

电子废物拆解区河流沉积物中多溴二苯醚的污染水平、分布及来源

王学彤¹, 王飞¹, 贾金盼¹, 李元成¹, 孙阳昭², 吴明红¹, 盛国英^{1,3}, 傅家谟^{1,3}

(1. 上海大学环境与化学工程学院, 环境污染与健康研究所, 上海 200444; 2. 中华人民共和国环境保护部, 北京 100035; 3. 中国科学院广州地球化学研究所有机地球化学国家重点实验室, 广州 510640)

摘要: 用 GC-NCI-MS 分析法测定了路桥河流表层沉积物中 41 种多溴二苯醚同类物的含量. 目的是了解该地区沉积物中 PBDEs 的污染水平、空间分布特征和来源. 结果表明, 所有沉积物样品中 $\sum_{40}$ PBDEs (不包括 BDE209) 的含量为 $0.177 \sim 161 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 平均值为 $22.5 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, BDE209 的含量为 $0.36 \sim 958 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 平均值为 $148 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$. 同族体组成特征表明多数样品中十溴二苯醚 (BDE209) 是最主要的同族体, 占 $38.4\% \sim 96.0\%$, 平均值为 74.4% , 九溴 PBDEs 和七溴 PBDEs 次之, 分别占 $3.3\% \sim 25.8\%$ 和 $0.01\% \sim 14.1\%$. PBDEs 同类物之间呈显著性相关, 表明大多数 PBDEs 同类物有相似的输入途径. 同族体组成和聚类分析表明, 所有采样点均受到 deca-BDE 工业品的污染, 另有一些采样点除受到 deca-BDE 工业品的污染外, octa-BDE 工业品也有一定的贡献. 与国内外其它研究相比, 研究区域内沉积物中的 PBDEs 污染处于中低水平, 但个别样点受点源污染影响较大, 值得关注.

关键词: 电子废物; 沉积物; 多溴二苯醚; 分布; 聚类分析; 来源

中图分类号: X131 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301 (2011) 04-1088-06

Levels, Distribution and Possible Sources of Polybrominated Diphenyl Ethers in River Sediments from an Electronic Waste Recycling Area

WANG Xue-tong¹, WANG Fei¹, JIA Jin-pan¹, LI Yuan-cheng¹, SUN Yang-zhao², WU Ming-hong¹, SHENG Guo-ying^{1,3}, FU Jia-mo^{1,3}

(1. Institute of Environmental Pollution and Health, School of Environmental and Chemical Engineering, Shanghai University, Shanghai 200444, China; 2. Ministry of Environmental Protection of the People's Republic of China, Beijing 100035, China; 3. State Key Laboratory of Organic Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China)

Abstract: The concentrations of 41 polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in the river sediments from Luqiao were analyzed by GC-NCI-MS. The objectives of this study were to understand the contents, spatial distribution and sources. The $\sum_{40}$ PBDEs (excluding BDE209) concentrations in sediments sampled were in the range of 0.177 to $161 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, with a mean of $22.5 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, and the concentrations of BDE209 were from 0.36 to $958 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, with a mean of $148 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$. Deca-BDE was the most predominant in 9 PBDE homologues in most of samples, accounting for $38.4\% - 96.0\%$, with an average of 74.4% , followed by nona-BDEs and hepta-BDEs, accounting for $3.3\% - 25.8\%$ and $0.01\% - 14.1\%$, respectively. Significant correlations were observed among all of PBDEs congeners, which suggested these PBDEs might have the similar sources. The homologue composition of PBDEs and hierarchical cluster analysis (HCA) showed that most of sampling sites were mainly polluted by deca-BDE formulation, and others polluted by deca-BDE and octa-BDE formulations. Compared to other studies from different countries and regions, the PBDEs concentrations in the present study were at a medium-to-low level. But it should be concerned that a few of sampling sites were highly contaminated by point sources.

Key words: electronic waste; sediment; polybrominated diphenyl ethers (PBDEs); distribution; hierarchical cluster analysis (HCA); source

多溴二苯醚 (polybrominated diphenyl ethers, PBDEs) 是一类常用的溴代阻燃剂, 主要应用于电子电器、建筑材料、塑料、纺织品等产品中. PBDEs 工业产品主要有十溴二苯醚 (deca-BDE)、八溴二苯醚 (octa-BDE) 和五溴二苯醚 (penta-BDE) 3 种. 2001 年全球市场需求量达到 67 390 t, 其中十溴、五

溴和八溴二苯醚分别占总量的 83.3%、11.1% 和

收稿日期: 2010-05-08; 修订日期: 2010-09-10

基金项目: 国家自然科学基金重点项目 (40830744); 国家科技支撑计划项目 (2008BAC32B03, 2009BAA24B04); 上海市重点学科项目 (S30109)

作者简介: 王学彤 (1963 ~), 男, 副教授, 主要研究方向为环境分析化学与环境物理化学, E-mail: wangxt0323@ yahoo. com. cn

5.6%^[1]. 2009 年 5 月商用五溴二苯醚和八溴二苯醚被列入斯德哥尔摩公约的受控范围,但商用十溴二苯醚仍在世界范围内被大量地生产和使用. 作为一种添加型阻燃剂, PBDEs 在产品生产、使用和报废处置过程中都可能释放出来进入环境^[2]. 毒理学研究表明, PBDEs 及其代谢产物具有生殖毒性、免疫毒性、神经毒性和内分泌干扰作用. 近年来,在各种环境介质和生物及人体中普遍检测到了 PBDEs 及其代谢产物的存在. 由于 PBDEs 具有很高的亲脂性,在水环境中易于吸附到悬浮颗粒物和沉积物上,所以沉积物是环境中 PBDEs 的蓄积库,对 PBDEs 在水环境中的分布和归宿具有重要作用^[3].

路桥区坐落于浙江省中部沿海台州南部,是中国较早的电子废物拆解地之一,电子废物的不当处置导致了当地的环境污染,使其成为备受关注的热点地区之一^[4-9]. 该地区属亚热带季风气候,雨水丰沛,污染物很容易经大气干湿沉降和地表径流进入水体. 因此,本研究选择路桥区作为研究区域,分析河流表层沉积物中 PBDEs 的污染水平、空间分布特征和来源,以期为当地生态环境的保护和污染治理提供科学依据.

1 材料与方法

1.1 样品采集

2007 年 3 月,使用抓斗式采样器在路桥区主要河流采集了 39 个表层沉积物样品(0 ~ 10 cm),各采样点的分布如图 1 所示. 样品采集后带回实验室进行干燥、研磨、过 60 目筛,最后贮存在棕色磨口瓶中,密封、低温避光保存,待分析.

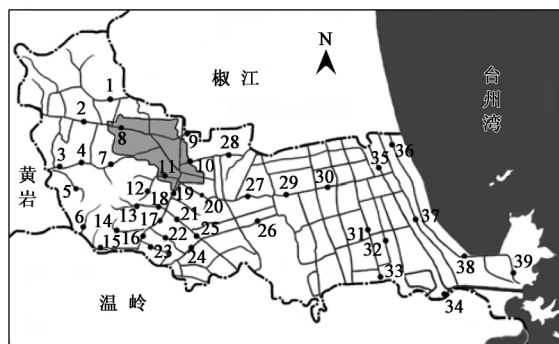


图 1 路桥区河流沉积物采样点分布示意

Fig. 1 Schematic graph of sampling sites of sediment in Luqiao

1.2 标准物质与材料

实验所用丙酮、二氯甲烷、正己烷和异辛烷均为分析纯(上海国药集团),采用全玻璃蒸馏系统二次

蒸馏,并经色谱检验无干扰峰. 硅胶(100 ~ 200 目)和中性氧化铝(100 ~ 200 目)依次用丙酮、二氯甲烷及正己烷抽提后在 130℃ 下活化 16 h. 硅胶经酸化处理(44 g 浓硫酸/100 g 硅胶),氧化铝加入 6% 的超纯水去活化,充分振荡至没有结块,密封保存在干燥器中,平衡 24 h. 旋转蒸发仪 R-215 (瑞士 BUCHI), Milli-Q 超纯水机(美国 Millipore 公司).

PBDEs 标样: 41 种 PBDE 同类物标准品包括二溴 PBDEs (BDE7, 8, 10, 11, 12, 13 和 15)、三溴 PBDEs (BDE17, 25, 28, 30, 32, 33, 35 和 37)、四溴 PBDEs (BDE47, 49, 66, 71, 75 和 77)、五溴 PBDEs (BDE-85, 99, 100, 116, 118, 119 和 126)、六溴 PBDEs (BDE138, 153, 154, 155 和 166)、七溴 PBDEs (BDE181, 183 和 190)、八溴 PBDEs (BDE203)、九溴 PBDEs (BDE206, 207 和 208) 和十溴 PBDE (BDE209) (美国 Accustandard 公司),回收率内标 BDE50 和 ¹³C₁₂-BDE209 (美国 CIL 公司),进样内标 PCB209 (美国 Accustandard 公司).

1.3 样品前处理

准确称取 10 g 沉积物样品,与 10 g 无水硫酸钠研磨均匀,加入一定量回收率内标,用 150 mL 丙酮和正己烷混合溶剂(体积比为 1:1),索氏提取 24 h. 提取前在瓶底加入新鲜活化铜片. 提取液用旋转蒸发仪浓缩,将溶剂转换为正己烷后过硅胶/氧化铝复合柱分离净化. 样品上柱后,先用 40 mL 正己烷淋洗并弃去洗脱液,然后用 50 mL 二氯甲烷/正己烷混合溶剂(体积比为 1:1)洗脱,收集洗脱液,并经过浓缩、转换溶剂后,加入进样内标,用异辛烷定容至 0.2 mL,待 GC-MS 分析.

1.4 样品的分析

所用仪器为 Agilent 6890N 气相色谱-5975 质谱联用仪(美国 Agilent). 色谱条件: 进样口温度为 280℃,载气为高纯氦气,柱流速 1.5 mL · min⁻¹,不分流进样. 二溴 PBDEs ~ 七溴 PBDEs 用 DB-5MS 色谱柱(30 m × 0.25 mm × 0.25 μm, J&W Scientific)分析. 程序升温条件: 初始温度 100℃,保持 2 min; 以 20℃ · min⁻¹ 升至 200℃ 保持 10 min, 以 2℃ · min⁻¹ 升至 250℃,保持 5 min; 再以 5℃ · min⁻¹ 升至 290℃,保持 15 min,最后以 20℃ · min⁻¹ 的速率升到 300℃,保持 15 min. 八溴 PBDEs ~ 十溴二苯醚(BDE209) 使用 DB-5MS 色谱柱(9 m × 0.25 mm × 0.25 μm, J & W Scientific)分析. 升温程序: 90℃ 保持 1 min, 然后以 10℃ · min⁻¹ 的速率升至 220℃,保持 3 min,再以 20

$^{\circ}\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 的速率升至 300°C , 保持 10 min.

质谱条件: 电离方式为负化学电离源 (NCI); 接口温度 280°C , 离子源温度 250°C , 四极杆温度 150°C , 反应气为甲烷; 数据采集采用选择离子模式 (SIM). 二溴 PBDEs ~ 九溴 PBDEs 特征离子 m/z 为 79 和 81; BDE209 特征离子 m/z 为 79、81、486.7 和 488.7; $^{13}\text{C}_{12}$ -BDE209 特征离子 m/z 为 415.6、494.6; PCB209 特征离子 m/z 为 497.6 和 499.6.

土壤总有机碳 (TOC) 测定: 风干并过筛后的沉积物样品用 10% 的 HCl 去除无机碳, 60°C 烘干, 用元素分析仪测定 TOC 的含量.

1.5 质量保证及质量控制

以 BDE50 和 $^{13}\text{C}_{12}$ -BDE209 作为回收率内标, PCB209 作为进样内标. 目标化合物的基质加标回收率为 66.5% ~ 105.7% ($n = 5$). 每 12 个样品增加一个实验室空白和一个平行样品. 平行样品的相对标准偏差 $< 15\%$. 以 3 倍信噪比作为方法的检测限 (LODs), 二溴 PBDEs ~ 九溴 PBDEs 的方法检测限为 $0.002 \sim 0.05 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, BDE209 为 $0.1 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$. 样品中回收率指示物 BDE50 和 $^{13}\text{C}_{12}$ -BDE209 的回收率均大于 80%, 分析结果未经回收率校正, 所有结果均以干重表示.

1.6 统计分析

正态性检验、相关分析和聚类分析所用软件为 SPSS18.0, 样品中 PBDEs 同类物的浓度低于其 LOD 时, 取 $1/2 \text{ LOD}$ 进行统计计算.

2 结果与讨论

2.1 多溴二苯醚的含量及分布特征

在所有沉积物样品中都能检测到 PBDEs 的存在, 但各同类物的检出率差别较大. 各 PBDEs 同类物的检出率为 25.6% ~ 100%, 平均值为 61.9%. 在测定的 41 种同类物中 BDE47、BDE49、BDE99、BDE153、BDE183、BDE203、BDE206、BDE207、BDE208 和 BDE209 检出率 $> 90\%$, 其中 BDE203、BDE206、BDE207、BDE208 和 BDE209 检出率均为 100%, 而 BDE7、BDE8、BDE10、BDE11、BDE12、BDE13、BDE30、BDE32、BDE33、BDE126 和 BDE155 的检出率 $< 50\%$.

$\sum_{40} \text{PBDEs}$ (不包括 BDE209) 在沉积物中的含量为 $0.177 \sim 161 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 平均值为 $22.5 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, BDE209 的含量为 $0.36 \sim 958 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 平均值为 $148 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$. 从空间分布上看, 7 个采样点 (6、9、18、22、23、24 和 31) PBDEs 含量较高, 41 种 PBDEs 同类

物浓度之和 ($\sum_{41} \text{PBDEs}$) $> 500 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 其中采样点 22 的 $\sum_{41} \text{PBDEs}$ 浓度最高 ($1\,040 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$), 该采样点靠近一大型电子废物拆解厂, 其余 6 个采样点, 有的仍有电子废物拆解活动, 有的过去曾经是电子废物拆解点, 显然这些高污染点都与电子废物拆解活动有关. 有 12 个采样点 (1、2、3、7、8、17、20、27、28、37、38 和 39) 的 $\sum_{41} \text{PBDEs}$ 浓度较低 ($< 10 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$), 这些采样点大都远离电子废物拆解点, 受电子废物拆解活动的影响小, 但采样点 17 例外, 该采样点位于污染较为严重的区域内, $\sum_{41} \text{PBDEs}$ 浓度仅为 $3.56 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 这是由于该点所处河段采不到沉积物, 而当时水位又较高, 在岸边采集的样品缺乏代表性. 其余 20 个采样点的污染状况介于以上 2 种情况之间 ($10 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1} < \sum_{41} \text{PBDEs} < 258 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$), 可能是受以上点源的影响造成的. 本研究区域不同采样点 PBDEs 含量存在较大差异, 反映了研究区域内电子废物的拆解活动较为分散.

2.2 PBDEs 同族体的组成特征与 PBDEs 来源分析

PBDEs 工业品的各种组分在生产和使用过程中可以释放到周围环境中, 高溴 PBDEs 同类物特别是十溴二苯醚, 一旦进入到环境介质中, 可以通过化学降解、光降解、微生物降解、生物降解等途径脱溴成为低溴 PBDEs 同类物^[10], 所以在环境介质中从低溴到高溴的多种 PBDEs 同类物均可发现. 沉积物样品中 9 种 PBDEs 同族体的百分组成如图 2 所示. 从图 2 可以看出, 不同的 PBDEs 同族体在所有样品中百分含量各不相同, 十溴二苯醚 (BDE209) 是最主要的同族体, 占 38.4% ~ 96.0%, 平均值为 74.4%, 16 个采样点中 BDE209 的百分含量超过 80%, 其中 6 个超过了 90%, 94.5% 的采样点 BDE209 的贡献超过 50%, 仅有 2 个采样点 (14 和 27) BDE209 的相对含量低于 50%, 分别为 49.9% 和 43.4%. 其次是九溴 PBDEs 同族体, 占 3.3% ~ 25.8%, 平均值为 14.0%. 与广泛使用的十溴工业品 Saytex 102E 的组成 (九溴 PBDEs 同族体占 2.49%) 相比, 本研究区域沉积物样品中的九溴 PBDEs 同族体相对含量明显较高, 可能是由于 BDE209 脱溴降解作用^[11,12], 使九溴 PBDEs 同族体含量升高. 在二溴 PBDEs ~ 八溴 PBDEs 同族体中, 七溴 PBDEs 同族体的含量相对较高, 占 0.01% ~ 14.1% (平均 2.2%).

为研究沉积物样品与 3 种工业品中 PBDEs 同

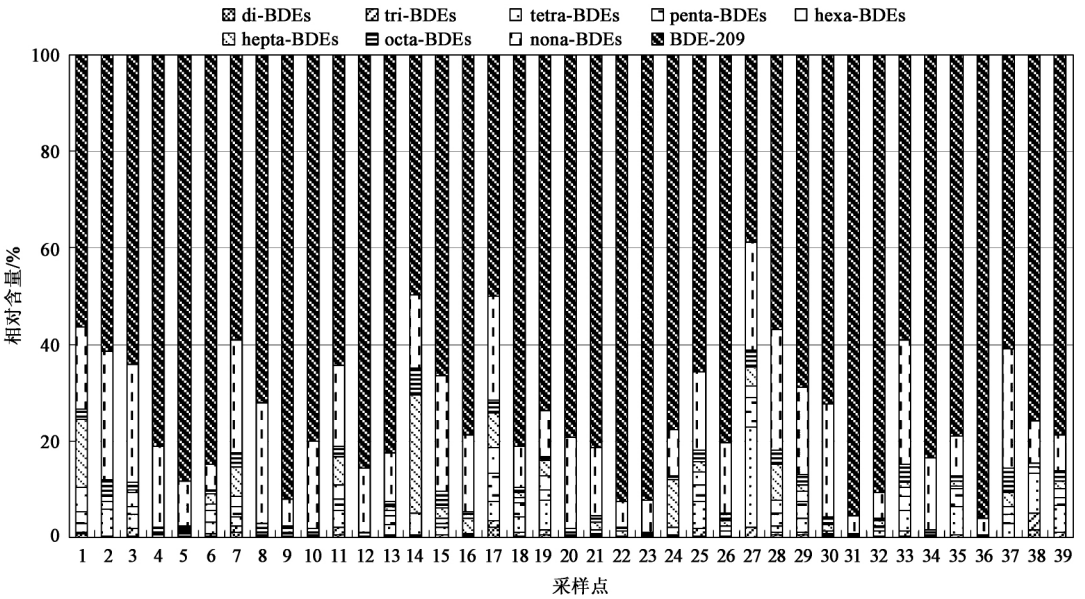


图2 河流沉积物中PBDEs同族体的相对组成

Fig.2 Relative compositions of PBDEs homologues in river sediments

族体组成的关系,进而弄清样品中PBDEs的可能来源,对数据进行标准化变换后,以欧氏距离度量样品间的亲疏程度,采用离差平方和法对39个沉积物样品和3种PBDEs工业品^[13]进行了聚类分析(hierarchical cluster analysis, HCA).谱系聚类结果如图3所示.所有样品可分为3类.第1类包括24个样品和deca-BDE工业品,第2类包括15个样品和octa-BDE工业品,第3类只包括penta-BDE工业品.结合前面PBDEs同族体组成特征的分析可知,第1类中的24个样品主要含十溴代PBDEs,其组成与deca-BDE工业品相似,说明这24个样品主要受到deca-BDE工业品的污染.第2类中的15个样品除了受到deca-BDE工业品的污染外,还受到octa-BDE工业品污染.本区域中penta-BDE工业品对河流污染的影响不大.

2.3 PBDEs同类物与TOC的相关分析

对PBDEs各同类物和TOC进行了皮尔逊相关分析.结果表明,各PBDEs同类物之间显著性相关($\alpha = 0.05, p < 0.03$),表明PBDEs同类物有相似的输入途径.而BDE7、BDE138、BDE190和BDE207与TOC之间呈显著性相关($\alpha = 0.05, p < 0.05$),其他PBDEs同类物与TOC之间无显著统计相关性($\alpha = 0.05, p > 0.05$).

2.4 与其它地区沉积物中PBDEs含量的比较

与国内外相关研究结果(表1)相比,路桥河流表层沉积物中PBDEs污染水平低于英国Clyde河

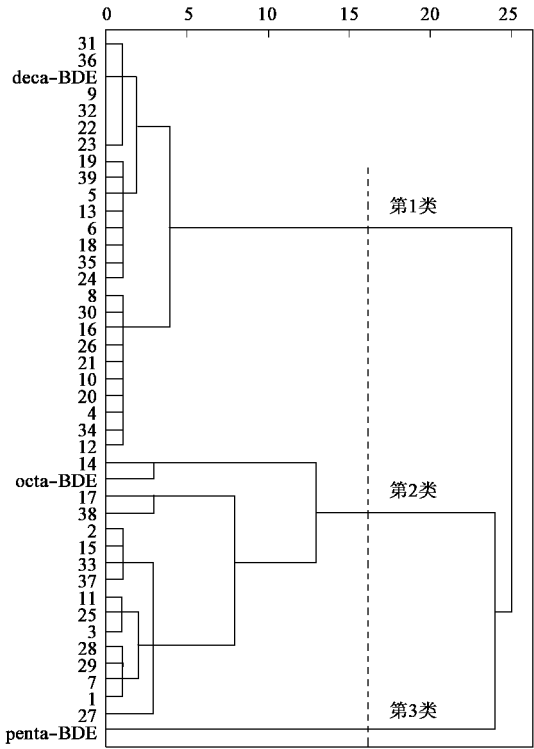


图3 河流沉积物样品与PBDEs工业品谱系聚类图

Fig.3 Tree diagram for river sediment samples and PBDEs technical formulations

口^[14]、荷兰Scheldt河口^[15]以及西班牙Vero河^[16]等沉积物中的水平,同时也低于我国渤海^[3]、珠江口^[17]、珠江^[18]、东江^[18]等污染较严重的水体沉积物

中的水平;高于日本Tokyo湾^[19]和我国西江^[18]、厦门近海^[20]、长江三角洲^[21];与韩国 Busan 湾^[22] 和美国 Great Lake^[23~25] 的污染水平相当. 总体来说,本研究区域河流沉积物中 PBDEs 污染处于中低水平.

表 1 国内外表层沉积物中 PBDEs 的含量(以干重计)/ ng·g⁻¹
Table 1 Concentrations of PBDEs in sediments all over the world(dw)/ ng·g⁻¹

研究地点	同类物个数	∑ PBDEs ¹⁾	BDE209	文献
Clyde 河口(英国)	16	1 ~ 307	1 ~ 2 337	[14]
Scheldt 河口(荷兰)	15	14 ~ 22	240 ~ 1 650	[15]
Vero 河(西班牙)	23	2. 60 ~ 1 936 (402)	7. 46 ~ 12 459 (4 542)	[16]
Tokyo 湾(日本)	10	0. 051 ~ 3. 6	0. 89 ~ 85	[19]
Busan 湾(韩国)	20	(1. 8)	14. 0 ~ 2 248 (283)	[22]
Great Lake(美国)	9	0. 49 ~ 6. 33	4. 3 ~ 211. 2	[23 ~ 25]
渤海	14	0. 07 ~ 5. 24	0. 30 ~ 2 776	[3]
珠江口	11	34. 1 ~ 444. 5	792 ~ 4 137	[17]
珠江	10	0. 78 ~ 49. 28 (12. 87)	27. 23 ~ 3 575. 3 (890. 3)	[18]
东江	10	2. 21 ~ 94. 72 (26. 92)	10. 46 ~ 7 341 (1 441)	[18]
西江	10	0. 13 ~ 0. 59 (0. 36)	1. 95 ~ 77. 4 (16. 06)	[18]
厦门近海	8	0. 27 ~ 76. 54 (16. 31)	0. 10 ~ 70. 11 (14. 94)	[20]
长江三角洲	13	nd ²⁾ ~ 0. 55 (0. 15)	0. 16 ~ 94. 6 (13. 4)	[21]
台州路桥	41	0. 177 ~ 161 (22. 5)	0. 36 ~ 958 (148)	本研究

1) ∑ PBDEs 不包括 BDE209, 括号内为平均值; 2) nd 为低于检测限

3 结论

(1) 在路桥所有沉积物样品中, 都能检测到 PBDEs, ∑₄₀ PBDEs(不包括 BDE209) 的含量为 0. 177 ~ 161 ng·g⁻¹, 平均值为 22. 5 ng·g⁻¹, BDE209 的含量为 0. 36 ~ 958 ng·g⁻¹, 平均值为 148 ng·g⁻¹. 该区域不同采样点含量差异较大, 说明存在点源污染.

(2) 沉积物样品中 PBDEs 同族体组成特征为: 多数样品中最主要的 PBDEs 同族体是十溴二苯醚(BDE209), 占 38. 4% ~ 96. 0%, 平均值为 74. 4%, 94. 5% 的样品中 BDE209 的贡献超过 50%, 九溴 PBDEs 和七溴 PBDEs 次之, 分别占 3. 3% ~ 25. 8% 和 0. 01% ~ 14. 1% .

(3) 同族体组成和聚类分析表明, 所有采样点均受到 deca-BDE 工业品的污染, 另有一些采样点除受到 deca-BDE 工业品的污染外, octa-BDE 工业品也有一定的贡献. PBDEs 同类物相关性分析表明: 大多数 PBDEs 同类物有相似的输入途径.

(4) 与国内外其它研究相比, 研究区域内沉积物中 PBDEs 污染处于中低水平, 但个别样点受点源污染影响较大, 值得关注.

参考文献:

[1] Law R J, Allechin C R, de Boer J, *et al.* Levels and trends of brominated flame retardants in the European environment [J]. Chemosphere, 2006, **64**(2): 187-208.

[2] 吕杨, 王立宁, 黄俊, 等. 海河渤海湾地区沉积物、鱼体样品中多溴联苯醚的水平与分布[J]. 环境污染与防治, 2007, **29**(9): 652-660.

[3] Wang Z, Ma X D, Lin Z S, *et al.* Congener specific distributions of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in sediment and mussel (*Mytilus edulis*) of the Bo Sea, China [J]. Chemosphere, 2009, **74**(7): 896-901.

[4] 李英明, 江桂斌, 王亚韡, 等. 电子垃圾拆解地大气中二噁英、多氯联苯、多溴联苯醚的污染水平及相分配规律[J]. 科学通报, 2008, **53**(2): 165-171.

[5] Zhao G F, Wang Z J, Dong M H, *et al.* PBBs, PBDEs, and PCBs levels in hair of residents around e-waste disassembly sites in Zhejiang Province, China, and their potential sources [J]. Science of the Total Environment, 2008, **397**(1-3):46-57.

[6] Luo Y, Luo X J, Lin Z, *et al.* 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 [J]. Science of the Total Environment, 2009, **407**(3):1105-1113.

[7] Wen S, Yang F, Li J G, *et al.* Polychlorinated dibenzo-p-dioxin and dibenzofurans (PCDD/Fs), polybrominated diphenyl ethers (PBDEs), and polychlorinated biphenyls (PCBs) monitored by tree bark in an e-waste recycling area[J]. Chemosphere, 2009, **74**(7): 981-987.

[8] Zhao G F, Zhou H D, Wang D H, *et al.* PBBs, PBDEs, and PCBs in foods collected from e-waste disassembly sites and daily intake by local residents[J]. Science of the Total Environment, 2009, **407**(8): 2565-2575.

[9] 王璟, 陈社军, 田密, 等. 电子废弃物处理地室内外灰尘中多溴联苯醚的污染及其人群暴露水平[J]. 环境科学, 2010, **31**(1):173-178.

- [10] 王亚韡, 蔡亚岐, 江桂斌. 斯德哥尔摩公约新增持久性有机污染物的一些研究进展[J]. 中国科学:化学, 2010, **40**(2): 99-123.
- [11] Gerecke A C, Hartmann P C, Heeb N V, *et al.* Anaerobic degradation of decabromodiphenyl ether [J]. Environmental Science and Technology, 2005, **39**(4): 1078-1083.
- [12] Nose K, Hashimoto S, Takahashi S, *et al.* Degradation pathways of decabromodiphenyl ether during hydrothermal treatment [J]. Chemosphere, 2007, **68**(1): 120-125.
- [13] Guardia M J, Hale R C, Harvey E, *et al.* Detailed polybrominated diphenyl ether (PBDE) congener composition of the widely used penta-, octa-, and deca-PBDE technical flame-retardant mixtures [J]. Environmental Science and Technology, 2006, **40**(20): 6247-6254.
- [14] Vane C H, Ma Y J, Chen S J, *et al.* Increasing polybrominated diphenyl ether (PBDE) contamination in sediment cores from the inner Clyde Estuary, UK [J]. Environmental Geochemistry and Health, 2010, **32**(1): 13-21.
- [15] Verslycke T A, Vethaak A D, Arijs K, *et al.* Flame retardants, surfactants and organotins in sediment and mysid shrimp of the Scheldt estuary (The Netherlands) [J]. Environmental Pollution, 2005, **136**(1): 19-31.
- [16] Eljarrat E, Labandeira A, Marsh G, *et al.* Decabrominated diphenyl ether in river fish and sediment samples collected downstream an industrial park [J]. Chemosphere, 2007, **69**(8): 1278-1286.
- [17] Xiang C H, Luo X J, Chen S J, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers in biota and sediments of the Pearl River Estuary, South China [J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2007, **26**(4): 616-623.
- [18] 陈社军, 麦碧娴, 曾永平, 等. 珠江三角洲及南海北部海域表层沉积物中多溴联苯醚的分布特征[J]. 环境科学学报, 2005, **25**(9): 1265-1271.
- [19] Minh N H, Isobe T, Ueno D, *et al.* Spatial distribution and vertical profile of polybrominated diphenyl ethers and hexabromocyclododecanes in sediment core from Tokyo Bay, Japan [J]. Environmental Pollution, 2007, **148**(2): 409-417.
- [20] Li Q Z, Yan C Z, Luo Z X, *et al.* Occurrence and levels of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in recent sediments and marine organisms from Xiamen offshore areas, China [J]. Marine Pollution Bulletin, 2010, **60**(3): 464-469.
- [21] Chen S J, Gao X J, Mai B X, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers in surface sediments of the Yangtze River Delta: Levels, distribution and potential hydrodynamic influence [J]. Environmental Pollution, 2006, **144**(3): 951-957.
- [22] Moon H B, Kannan K, Choi M, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in marine sediments from industrialized bays of Korea [J]. Marine Pollution Bulletin, 2007, **54**(9): 1402-1412.
- [23] Song W, Ford J C, Li A, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers in the sediments of the Great Lakes. 1. Lake Superior [J]. Environmental Science and Technology, 2004, **38**(12): 3286-3293.
- [24] Song W, Li A, Ford J C, Sturchio N C, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers in the sediments of the Great Lakes. 2. Lakes Michigan and Huron [J]. Environmental Science and Technology, 2005, **39**(10): 3474-3479.
- [25] Song W, Ford J C, Li A, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers in the sediments of the Great Lakes. 3. Lakes Ontario and Erie [J]. Environmental Science and Technology, 2005, **39**(15): 5600-5605.