

东江下游入河排污水卤系阻燃剂质量浓度及排放通量

曾艳红^{1,2}, 罗孝俊^{1*}, 孙毓鑫^{1,2}, 余乐洵^{1,2}, 陈社军¹, 麦碧娴¹

(1. 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; 2. 中国科学院研究生院, 北京 100049)

摘要:采用二氯甲烷萃取、氧化铝/硅胶复合柱纯化和气相色谱质谱联用仪检测的方法, 分析了东江三角洲入河排污口 14 个污水样品中卤系阻燃剂的浓度并估算其相应的排放通量. 结果表明, 十溴二苯乙烷 (DBDPE) 已成为污水中的主要卤系阻燃剂, 占总卤系阻燃剂的 64%, 其浓度范围为 9.1 ~ 990 ng/L, 其次为多溴联苯醚 (PBDEs), 占总卤系阻燃剂的 30%, 其浓度范围为 6.9 ~ 470 ng/L, 其中 BDE209 是主要组成成分. 其它阻燃剂如德克隆 (DP)、1,2-双(2,4,6-三溴苯氧基)乙烷 (BTBPE)、六溴苯 (HBB)、五溴甲苯 (PBT) 的浓度范围分别为 0.17 ~ 23.6、nd ~ 26.3、nd ~ 1.45 和 nd ~ 0.45 ng/L. 与广州污水处理厂中 PBDEs 的对比发现东江排污口污水中 PBDEs 的浓度与污水处理厂进水浓度相当, 表明排污口排出的污水可能未经污水厂处理直接排放. 年排放量计算结果表明, 通过污水年排入东江的卤系阻燃剂总量为 191 kg, 工业废水排放的卤系阻燃剂占总排放的 48% ~ 91%, 是卤系阻燃剂的主要来源.

关键词:卤系阻燃剂; 排污水; 通量; 东江; 来源

中图分类号: X142; X131 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2011)10-2891-05

Concentration and Emission Fluxes of Halogenated Flame Retardants in Sewage from Sewage Outlet in Dongjiang River

ZENG Yan-hong^{1,2}, LUO Xiao-jun¹, SUN Yu-xin^{1,2}, YU Le-huan^{1,2}, CHEN She-jun¹, MAI Bi-xian¹

(1. State Key Laboratory of Organic Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China; 2. Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: Fourteen sewage samples from sewage outlets in Dongjiang River were collected. Halogenated flame retardants were extracted and purified using dichloromethane and alumina/silica-gel column, respectively. The concentrations of halogenated flame retardants were measured utilizing GC/MS, and the emission fluxes were estimated. Decabromodiphenyl ethane (DBDPE) was the predominant halogenated pollutant (accounting for 64%) in sewage with the concentration ranging from 9.1 ng/L to 990 ng/L. The concentrations of polybrominated biphenyl ether (PBDEs), dominated by BDE209, in the sewage ranged from 6.9 ng/L to 470 ng/L, accounting for 30% of total halogenated flame retardants. The concentrations of other flame retardants, such as dechlorane plus (DP), 1,2-bis(2,4,6-tribromophenoxy) ethane (BTBPE), hexabromobenzene (HBB), and pentabromotoluene (PBT), were ranged within 0.17-23.6, nd-26.3, nd-1.45 and nd-0.45 ng/L, respectively. The concentrations of PBDEs in sewage of Dongjiang River were comparable to those in influent wastewater of sewage treatment plants of Guangzhou, suggesting that the wastewater was discharged directly into Dongjiang River without any treatment. The emission flux of halogenated flame retardants from sewage was 191 kg. Emission from industrial wastewater, contributed to 48% - 91% of total emission, was the main source of halogenated flame retardants.

Key words: halogenated flame retardant; sewage; flux; Dongjiang River; source

卤系阻燃剂的污染是近几十年环境学界持续关注的问题. 卤系阻燃剂包括溴系和氯系两大类. 常见的卤系阻燃剂包括多溴联苯醚 (PBDEs)、四溴双酚 A (TBBPA)、六溴环十二烷 (HBCD)、五溴甲苯 (PBT)、氯化石蜡、德克隆 (DP) 等. 最近的研究表明, 卤系阻燃剂 (如 PBDEs) 具有环境持久性、长距离迁移性、生物可富集性及对生物和人体潜在毒性等持久性有机污染物 (POPs) 所具有的特征^[1~6]. 2009 年, 五溴联苯醚工业品和八溴联苯醚工业品被列入斯德哥尔摩公约的 POPs 清单^[7,8]. 随着对 PBDEs 类阻燃剂使用的限制, 产业界开始寻求 PBDEs 的替代品. 十溴二苯乙烷 (DBDPE) 和 1,2-双

(2,4,6-三溴苯氧基)乙烷 (BTBPE) 作为十溴联苯醚和八溴联苯醚的替代品已开始大量生产和使用, 它们已广泛出现在环境介质和生物样品中^[9~11]. 德克隆的化学名称为双(六氯环戊二烯)环辛烷 (DP), 使用历史已有近 40 年, 但其在环境中出现的报道在最近几年才开始. 目前, 各类环境介质中均检

收稿日期: 2010-11-12; 修订日期: 2011-01-13

基金项目: 中国科学院知识创新工程重要方向项目 (KZCX2-YW-Q02-01); 中国科学院知识创新工程青年人才项目 (KZCX2-EW-QN105); 国家自然科学基金项目 (40821003, 40632012)

作者简介: 曾艳红 (1985 ~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为有机污染物的生物地球化学, E-mail: zyh_0919@163.com

* 通讯联系人, E-mail: luoxiaoj@gig.ac.cn

出 DP^[12-14],研究还表明 DP 存在生物富集与放大现象^[15,16],但目前对 DP 毒害性的了解还不是十分清楚.因此,关于非-PBDEs 类阻燃剂的环境污染问题已成为当前环境研究的一个热点^[17,18].

珠江三角洲地区电子电器制造业发达,是潜在的卤系阻燃剂高污染区.前期的相关研究发现,东莞地区东江三角洲河流沉积物中 PBDEs 类阻燃剂含量高于珠江三角洲地区其它河流(珠江、西江)沉积物,处于现有报道的高值区^[19,20].工业废水和生活污水的排放是河流污染物的主要来源^[21],但目前有关排污废水中卤系阻燃剂浓度及排污通量的报道极少.本研究的主要目的是通过分析东江三角洲河流排污口污水中卤系阻燃剂的浓度,了解卤系阻燃剂

的组成和分布,评估通过废水排放进入东江的卤系阻燃剂排放量.

1 材料与方法

1.1 样品采集与前处理

2009 年 7 月沿东江下游东莞地区东江三角洲主要河流排污口收集入河排污废水.排污口类型包括工厂排污口、河涌入河排污口及其它性质不明的排污口.共采集排污口污水样品 14 个(A1~A14),样品采样体积为 2 L.用棕色玻璃瓶灌装采样.样品的基本信息见表 1,位置分布见图 1.样品收集后于当天送回实验室,第 2 d 进行样品萃取处理.

样品的前处理:水样中加入回收率指示物标样

表 1 采样信息基本情况
Table 1 Information of samples

编号	纬度(N)	经度(E)	体积/L	pH	污水类型
A1	113°50'55"	23°07'04"	2.3	7~8	河涌污水
A2	113°48'18"	23°07'58"	2.3	7~8	河涌污水
A3	113°38'14"	23°04'45"	2.3	6~7	工厂排放水
A4	113°34'10"	23°02'38"	2.3	7	工厂排放水
A5	113°32'07"	23°02'13"	2.2	7	不明
A6	113°33'18"	23°03'13"	2.2	6~7	工厂排放水
A7	113°35'02"	22°57'28"	2.1	9	工厂排放水
A8	113°37'19"	22°59'38"	2.3	7	工厂排放水
A9	113°40'16"	23°05'32"	2.4	7	生活污水
A10	113°48'52"	23°05'37"	2.4	7	河涌污水
A11	113°39'08"	23°02'35"	2.2	6	工厂排放水
A12	113°40'03"	23°02'07"	2.4	7	不明
A13	113°43'37"	23°01'55"	2.3	7	不明
A14	113°55'30"	23°06'32"	2.2	7	河涌污水

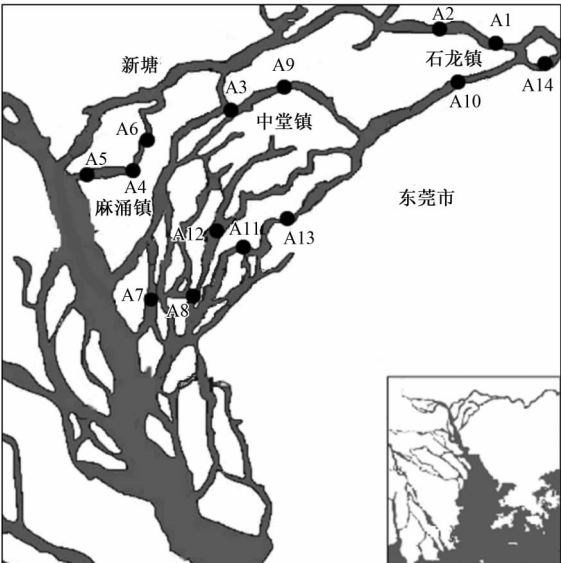


图 1 采样点分布示意
Fig. 1 Map of the sampling locations

BDE77、BDE181 和 ¹³C₁₂-BDE209,每 1 L 水样用 60 mL 二氯甲烷(色谱纯)萃取,收集有机相.重复该操作 3 次,合并萃取液,将萃取液浓缩转换溶剂为正己烷(色谱纯),旋转蒸发至体积约 1 mL 左右.转移入氧化铝/硅胶复合柱(氧化铝:中性硅胶 = 6 cm: 6 cm),用 40 mL 正己烷(色谱纯)淋洗.收集淋洗液后浓缩至 1 mL,转移至 1.8 mL 小瓶(Wheaton, USA)中,氮吹定容为 200 μL,加内标(BDE118 和 BDE128)后进行仪器分析.

1.2 仪器分析及质量控制与保证

本次检测的卤代阻燃剂目标化合物包括:六溴苯(HBB)、PBT、五溴乙苯(PBEB)、PBDEs(BDE28、47、66、100、99、154、153、183、208、207、206 和 209)、BTBPE、DBDPE、DP(syn-DP 和 anti-DP).BTBPE、DBDPE 及 BDE208、207、206 和 209 的测定采用岛津气相色谱-质谱联用仪(Shimadzu GCMS-

QP2010),负化学离子源(NCI),选择离子检测模式检测,色谱柱为 DB-5HT(15 m × 0.25 μm × 0.10 μm).其他化合物的定量采用安捷伦气相色谱-质谱联用仪(6890N GC-5975B MS),负化学离子源(NCI),SIM 检测模式.色谱柱为 DB-XLB(30 m × 0.25 μm × 0.25 μm). DP、BDE209 和 ¹³C-BDE209 的定量检测离子分别为 653.8、486.7 和 494.7. 其余化合物的定量离子为 79,柱温程序见文献[22]. 定量方法采用内标多点校正曲线法. 每条校正曲线的相关因子均大于 0.99. 质量控制与保证包括方法空白、基质加标(纯水中添加 BDE28、47、66、100、99、85、154、153、138、183、209、DBDPE、*syn*-DP 和 *anti*-DP)及每个样品添加回收率替代物等措施. 方法空白中有痕量 BDE209(1.7 ng/L ± 0.2 ng/L)和 BDE47(0.16 ng/L ± 0.02 ng/L)检出,其它目标化合物无检出. 回收率替代物 BDE77、BDE181 和 ¹³C-BDE209 的回收率范围分别为 89.6% ~ 112.2%、91.0% ~ 98.3% 和 70.5% ~ 115.0%. 基质加标目标化合物回收率为:PBDEs(BDE28 ~ BDE183 共 10 个同系物):平均 98% ~ 110%, BDE209: 98.7% ~ 120.4%; DBDPE: 87% ~ 108%; *syn*-DP: 93% ~ 109%; *anti*-DP: 93% ~ 101%. 3 个基质加标的标准偏差均小于 15%(0.38% ~ 11.6%).

2 结果与讨论

2.1 卤代阻燃剂浓度水平

11 个被检测的 PBDE 单体中,BDE47、99、100、209 的检出频率为 100%. BDE183 和 BDE66 仅在 2 个水样中检出. BDE208、207 和 206 在 12 个样品中检出. PBDE 的同系物组成以 BDE209 为主, 占总 PBDE 含量的 60% ~ 93%(图 2). 其次分别为 BDE208、207、206、BDE47 和 BDE99(单个化合物的贡献 < 7%). 这种 PBDE 组成模式与沉积物的检测结果一致^[19,20],也与广州污水处理厂中 PBDEs 的组成模式相同^[23];而与北美污水中 PBDEs 的组成存在较大差异(BDE47: 21.5% ~ 36.1%, BDE99: 12.1% ~ 38.6%)^[24]. 这种模式表明十溴联苯醚工业品是当地主要使用的 PBDEs 阻燃剂. PBDEs 在 14 个排污口污水中的浓度范围为 6.91 ~ 470.01 ng/L, 中值浓度为 20.05 ng/L. 在广州污水处理厂进水中 PBDEs 的浓度范围为 13.3 ~ 2 496 ng/L,而出水中 PBDEs 的浓度降至 0.9 ~ 4.4 ng/L^[23]. 与之相比,东江排污口污水中 PBDE 的浓度更接近于污水处理厂进水中 PBDEs 的浓度,表明排污口排出污水可能未

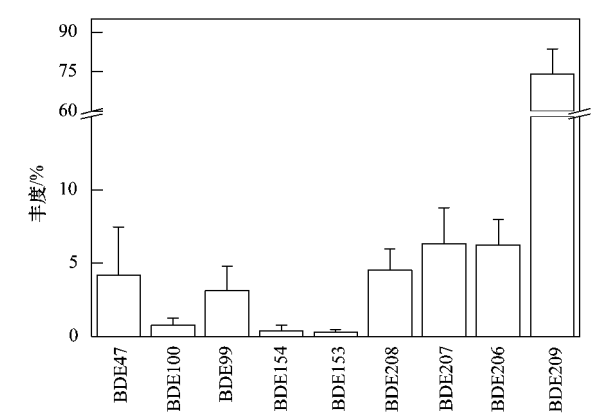


图 2 水体中多溴联苯醚各单体的丰度
Fig.2 Abundance of individual congener to total PBDEs

经污水处理厂处理.

DBDPE 在 14 个污水样中均有检出,其浓度范围为 9.1 ~ 991.0 ng/L,中值浓度为 37.9 ng/L. 关于污水中 DBDPE 的浓度目前还少见报道. Ricklund 等^[25]检测了 12 个国家 42 个污水处理厂污泥中 DBDPE 的含量,其中值含量为 37 ng/g,最高含量为 216 ng/g. DBDPE 主要作为 BDE209 的替代品生产和使用. 污水中高的 DBDPE 含量表明该产品在东莞地区正被大量使用. 作为八溴联苯醚替代品, BTBPE 在 9 个污水样品中被检出,其浓度(nd ~ 26.3 ng/L)比 DBDPE 要低 1 ~ 2 个数量级.

DP 在所有样品中均有检出. 其浓度范围为 0.17 ~ 26.3 ng/L,中值为 1.04 ng/L. DP 主要用于电缆、电线及电脑连接器等产品. 其工业品主要由顺式(*syn*-DP)和反式(*anti*-DP)2 种结构组成. 工业品中反式 DP 所占比例 [$f_{anti} = anti-DP / (syn-DP + anti-DP)$] 报道范围为 0.68 ~ 0.82^[12]. 本研究中 DP 的 f_{anti} 为 0.74 ± 0.08. 与工业品组成基本相似. 表明其在污水中不存在明显的异构体选择性降解. 这与电子垃圾拆解地水体环境中介质(水、悬浮物、层沉积物)DP 的组成(f_{anti} 为 0.66 ~ 0.84)相似,但与水生生物存在明显差别. 在电子拆解地水生生物样品中发现明显的顺式富集现象^[15]. PBT 和 HBB 在污水样中也有较高的检出频率,分别达到 86% 和 64%. 其浓度范围分别为 nd ~ 0.45 ng/L 和 nd ~ 1.45 ng/L. PBEB 和 PTBX 仅在 2 个样品被检出,表明在研究区域较少被使用.

卤代阻燃剂浓度(见图 3)较高的 6 个排污口为 A1、A2、A3、A4、A6 和 A8,其中 A3、A4、A6、A8 站为工厂排污口排放废水,A1 和 A2 为河涌废水. 其它浓度较低排污口废水分别来自河涌水闸排放水(A10 和

A14)、造纸厂废水(A7和A11)、生活污水(A9)及其它不明废水.由于卤代阻燃剂主要用于电子/电器等产品,而电子/电器产业是东莞各镇的企业,因此,电子/电器产业废水排放可能是东江污水中卤系阻燃剂的主要来源,需要展开更进一步的研究.

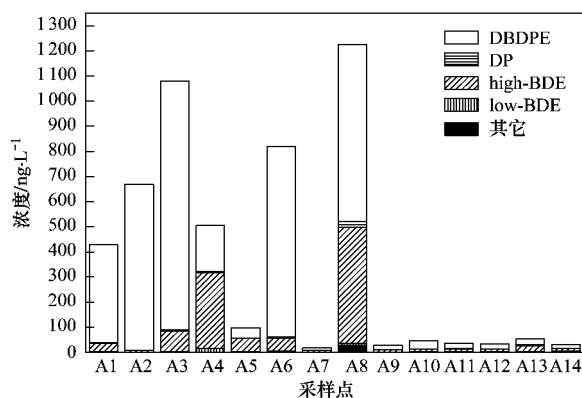


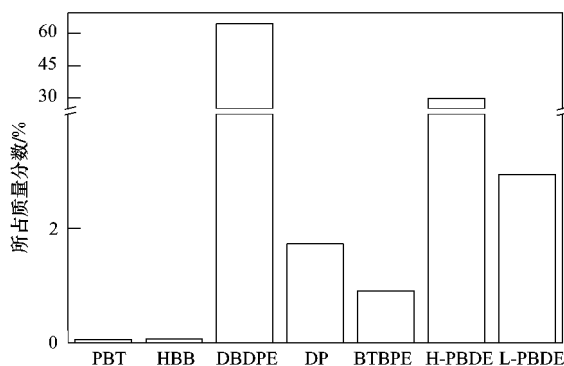
图3 样品中卤系阻燃剂的浓度

Fig. 3 Concentrations of halogenated flame retardants

2.2 卤系阻燃剂的组成特点

对每个样品中各类化合物所占质量分数进行了分析,结果见图4.可以看出,DBDPE在所检测的卤系阻燃剂中所占份额最高,其平均贡献量达到了64%.以BDE209和BDE208、207、206为主的十溴联苯醚工业品占总卤系阻燃剂的30%;而低溴联苯醚(主要是五溴联苯醚工业品)所占质量分数约为3%.DP所占质量分数为1.7%,其它化合物如BTBPE、HBB、PBT所占质量分数低于1%.这一结果表明DBDPE在研究区域的使用量已超过十溴联苯醚,成为当前主要使用的溴系阻燃剂.这种使用情况的变化与当前工业界卤系阻燃剂的产品转型一致.在2006年采集的东江沉积物中,BDE209含量仍高于DBDPE,但沉积柱中的垂向分布研究显示BDE209呈下降趋势,而DBDPE则呈现出上升趋势^[20].这种趋势的变化反映了BDE209逐渐被DBDPE所取代.这与本研究中DBDPE含量高于BDE209的含量是一致的.DBDPE于2004年在我国形成工业规模的生产,其使用量年增幅达到80%^[20].随着PBDEs生产和使用限制越来越严格,DBDPE的使用量将会出现持续的增加趋势.现有研究已证实DBDPE能在生物体内富集并发生代谢^[11],因此需要加强对DBDPE污染的监测以控制相关的生态风险.十溴联苯醚目前仍被允许使用,可以预见BDE209的排放仍将持续较长时间.五溴联苯醚已被禁用,但前期使用的五溴联苯醚会在产品的使用

和回收周期中向环境中持续排放.BTBPE的贡献量低于1%表明八溴联苯醚替代品在本区域的使用量有限,未来在环境中的含量是否会上升还有待更进一步研究.排污口污水中卤系阻燃剂的组成特点表明在继续关注PBDEs类阻燃剂污染的同时,也需要加强相关替代品的检测分析,以了解整个区域的卤代阻燃剂污染状况的变化,为相应的管理作好准备.



H-PBDE: BDE209, 208, 207 和 206, L-PBDE: 其它同系物

图4 水体中卤系阻燃剂的组成

Fig. 4 Abundance of halogenated flame retardants

2.3 河流排污口卤系阻燃剂排放通量估算

东江在东江三角洲主要流经广东最大的电子产业基地东莞市.根据广东省统计年鉴发布数据,2009年东莞市污水排放总量为 7.46×10^8 t,其中工业废水为 3.00×10^8 t^[26].计算排污废水进入东江的卤系阻燃剂通量需要掌握各种不同类型排污废水的准确排放量及其相应的卤系阻燃剂浓度.由于缺乏相关的数据信息,目前还无法作到精确计算.本研究中所采集的污水口包括工业废水排污口、生活污水排污口、河涌排污口及其它性质不明排污口,其所含卤系阻燃剂的量为进入河水中的最终浓度,可以直接反映排污废水的排污情况.因此,利用相关数据可以对通过排污口进入东江的卤系阻燃剂的排放通量进行大致估算.计算过程中以工厂排污口废水中数据代表工业排污废水的浓度,其它排污口数据代表生活和其它污水的浓度.其计算公式为:

$$F = c_1 \times Q_1 + c_2 \times Q_2$$

式中 c_1 和 c_2 分别为工业废水和其它废水中卤系阻燃剂浓度; Q_1 和 Q_2 为工业废水和其它废水排放量.考虑到废水中卤系阻燃剂含量为非正态分布, c_1 和 c_2 分别应用中值浓度.计算得到DBDPE、PBDEs、DP、BTBPE、HBB和PBT的年排放量分别为145.7、43.3、1.4、0.47、0.05和0.05 kg.总排放量为191 kg/a.其中工业废水排放量占DBDPE、PBDEs、DP、BTBPE、

HBB 和 PBT 总排放量的 91%、48%、85%、54%、56% 和 62%。这一结果表明工业废水是东江三角洲卤系阻燃剂的主要来源。Peng 等^[23]的研究表明,经过污水处理厂处理,污水中 PBDE 的含量可下降达 2~3 个数量级。本研究中排污废水中浓度与污水厂进水中卤系阻燃剂浓度相当。显然,加强对排污废水的处理力度是降低卤系阻燃剂排放量的有效措施。

3 结论

东江三角洲入河排污废水中各类卤系阻燃剂普遍检出,卤系阻燃剂总浓度范围为 17.9~1 226.4 ng/L,工厂排污废水及部分河涌排污水中卤系阻燃剂浓度较高。DBDPE 已成为废水中主要的污染物,其次为 PBDEs 和 DP。排污废水中 PBDEs 浓度接近污水处理厂进水浓度,表明大部分排污水可能未经污水处理直接排放进入东江。年排放量计算表明,东江三角洲卤系阻燃剂年排放量为 191 kg,工业废水是卤系阻燃剂的主要来源。

参考文献:

- [1] 刘汉霞,张庆华,江桂斌,等. 多溴联苯醚及其环境问题[J]. 化学进展,2005,17(3):554-562.
- [2] 任金亮,王平. 多溴联苯醚环境行为的特征与研究进展[J]. 化工进展,2006,25(10):1152-1157.
- [3] 罗孝俊,麦碧娴,陈社军. PBDEs 研究的最新进展[J]. 化学进展,2009,21(2/3):359-368.
- [4] De Wit C A. An overview of brominated flame retardants in the environment[J]. Chemosphere, 2002, 46(5): 583-624.
- [5] Wang Y W, Jiang G B, Lam P K S, et al. Polybrominated diphenyl ether in the East Asian environment: A critical review [J]. Environment International, 2007, 33(7): 963-973.
- [6] 黄玉妹,陈来国,许振成,等. 家庭尘土中多溴联苯醚的含量及人体暴露水平初步研究[J]. 环境科学,2010,31(1): 168-172.
- [7] Wang B, Lino F, Yu G, et al. The pollution status of emerging persistent organic pollutants in China [J]. Environmental Engineering and Science, 2010, 27(3): 215-225.
- [8] Gauthier L T, Heber C E, Weseloh D V C, et al. Current-use flame retardants in the eggs of herring gulls (*Larus argentatus*) from the Laurentian Great lakes[J]. Environmental Science and Technology, 2007, 41(13): 4561-4567.
- [9] 王亚骅,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(B 辑):化学,2010,40(2):99-123.
- [10] Venier M, Hites R A. Flame retardants in the atmosphere near the Great Lakes[J]. Environmental Science and Technology, 2008, 42(13): 4745-4751.
- [11] Kierkegaard A, Bjorklund J, Friden U. Identification of the flame retardant decabromodiphenyl ethane in the environment [J]. Environmental Science and Technology, 2004, 38(12): 3247-3253.
- [12] Hoh E, Zhu L, Hites R A. Dechlorane plus, a chlorinated flame retardant, in the Great Lakes [J]. Environmental Science and Technology, 2006, 40(4): 1184-1189.
- [13] Wang D G, Yang M, Qi H, et al. An Asia-specific source of dechlorane plus: concentration, isomer profiles, and other related compounds [J]. Environmental Science and Technology, 2010, 44(17): 6608-6613.
- [14] Ren N, Sverko E, Li Y F, et al. Levels and isomer profiles of dechlorane plus in Chinese air[J]. Environmental Science and Technology, 2008, 42(17): 6476-6480.
- [15] Wu J P, Zhang Y, Luo X J, et al. Isomer-specific bioaccumulation and trophic transfer of dechlorane plus in the freshwater food web from a highly contaminated site, South China [J]. Environmental Science and Technology, 2010, 44(2): 606-611.
- [16] Tomy G T, Pleskach K, Ismail N, et al. Isomers of dechlorane plus in Lake Winnipeg and Lake Ontario food webs [J]. Environmental Science and Technology, 2007, 41(7): 2249-2254.
- [17] Luo X J, Chen S J, Mai B X, et al. Advances in the study of current-use non-PBDE brominated flame retardants and dechlorane plus in the environment and humans [J]. Science China-Chemistry, 2010, 53(5): 961-973.
- [18] Gauthier L T, Potter D, Hebert C E, et al. Temporal trends and spatial distribution of non-polybrominated diphenyl ether flame retardants in the eggs of colonial populations of Great Lakes Herring Gulls [J]. Environmental Science and Technology, 2009, 43(2): 312-317.
- [19] 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.
- [20] Zhang X L, Luo X J, Chen S J, et al. Spatial distribution and vertical profile of polybrominated diphenyl ethers, tetrabromobisphenol A, and decabromodiphenylethane in river sediment from an industrialized region of South China [J]. Environmental Pollution, 2009, 157(6): 1917-1923.
- [21] 罗孝俊,陈社军,麦碧娴,等. 长链烷基苯 (LABs) 示踪生活污水对珠江及南海北部海域的污染[J]. 中国环境科学,2006, 26(4):414-417.
- [22] 陈社军,麦碧娴,曾永平,等. 沉积物中多溴联苯醚的测定[J]. 环境化学,2005, 24(4):474-477.
- [23] Peng X Z, Tang C M, Yu Y Y, et al. Concentrations, transport, fate, and releases of polybrominated diphenyl ethers in sewage treatment plants in the Pearl River Delta, South China [J]. Environment International, 2009, 35(2): 303-309.
- [24] North K D. Tracking polybrominated diphenyl ether releases in a wastewater treatment plant. effluent, Palo Alto California [J]. Environmental Science and Technology, 2004, 38(17): 4484-4488.
- [25] Ricklund N A, Kierkegaard A, McLachlan M S. An international survey of decabromodiphenyl ethane (deBDEthane) and decabromodiphenyl ether (decaBDE) in sewage sludge samples [J]. Chemosphere, 2008, 73(11): 1799-1804.
- [26] 广东省统计年鉴 2010 [EB/OL]. http://www.gdstats.gov.cn/tjnj/ml_c.htm.