

家庭尘土中多溴联苯醚的含量及人体暴露水平初步研究

黄玉妹^{1,3}, 陈来国^{1*}, 许振成¹, 彭晓春¹, 文丽君², 张素坤¹, 曾敏¹, 叶芝祥³

(1. 环境保护部华南环境科学研究所城市环境研究中心, 广州 510655; 2. 海南医学院药学院, 海口 571101; 3. 成都信息工程学院资源环境学院, 成都 610225)

摘要: 在广州和海口随机采集了 52 个家庭尘土样品, 用 GC/MS 定量分析了样品中 \sum_{10} PBDEs (BDE 28, 47, 66, 85, 99, 100, 153, 154, 183, 209 之和) 的含量、单体组成模式和可能的影响因素, 并估算了成年人和婴幼儿通过尘土摄入对 PBDEs 的暴露水平。结果表明, 所有样品中都检出 PBDEs, \sum_{10} PBDEs 的含量范围为 544.2 ~ 9 654 ng/g, 中位值和平均值分别为 2 547 ng/g 和 3 096 ng/g, 广州样品中 \sum_{10} PBDEs 含量明显高于海口样品。尘土中 PBDEs 含量与家用电器和含聚氨酯泡沫家具数量、电器使用时间没有显著相关性。家庭尘土中 PBDEs 的主要成分是 BDE209, 其平均含量高达 3 021 ng/g, 占 \sum_{10} PBDEs 含量的 73.70% ~ 99.74%, 平均值为 96.85%。BDE47、99 和 183 是 \sum_9 PBDEs (BDE209 除外) 中含量最丰富的单体, 其含量均值分别为 24.48%、23.99% 和 21.66%, 广州和海口样品的单体组成没有显著区别。成年人和婴幼儿通过尘土摄入对 PBDEs 的暴露水平分别为 10.59 ~ 254.7 ng/d 和 140.1 ~ 509.3 ng/d, 由于婴幼儿的尘土摄入量远大于成年人, 其对 PBDEs 的暴露水平也明显偏高。尘土摄入是人体暴露于 PBDEs 的重要途径, 对婴幼儿更是如此。

关键词: 多溴联苯醚; 家庭尘土; 含量; 尘土摄入; 人体暴露

中图分类号: X820.4 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2010)01-0168-05

Preliminary Study of PBDE Levels in House Dust and Human Exposure to PBDEs via Dust Ingestion

HUANG Yu-mei^{1,3}, CHEN Lai-guo¹, XU Zhen-cheng¹, PENG Xiao-chun¹, WEN Li-jun², ZHANG Su-kun¹, ZENG Min¹, YE Zhi-xiang³

(1. Center for Research on Urban Environment, South China Institute of Environmental Sciences, Ministry of Environmental Protection, Guangzhou 510655, China; 2. Department of Pharmacy, Hainan Medical College, Haikou 571101, China; 3. Department of Resources and Environment, Chengdu University of Information Technology, Chengdu 610225, China)

Abstract: Fifty-two house dust samples were randomly collected in Guangzhou and Haikou City, to analyze the concentrations of \sum_{10} PBDEs (sum of BDE 28, 47, 66, 85, 99, 100, 153, 154, 183 and 209), the PBDE composition profiles, and possible influencing factors, and estimate human exposure to PBDEs via dust ingestion for adults and toddlers. The results showed that PBDEs were found in all samples, with the \sum_{10} PBDEs concentrations ranging from 544.2 ng/g to 9 654 ng/g, and with median (mean) of 2 547 (3 096) ng/g. The PBDE levels in Guangzhou samples were obviously higher than those in Haikou. No significant correlations between PBDE levels and residential characteristics (number of TVs, computers, and polyurethane foam-contained furniture, time of using TVs and computers) were observed. BDE209, with a mean concentration of 3 021 ng/g, was the dominated congener, contributing 73.70%~99.74% to the \sum_{10} PBDEs, with a mean contribution of 96.85%. BDE 47, 99 and 183 were the most abundant congeners of \sum_9 PBDEs (BDE 209 excluded), with a mean contribution of 24.48%, 23.99% and 21.66%, respectively. There is no notable difference in PBDE composition between Guangzhou and Haikou samples. The estimated exposure for adults and toddlers to PBDEs ranged from 10.59 ng/d to 254.7 ng/d and from 140.1 ng/d to 509.3 ng/d respectively. Due to their increased dust ingestion rates, toddlers intook more PBDEs via dust ingestion than adults. Dust ingestion was an important human exposure route for PBDEs, especially for toddlers.

Key words: polybrominated diphenyl ethers (PBDEs); house dust; concentration; dust ingestion; human exposure

收稿日期: 2009-02-19; 修订日期: 2009-04-16

基金项目: 广东省自然科学基金项目(7300845); 国家自然科学基金项目(40803035); 公益性科研院所环境保护专项业务经费项目(200703)

作者简介: 黄玉妹(1984~), 女, 硕士, 主要研究方向为持久性有机污染物, E-mail: pearl061@163.com

* 通讯联系人, E-mail: chenlg@scies.com.cn; chenlaigu@scies.org

多溴联苯醚 (polybrominated diphenyl ethers, PBDEs) 由于其优异的阻燃性能, 被广泛用于电子电器产品的塑料外壳和电路板、油漆、纺织品和聚氨酯海绵等中^[1]。作为一种新型持久性有机污染物 (POPs)^[2], PBDEs 与多氯联苯 (PCBs) 具有相似的结构和理化性质, 正引起越来越多的关注。过去, 研究者认为人体对 PBDEs 的暴露主要是通过食物途径 (尤其是食用鱼类)^[3], 所以相关研究主要集中在对水体、生物体和人体研究方面^[3~7]。最近越来越多的研究表明通过呼吸或随机摄入尘土等途径也是非常重要的^[8~18]。无意摄入负载高含量 PBDEs 的室内尘土已被认为是被忽视的人体暴露重要途径^[11]。目前这方面的研究工作主要在西欧和北美地区展开^[2, 8~10, 13~16]。作者前期率先在国内开展了室内外空气的相关研究^[11, 12], 本文首次在国内报道家庭尘土中 PBDEs 的研究工作。

1 材料与方法

1.1 采样情况

2008 年夏季, 在广东省广州市和海南省海口市随机采集了 52 个家庭尘土样品, 其中广州样品 46 个, 海口样品 6 个。样品采集方法为德国工程师协会 (VDI) 4 300 Part 8 导则中描述的表面擦拭法^[19], 采样工具为小板刷。采样时, 先将家具、地板、电扇和窗台等处的灰尘扫到干净的锡箔纸上, 再转移至密实袋中, 带回实验室。样品先过 100 目不锈钢筛, 用镊子夹去毛发, 最后贮存在密实袋中, -20°C 保存至分析。为了防止交叉污染, 每次使用后, 小板刷、镊子和不锈钢筛子均超声清洗 5 min, 后用去离子水冲洗 3 遍, 风干。采样的同时, 还调查了每个采样家庭电脑、电视等家用电器的品牌、数量、使用年限和日使用时间以及含聚氨酯泡沫 (polyurethane foam, PUF) 家具的数量等内容。

1.2 标准物质

PBDEs 标样包括混合标样 (BDE 28, 47, 66, 85, 99, 100, 138, 153, 154) 和单化合物标样 BDE183, BDE209 (AccuStandards, USA), 内标和回收率指示物分别为 ^{13}C -PCB208 和 ^{13}C -PCB141 (Cambridge Isotope Laboratories, USA)。

1.3 样品前处理

取 0.135 ~ 0.870 g 灰尘样品, 用 200 mL 丙酮/正己烷混合溶剂 (1:1, 体积比) 索氏抽提 48 h。抽提前每个样品中加入定量的回收率指示物 ^{13}C -PCB141, 并加入约 2 g 铜片用于脱硫。抽提液旋转蒸发至 5

mL, 正己烷溶剂转换后继续浓缩至 1 mL, 过多层硅胶氧化铝复合柱净化, 用 70 mL 的正己烷/二氯甲烷 (1:1, 体积比) 淋洗。洗脱液旋转蒸发至约 1 mL, 转移至 1.5 mL 的细胞瓶 (Agilent, USA) 中, 柔和氮气吹至 50 μL , 密封保存。仪器分析前添加定量的 ^{13}C -PCB208 作内标。

1.4 仪器分析

仪器分析条件见文献 [11], 分析仪器为气相色谱质谱联用仪 (Agilent, 6890GC/5975MSD), 负化学电离源 (NCI)。由于大部分样品中 BDE138 有共溢出峰干扰, 所以没对它进行定量。

1.5 质量保证和质量控制 (QA/QC)

每批 12 个样品包含一个方法空白样, 在所有方法空白中均只有痕量的 BDE 28, 47, 99 和 209 被检出, 实际样品的含量已扣除空白。抽提前对所有样品添加回收率指示物 ^{13}C -PCB141, 回收率为 $105.0\% \pm 6.1\%$ (82.1% ~ 118.7%), 测定结果未经回收率校正。仪器检测限定义为 3 倍信噪比 ($3 \times \text{S/N}$), BDE28 ~ 183 为 0.5 ~ 2.0 pg, BDE209 为 50 pg。

2 结果与讨论

2.1 家庭尘土中 PBDEs 的含量水平

所有样品中均检测到 PBDEs, 各单体的含量水平如表 1 所示。 \sum_{10} PBDEs 的含量水平范围为 544.2 ~ 9 654 ng/g, 中位值和平均值分别为 2 547 ng/g 和 3 096 ng/g。图 1 显示了 52 个家庭尘土样品中 PBDEs 的含量频率分布情况, 32 个样品 (61.5%) \sum_{10} PBDEs 含量在 500 ~ 2 500 ng/g 范围内, 48 个样品 (92.3%) 含量在 500 ~ 6 000 ng/g 范围内。

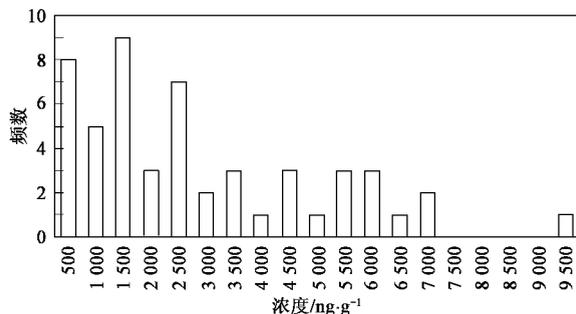


图 1 家庭尘土中 PBDEs 的含量分布频数柱状图

Fig. 1 Frequency histogram showing distribution of PBDE levels in house dust

广州样品中 \sum_{10} PBDEs 的含量为 564.3 ~ 9 654

ng/g, 中位值和平均值分布为 2 686 ng/g 和 3 407 ng/g; 海口样品中 \sum_{10} PBDEs 的含量为 544.2 ~ 997.55 ng/g, 中位值和平均值分别为 692.4 ng/g 和 707.2 ng/g. 广州与海口室内尘土样品中 PBDEs 含量具有显著性差异 (t 检验, $p = 0.001$), 广州样品 PBDEs 含量明显偏高. 广州市是珠三角地区的中心城市, 电子信息、汽车制造业等发达, 空气污染严重, 而海口市以旅游业和农业为主, 工业较少, 是中国空气质量最好的城市之一. 结果表明城市的产业结构和经济发展水平对室内尘土 PBDEs 含量可能有重要影响. 但本研究只有 6 个海口样品, 代表性不强, 作者将进一步开展这方面的研究工作.

关于家庭尘土中 PBDEs 的研究越来越受到人们的关注, 表 2 列举了已报道的世界各地家庭尘土中的 PBDEs 的含量水平. 从中可知, 本研究中低溴

联苯醚 (除 BDE209 外) 的平均含量约为科威特含量的 4 倍, 新加坡的 1/9, 加拿大渥太华地区的 1/60, 美国华盛顿地区的 1/50. 北美地区低溴联苯醚含量显著高于亚洲地区, 这可能与多溴联苯醚工业品在这些地区的使用量不同有关. 据统计, 2001 年北美地区八溴联苯醚使用量与亚洲地区相当, 但是五溴联苯醚工业品的使用量为 7 100 t, 远高于该产品在亚洲地区 150 t 的使用量^[20]. 本研究中 BDE209 的平均含量为 3 021 ng/g, 高于渥太华地区 (1 100 ng/g) 和华盛顿地区 (2 090 ng/g), 笔者先前的研究发现^[12], 广州市大气中 BDE209 含量也明显高于北美城市大气中 BDE209 含量. 这与中国使用的溴代阻燃剂 (BFRs) 主要为十溴联苯醚工业品的事实相符. 2000 年, 中国国内生产的 BFRs 约 10 000 t, 十溴联苯醚是其中最主要的产品^[7], 据估计, 2006 年我国十溴联苯醚产量上升至 20 000 t.

表 1 家庭尘土中 PBDEs 的含量水平¹⁾/ng·g⁻¹

Table 1 Summary of PBDE concentrations found in house dust/ng·g⁻¹

BDE 单体	中位值	平均值	最小值	最大值	5 th 百分位值	95 th 百分位值
28	1.04	2.61	0.28	28.25	0.33	10.65
47	8.28	18.65	1.74	149.0	2.63	83.39
66	1.54	3.66	0.26	48.71	0.39	13.93
100	1.13	3.60	0.12	60.88	0.26	12.89
99	8.52	22.71	1.02	303.5	1.62	87.35
85	0.57	1.43	0.00	17.22	0.05	5.64
154	1.63	3.56	0.25	39.68	0.49	10.37
153	4.18	8.50	0.74	118.1	1.45	20.95
183	7.88	10.14	2.10	47.42	2.99	23.68
209	2 424	3 021	528.8	9 602	557	6 602
\sum_9 PBDEs	37.18	74.87	6.60	639.0	13.73	243
\sum_{10} PBDEs	2 547	3 096	544.2	9 654	629	6 917

1) \sum_9 PBDEs 指 BDE28, 47, 66, 85, 99, 100, 153, 154, 183 之和; \sum_{10} PBDEs 指 \sum_9 PBDEs 和 BDE209 之和, 下同

表 2 不同国家家庭尘土中 PBDEs 的含量水平¹⁾/ng·g⁻¹

Table 2 Summary of PBDE concentrations in house dust from different countries/ng·g⁻¹

地点	BDE209			\sum PBDEs (209 除外)			\sum PBDEs			文献
	中位值	平均值	范围	中位值	平均值	范围	中位值	平均值	范围	
渥太华, 加拿大	630	1 100	74 ~ 10 000	900	4 500	64 ~ 170 000	1 800	5 500	170 ~ 17 0000	[2]
华盛顿 DC, 美国	1 350	2 090	162 ~ 8 750	1 680	3 810	510 ~ 27 700	4 250	5 900	780 ~ 30 100	[14]
新加坡	1 000	2 200	68 ~ 13 000	98	660	11 ~ 12 000	1 200	2 900	110 ~ 13 000	[17]
科威特	82.9	128.8	0.8 ~ 338	9.6	20	0.2 ~ 123.5	90.0	148.8	1.0 ~ 393.2	[18]
中国	2 424	3 021	528.8 ~ 9 602	37.2	74.9	6.60 ~ 639	2 547	3 096	544.0 ~ 9 654	本研究

1) 渥太华研究中 \sum PBDEs 包括 BDE17, 28, 47, 66, 100, 99, 85, 154, 153, 138, 183, 190, 209; 华盛顿 DC 研究中 \sum PBDEs 包括 BDE17, 33, 28, 71, 47, 66, 100, 99, 85, 154, 153, 138, 183, 190, 197, 196, 207, 206, 208, 209; 新加坡研究中 \sum PBDEs 包括 BDE28, 47, 100, 99, 154, 153, 183, 209; 科威特研究中 \sum PBDEs 包括 BDE28, 47, 100, 99, 85, 154, 153, 183, 209, 下同

2.2 家庭尘土中 PBDEs 的单体组成

与 Tan 等^[17]和 Gevao 等^[18]的研究结果相似, 本研究中家庭尘土中 PBDEs 的主要成分也是 BDE209

(表 1), 其含量百分比范围为 73.70% ~ 99.74%, 平均值为 96.85%. BDE209 是十溴联苯醚工业品的主要成分 (97%)^[21], 而十溴联苯醚工业品是我国使用

最广泛的阻燃剂,结果表明 BDE209 经过多种途径进入室内环境中并成为 PBDEs 污染的主要成分。

结合表 1 和图 2 可以看出, BDE47、99 和 183 是低溴联苯醚中含量最丰富的单体,其含量百分比的平均值分别为 24.48%、23.99% 和 21.66%;其次是 BDE153 (11.44%)、BDE66 (4.80%)、BDE154 (4.58%)、BDE28 (4.0%)、BDE100 (3.52%) 和 BDE85 (1.54%)。值得注意的是,与其它对家庭尘土^[17,18]、沉积物^[6,7]和空气^[12]中 PBDEs 的研究相比,本研究中 BDE183 明显偏高,为此,作者将在后续研究中对 BDE183 的来源做进一步的分析。如图 2 所示,广州和海口样品中 PBDEs 的单体组成没有显著区别,单体主要成分均为 BDE209、47、99、183 和 153。

2.3 家庭尘土中 PBDEs 的影响因素

在问卷调查表中,作者调查了采样家庭电视机、电脑等家用电器的数量和使用时间,含 PUF 家具的数量,分析了它们与家庭尘土中 PBDEs 含量水平的

相关性。结果表明家庭尘土中 PBDEs 含量与室内电视机和电脑数量($r = -0.032$, $p = 0.824$)、电视机和电脑使用时间($r = -0.079$, $p = 0.576$)、含 PUF 家具数量($r = 0.139$, $p = 0.326$)之间没有明显的相关性,与 Stapleton 等^[14]和 Tan 等^[17]的研究结果相似。这可能是因为:① 每个家庭电器、含 PUF 家具的品牌不一,溴代阻燃剂的添加量也可能不同,使用年数可能也有影响;② 除电视机、电脑、含 PUF 家具之外,室内尘土中 PBDEs 可能还有其它来源;③ 尘土沉降时间的长短可能也影响了相关性。当然,这种无明显的相关性并不能排除室内尘土中 PBDEs 主要是来自这些排放源。事实上,作者采集的 2 个电视机和 2 个电脑尘土样品都发现了高含量的 PBDEs (分别为 64 646、79 621、3 992、8 552 ng/g,数据未发表),此外,作者先前的研究也表明家用电器(如电脑、电视机等)是室内空气中 PBDEs 的重要释放源^[12]。

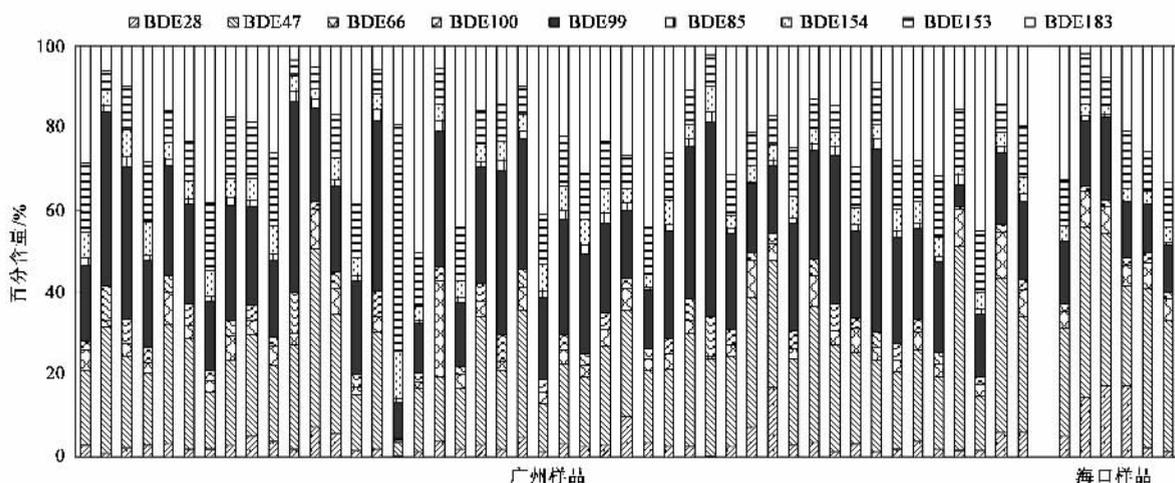


图 2 家庭尘土中 9 种 BDE 单体的含量百分比

Fig. 2 Percentage contributions of 9 BDE congeners in house dust

2.4 人体通过尘土摄入对 PBDEs 的暴露

人体可以通过呼吸、皮肤吸收、饮食和非饮食摄入等途径暴露于 PBDEs,尘土摄入是非饮食摄入的主要方式^[18]。假设尘土摄入中的 PBDEs 被人体 100% 吸收时,可用下列公式估算成年人和婴幼儿(6~24 个月)通过尘土摄入对 PBDEs 的暴露水平:

$$\text{Intake} = c_m \times \text{DI} / 1000$$

式中, Intake 为每天对 PBDEs 的摄入量, ng/d; c_m 为家庭尘土中 \sum_9 PBDEs、BDE209、 \sum_{10} PBDEs 的含量中位值, ng/g; DI (dust ingestion) 为每天的尘土摄入量, mg/d, 假设成年人的平均摄入量 and 最高摄入

量分别为 4.16 mg/d 和 100 mg/d, 婴幼儿的平均摄入量 and 最高摄入量分别为 55 mg/d 和 200 mg/d^[21]。计算结果如表 3 所示, 由于室内尘土中 BDE209 含量远高于 \sum_9 PBDEs, 由此计算的成年人和婴幼儿对 \sum_{10} PBDEs 的摄入量明显高于 \sum_9 PBDEs。成年人和婴幼儿通过尘土摄入对 \sum_{10} PBDEs 的摄入量分别为 10.59 ~ 254.7 ng/d 和 140.1 ~ 509.3 ng/d, 均高于新加坡 (4.8 ~ 116 ng/d 和 64 ~ 232 ng/d)^[17] 和渥太华地区 (7.5 ~ 180 ng/d 和 99 ~ 360 ng/d)^[21] 的相应值, 由于科威特地区^[18] 家庭尘土中 PBDEs 的含量水平

表 3 不同地区成年人和婴幼儿通过尘土摄入对 PBDEs 的暴露水平/ $\text{ng}\cdot\text{d}^{-1}$ Table 3 PBDEs exposure estimates for adults and toddlers via dust ingestion in different regions/ $\text{ng}\cdot\text{d}^{-1}$

研究地点	项目	成年人		婴幼儿		文献
		平均值 ¹⁾	最高值 ²⁾	平均值	最高值	
中国	\sum_9 PBDEs	0.15	3.72	2.04	7.44	
	BDE209	10.08	242.4	133.3	484.8	本研究
	\sum_{10} PBDEs	10.59	254.7	140.1	509.3	
新加坡	\sum PBDEs	4.8	116	64	232	[17]
渥太华, 加拿大	\sum PBDEs	7.5	180	99	360	[2]

1) 尘土摄入量平均值; 2) 尘土摄入量最高值

很低(表 2), 该地区成年人和婴幼儿通过摄入尘土摄入的 PBDEs 分别仅为 1.5 ng/d 和 14.8 ng/d , 远低于上述研究. 此外, 由于婴幼儿的尘土摄入量远大于成年人, 其对 PBDEs 的暴露水平高于成年人, 尘土摄入是儿童暴露于 PBDEs 的重要途径.

3 结论

我国家庭尘土中含有高含量的 PBDEs, 但尘土中低溴联苯醚含量较低, 而 BDE209 含量明显高于国外相关研究. 这和国内 PBDEs 工业品使用情况是一致的. 室内尘土已经成为食物、空气之外人体 PBDEs 暴露的一个重要途径, 尘土摄入可能是婴幼儿 PBDEs 暴露的最重要途径. 然而, PBDEs 对成年人特别是婴幼儿的毒性还需进一步评估, 目前关于暴露水平的研究都是基于人体对摄入污染物 100% 吸收的前提下进行的, 存在一定的不确定性. 关于人体对 PBDEs 吸收效率及体内代谢机制都有待进一步的研究.

参考文献:

- [1] Hites R A. Polybrominated diphenyl ethers in the environment and in people: A meta-analysis of concentrations[J]. Environ Sci Technol, 2004, **38**: 945-956.
- [2] Wilford B H, Shoeb M, Harner T, et al. Polybrominated diphenyl ethers in indoor dust in Ottawa, Canada: implications for sources and exposure[J]. Environ Sci Technol, 2005, **39**: 7027-7035.
- [3] Bocio A, Llobet J M, Domingo J L, et al. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in foodstuffs: Human exposure through diet[J]. J Agric Food Chem 2003, **51**: 3191-3195.
- [4] Meng X Z, Zeng E Y, Yu L P, et al. Assessment of human exposure to polybrominated diphenyl ethers in China via fish consumption and inhalation[J]. Environ Sci Technol, 2007, **41**: 4882-4887.
- [5] Qu W Y, Bi X H, Sheng G Y, et al. Exposure to polybrominated diphenyl ethers among workers at an electronic waste dismantling region in Guangdong, China[J]. Environ Int, 2007, **33**: 1029-1034.
- [6] 黄玉妹, 陈来国, 叶芝祥, 等. 北江沉积物中多溴联苯醚的含量水平和分布特征[J]. 环境化学, 2009, **28**(1): 141-142.
- [7] Mai B X, Chen S J, Luo X J, et al. Distribution of polybrominated diphenyl ethers in sediments of the Pearl River Delta and adjacent South China Sea[J]. Environ Sci Technol, 2005, **39**: 3521-3527.
- [8] Wilford B H, Harner T, Zhu J, et al. Passive sampling survey of polybrominated diphenyl ether flame retardants in indoor and outdoor air in Ottawa, Canada: implications for sources and exposure[J]. Environ Sci Technol, 2004, **38**: 5312-5318.
- [9] Harrad S, Wijesekera R, Hunter S, et al. Preliminary assessment of UK human dietary and inhalation exposure to polybrominated diphenyl ethers[J]. Environ Sci Technol, 2004, **38**: 2345-2350.
- [10] Shoeb M, Harner T, Ikonou M, et al. Indoor and outdoor air concentrations and phase partitioning of perfluoroalkyl sulfonamides and polybrominated diphenyl ethers[J]. Environ Sci Technol, 2004, **38**: 1313-1320.
- [11] Chen L G, Mai B X, Bi X H, et al. Concentration levels, compositional profiles and gas-particle partitioning of polybrominated diphenyl ethers in the atmosphere of an urban city in south China[J]. Environ Sci Technol, 2006, **40**: 1190-1196.
- [12] Chen L G, Mai B X, Xu Z C, et al. In- and outdoor sources of polybrominated diphenyl ethers and their human inhalation exposure in Guangzhou, China[J]. Atmos Environ, 2008, **42**(1): 78-86.
- [13] Jones-Otazo J H A, Clarke J P, Diamond M L, et al. Is house dust the missing exposure pathway for PBDEs? An analysis of the urban fate and human exposure to PBDE[J]. Environ Sci Technol, 2005, **39**: 5121-5130.
- [14] Stapleton H M, Dodder N G, Offenber J H, et al. Polybrominated diphenyl ethers in house dust and clothes dryer lint[J]. Environ Sci Technol, 2005, **39**: 925-931.
- [15] Wu N, Herrmann T, Paepke O, et al. Human exposure to PBDEs: associations of PBDE body burdens with food consumption and house dust concentrations[J]. Environ Sci Technol, 2007, **41**: 1584-1589.
- [16] Harrad S, Ibarra C, Diamond M, et al. Polybrominated diphenyl ethers in domestic indoor dust from Canada, New Zealand, United Kingdom and United States[J]. Environ Int, 2008, **34**: 232-238.
- [17] Tan J, Cheng S M, Loganath A, et al. Polybrominated diphenyl ethers in house dust in Singapore[J]. Chemosphere, 2007, **66**: 985-992.
- [18] Gevao B, Al-Bahloul M, Al-Ghadban A N, et al. House dust as a source of human exposure to polybrominated diphenyl ethers in Kuwait[J]. Chemosphere, 2006, **64**: 603-608.
- [19] Verein Deutscher Ingenieure (VDI, Association of German Engineers). Measurement of indoor air pollution—sampling of house dust[M]. VDI4300 Part 8, Berlin: Beuth-Verlag, 2001.
- [20] Bromine Science and Environmental Forum (BSEF). Major brominated flame retardants volume estimates[EB/OL]. http://www.bsef.com/bromine/our_industry/ (accessed 2003).
- [21] Rayne S, Ikonou M G. Reconstructing source polybrominated diphenyl ether congener patterns from semipermeable membrane devices in the Fraser River, British Columbia, Canada: comparison to commercial mixtures[J]. Environ Toxicol Chem, 2002, **21**: 2292-2300.