680
Query 301		TAACTGACGCTGAGGAGCGAAAGCGTGGGGAGCGAACAGGATTAGATACCCTGGTAGTCC		360
Sbjct 681		TAACTGACGCTGAGGAGCGAAAGCGTGGGGAGCGAACAGGATTAGATACCCTGGTAGTCC		740
Query 361		ACGCCGTAAACGATGAGTGCTAAGTGTTAGGGGGTTTCCG	400	
Sbjct 741		ACGCCGTAAACGATGAGTGCTAAGTGTTAGGGGGTTTCCG	780	