

# 环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第37卷 第3期

Vol.37 No.3

**2016**

中国科学院生态环境研究中心 主办  
科学出版社 出版



目次

一种气溶胶测量仪器标定系统的设计及性能评估 ..... 陈小彤, 蒋靖坤, 邓建国, 段雷, 郝吉明(789)

空气细菌真菌污染的分级评价构建方法 ..... 张华玲, 姚大军, 张雨, 方子梁(795)

2014年北京APEC期间大气醛酮污染物的污染特征与来源分析 ..... 何晓朗, 谭吉华, 郭送军, 马永亮, 贺克斌(801)

北京市夏季不同O<sub>3</sub>和PM<sub>2.5</sub>污染状况研究 ..... 王占山, 张大伟, 李云婷, 董欣, 孙瑞雯, 孙乃迪(807)

2013年1月南京北郊霾天气气溶胶的光学特性 ..... 王利朋, 马嫣, 郑军, 崔芬萍, 周瑶瑶(816)

上海典型持续性PM<sub>2.5</sub>重度污染的数值模拟 ..... 常炉予, 许建明, 周广强, 吴剑斌, 谢英, 余钟奇, 杨辰(825)

厦门室内多溴二苯醚的沉降通量、季节变化与人体暴露水平 ..... 韩文亮, 刘豫, 陈海明, 陈兴童, 范涛(834)

复合催化膜生物反应器处理一氧化氮废气研究 ..... 黎宝仁, 陈洲洋, 王剑斌, 张再利, 樊青娟, 魏在山(847)

环胶州湾污水处理厂排放口溶解有机氮生物可利用潜力研究 ..... 孔秀君, 张鹏, 杨南南, 梁生康(854)

面向GOCI数据的太湖总磷浓度反演及其日内变化研究 ..... 杜成功, 李云梅, 王桥, 朱利, 吕恒(862)

三峡库区支流澎溪河水华高发期环境因子和浮游藻类的时空特征及其关系 ..... 周川, 蔚建军, 付莉, 崔玉洁, 刘德富, 姜伟, Douglas Haffner, 张磊(873)

三峡库区消落带水体DOM不同分子量组分三维荧光特征 ..... 陈雪霜, 江韬, 卢松, 魏世强, 王定勇, 闫金龙(884)

黄河河南段水体中正构烷烃的分布特征与来源解析 ..... 冯精兰, 席楠楠, 张飞, 刘书卉, 孙剑辉(893)

岩溶地下河流域表层土壤有机氯农药分布特征及来源分析 ..... 谢正兰, 孙玉川, 张媚, 余琴, 徐昕(900)

长期不同耕作方式下紫色水稻土和上覆水中汞及甲基汞的分布特征 ..... 王欣悦, 唐振亚, 张成, 王永敏, 王定勇(910)

长江口沉积物重金属赋存形态及风险特征 ..... 尹肃, 冯成洪, 李扬颀, 殷立峰, 沈珍瑶(917)

涌湖表层沉积物营养盐和重金属分布及污染评价 ..... 熊春晖, 张瑞雷, 吴晓东, 冯立辉, 王丽卿(925)

三峡库区典型支流库湾消落带沉积泥沙特征及重金属评价 ..... 王永艳, 文安邦, 史忠林, 严冬春, 朱波, 唐家良(935)

海河干流水产品汞污染特征及摄入风险评估 ..... 童银栋, 张巍, 邓春燕, 王学军(942)

三峡库区干支流落干期消落带土壤可转化态氮含量及分布特征 ..... 何立平, 刘丹, 于志国, 周斌, 杨振宇, 兰国新, 郭冬琴, 林俊杰(950)

三峡水库消落带土壤与优势植物淹水后对土-水系统汞形态的影响 ..... 梁丽, 王永敏, 张成, 余亚伟, 安思危, 王定勇(955)

不同灌溉模式下水稻田径流污染试验研究 ..... 周静雯, 苏保林, 黄宁波, 管毓堂, 赵堃(963)

富营养化城市景观水体表观污染下的悬浮颗粒物粒度分布特征 ..... 贡丹燕, 潘杨, 黄勇, 包伟, 李倩倩(970)

间歇曝气对垂直潜流人工湿地脱氮效果的影响 ..... 汪健, 李怀正, 甄葆崇, 刘振东(980)

非水溶性醌加速菌GWF生物还原高氯酸盐的研究 ..... 张媛媛, 郭延凯, 张超, 梁晓红, 田秀蕾, 牛文钰, 廉静, 郭建博(988)

紫外辐射对腐殖酸溶液理化性质及其混凝性能的影响 ..... 王文东, 张轲, 范庆海, 郑丹(994)

类水滑石复合材料吸附去除水中硫酸根离子 ..... 顾怡冰, 马邕文, 王金泉, 王艳, 关泽宇(1000)

富里酸对重金属在沉积物上吸附及形态分布的影响 ..... 李雨清, 何江, 吕昌伟, 樊明德, 王维, 张瑞卿, 谢志磊, 汪精华, 于波, 恩和, 丁涛(1008)

铁有机骨架材料的快速合成及对阴离子染料的吸附性能 ..... 孙德帅, 刘亚丽, 张晓东, 秦婷婷(1016)

富里酸-膨润土复合体对氟的吸附特性 ..... 方敦, 田华婧, 叶欣, 何次利, 但悠梦, 魏世勇(1023)

3种低分子量有机酸对紫色土吸附非的影响 ..... 谢黎, 陈本寿, 张进忠, 卢松, 江韬(1032)

HDTMA改性蒙脱土对土壤Cr(VI)的吸附稳定化研究 ..... 蒋婷婷, 喻恺, 罗启仕, 吉敏, 林匡飞(1039)

水热处理时间对污泥中氮磷钾及重金属迁移的影响 ..... 王兴栋, 林景江, 李智伟, 赵焕平, 余广炜, 汪印(1048)

煤制气废水总酚负荷对反硝化的抑制效应研究 ..... 张玉莹, 陈秀荣, 王璐, 李佳慧, 徐燕, 庄有军, 于泽亚(1055)

硫自养反硝化耦合厌氧氨氧化脱氮条件控制研究 ..... 周健, 黄勇, 刘忻, 袁怡, 李祥, 完颜德卿, 丁亮, 邵经纬, 赵蓉(1061)

低温下活性污泥膨胀的微生物群落结构研究 ..... 端正花, 潘留明, 陈晓欧, 王秀朵, 赵乐军, 田乐琪(1070)

游离氨(FA)耦合曝气时间对硝化菌活性的抑制影响 ..... 孙洪伟, 吕心涛, 魏雪芬, 赵华南, 马娟, 方晓航(1075)

1株Arthrobacter arilaitensis菌的耐冷异养硝化和好氧反硝化作用 ..... 何腾霞, 倪九派, 李振轮, 孙权, 冶青, 徐义(1082)

海洋菌株y3的分离鉴定及其异养硝化-好氧反硝化特性 ..... 孙庆花, 于德爽, 张培玉, 林学政, 徐光耀, 李津(1089)

几种不同方法估算农田表层土壤固碳潜力:以甘肃庄浪县为例 ..... 师晨迪, 许明祥, 邱宇洁(1098)

不同耕作方式下土壤水分状况对土壤呼吸的初期影响 ..... 张延, 梁爱珍, 张晓平, 陈升龙, 孙冰洁, 刘四义(1106)

绿肥间作和秸秆覆盖对冬季油菜根际土壤有机碳及土壤呼吸的影响 ..... 周泉, 王龙昌, 熊瑛, 张赛, 杜娟, 赵琳璐(1114)

黑岱沟露天煤矿排土场不同植被复垦土壤酶活性及理化性质研究 ..... 方瑛, 马任甜, 安韶山, 赵俊峰, 肖礼(1121)

黄土丘陵区退耕时间序列梯度上草本植被群落与土壤C、N、P、K化学计量学特征 ..... 张海东, 汝海丽, 焦峰, 薛超玉, 郭美丽(1128)

包头某铝厂周边土壤重金属的空间分布及来源解析 ..... 张连科, 李海鹏, 黄学敏, 李玉梅, 焦坤灵, 孙鹏, 王维大(1139)

砷污染土壤复合淋洗修复技术研究 ..... 陈寻峰, 李小明, 陈灿, 杨麒, 邓琳静, 谢伟强, 钟宇, 黄斌, 杨伟强, 张志贝(1147)

以预处理剩余污泥为燃料MFC产电性能及不连续供电的可行性 ..... 赵艳辉, 赵阳国, 郭亮(1156)

废弃物焚烧飞灰中持久性自由基与二噁英及金属的关联探究 ..... 王天娇, 陈彤, 詹明秀, 郭颖, 李晓东(1163)

淘汰落后产能政策对我国重点工业行业二噁英类减排的影响 ..... 耿静, 吕永龙, 任丙南, 王铁宇(1171)

《环境科学》征订启事(1138) 《环境科学》征稿简则(1155) 信息(824,853,883)

# 厦门室内多溴二苯醚的沉降通量、季节变化与人体暴露水平

韩文亮<sup>1,2</sup>, 刘豫<sup>1,2</sup>, 陈海明<sup>1,2</sup>, 陈兴童<sup>1,2</sup>, 范涛<sup>1,2</sup>

(1. 华侨大学化工学院环境科学与工程系, 厦门 361021; 2. 华侨大学环境与资源技术研究所, 厦门 361021)

**摘要:** 室内灰尘是人体对多溴二苯醚 (PBDEs) 暴露的重要乃至主要途径. 吸尘器收集的灰尘中 PBDEs 的含量与室内人员血液中该物质含量的相关性较差, 不适用于估算人体暴露剂量, 也不能研究其沉降通量及其季节变化, 用被动采样法采集室内降尘则可弥补这些不足. 在厦门市选取家庭、办公室、机房和家具厂等采样点 49 个, 用水平放置的玻璃板 (四周用洁净铝箔围起) 采集一年四季的降尘样品, 对降尘中 PBDEs 的沉降通量、含量、组成、季节变化与人体暴露水平等进行研究. 厦门家庭、办公室、机房和家具厂中  $\sum$  PBDEs (16 种 BDE 的和, 含 BDE-209) 全年沉降通量几何均值分别为 6.1、3.0、1.1 和 179.8  $\text{ng}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ , 家庭室内  $\sum$  PBDEs 沉降通量是办公室的两倍, 但全年家庭室内降尘中  $\sum$  PBDEs 的含量 ( $445.5 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ ) 仅略高于办公环境 ( $384.0 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ ). 厦门家庭、办公室、机房  $\sum$  PBDEs 年均沉降通量与国内外城市相比处于较低水平. 家具厂 PBDEs 沉降通量远高于普通环境. 秋季  $\sum$  PBDEs 沉降通量最大. 各类室内环境四季降尘  $\sum$  PBDEs 中 BDE-209 的百分比几何均值都在 80% 以上. 家庭、办公室和机房室内  $\sum$  PBDEs 沉降通量和降尘通量显著相关, 而家具厂  $\sum$  PBDEs 沉降通量与降尘通量无显著相关性. 家庭和办公室  $\sum_{15}$  PBDEs 沉降通量与电脑年龄显著相关, 而与电器和家具数量、装修等无统计显著相关性. 室内降尘是人体对  $\sum$  PBDEs 尤其是高溴 BDEs 的一条主要暴露途径.

**关键词:** 多溴二苯醚 (PBDEs); 室内; 降尘; 沉降通量; 季节变化; 家庭; 办公室

中图分类号: X131; X820.4 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2016)03-0834-13 DOI: 10.13227/j.hjkk.2016.03.007

## Indoor Deposition Flux, Seasonal Variations and Human Exposure Levels of Polybrominated Diphenyl Ethers in Xiamen, China

HAN Wen-liang<sup>1,2</sup>, LIU Yu<sup>1,2</sup>, CHEN Hai-ming<sup>1,2</sup>, CHEN Xing-tong<sup>1,2</sup>, FAN Tao<sup>1,2</sup>

(1. Department of Environmental Science and Engineering, College of Chemical Engineering, Huaqiao University, Xiamen 361021, China; 2. Institute of Environmental and Resources Technology, Huaqiao University, Xiamen 361021, China)

**Abstract:** Indoor dust was an important and even a major route of human exposure to polybrominated diphenyl ethers (PBDEs). However, the vacuum dust concentrations were less correlated with indoor residents' serum concentrations of PBDEs, thus inadequate for either estimation of human exposure dose or research of deposition flux and its seasonal variations. Passive sampling of indoor dustfall could offset these shortages. A total of 49 indoor sampling sites including homes, offices, computer rooms and furniture factory were selected in Xiamen, China to collect the four season dustfall samples with glass plates (walled by clean aluminum foil). Deposition flux, concentrations, congener profiles, seasonal variations, and human exposure to PBDEs in the dustfall were studied. The geometric means of the yearly round deposition flux of  $\sum$  PBDEs (sum of 16 BDE congeners including BDE-209) in homes, offices, computer rooms and furniture factory were 6.1, 3.0, 1.1 and 179.8  $\text{ng}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ , respectively. The geometric mean deposition flux of  $\sum$  PBDEs in homes was 2 times of that in offices, but the concentration of  $\sum$  PBDEs in the dustfall from homes ( $445.5 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ ) was only slightly higher than that of offices ( $384.0 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ ). The  $\sum$  PBDEs deposition flux in homes, offices and computer rooms in Xiamen were at lower level compared with other cities around the world. The PBDEs deposition flux in furniture factory was much higher than that in the ordinary indoor environment. Autumn was the season with highest deposition flux of  $\sum$  PBDEs. Geometric means of BDE-209's proportion of the  $\sum$  PBDEs in dustfall in all seasons in the four types of indoor environment were above 80%. The deposition flux of PBDEs was correlated to the dustfall deposition flux in homes, offices and computer rooms, but not that in furniture factory.  $\sum_{15}$  PBDEs in homes and offices were significantly correlated with the age of

收稿日期: 2015-06-10; 修订日期: 2015-10-15

基金项目: 国家自然科学基金项目 (41203077); 福建省自然科学基金项目 (2011J05112); 泉州市科技计划项目 (2012Z85); 华侨大学引进人才启动项目 (11BS216)

作者简介: 韩文亮 (1980 ~), 男, 博士, 讲师, 主要研究方向为环境监测与评价, E-mail: wl\_han@163.com

computers, but not quantities of electrical and electronic products, furniture and interior decoration, etc. Indoor dust was a key route for human exposure to  $\sum$  PBDEs, especially for higher brominated BDEs.

**Key words:** polybrominated diphenyl ethers (PBDEs); indoor; dustfall; deposition flux; seasonal variation; home; office

多溴二苯醚 (polybrominated diphenyl ethers, PBDEs) 是一类持久性有机污染物 (persistent organic pollutants, POPs). 自 20 世纪 70 年代以来, 作为一类高性价比的添加型溴代阻燃剂 (brominated flame retardants, BFRs), PBDEs 被广泛添加于塑料制品、电路板、聚氨酯泡沫材料、纺织品等之中<sup>[1-3]</sup>.

饮食摄入曾长期被认为是人体对 PBDEs 的主要暴露途径, 但越来越多的研究表明, 室内灰尘是人体对 PBDEs 暴露的重要乃至主要途径<sup>[3-6]</sup>. 室内环境中添加 PBDEs 的设备和材料是 PBDEs 的重要释放源<sup>[3, 4, 6]</sup>. 室内环境因人体暴露时间长 (约 90%) 和 PBDEs 易于积累而尤其具有健康意义<sup>[7, 8]</sup>. 目前有关于室内灰尘中 PBDEs 的研究较多, 但大多使用吸尘器或刷子收集灰尘, 仅可得到污染物的含量, 无法计算沉降通量. 吸尘器因设计原理问题, 运行中由于对细颗粒的截留较差、集尘袋连接处易泄漏和气流扰动等原因, 存在对细颗粒的“喷尘器”作用<sup>[9, 10]</sup>, 造成不同粒径采集效率的差异, 采集的灰尘与自然沉降的降尘存在差异. 吸尘器电机运转时也会释放颗粒物<sup>[11-13]</sup>, 并且很大一部分可以被吸入集尘袋中<sup>[13]</sup>, 造成污染. 由于不同室内采样点的清扫周期不同, 吸尘器或刷子采集的样本所代表的灰尘累积时间段不确定, 给采样点间横向比较, 尤其是季节变化研究带来困难. 此外, 新近研究发现, 吸尘器收集的灰尘中 PBDEs 的含量与室内人员血液中该物质含量的相关性较差, 不适用于估算人体暴露剂量<sup>[14]</sup>. 有研究者采用擦拭地面和玻璃窗的方式来采集室内灰尘样品<sup>[14, 15]</sup>, 但该方法同样不能计算沉降通量, 且因室内地面和玻璃窗经常打扫清洁, 采集灰尘量少造成检出困难<sup>[14]</sup>, 地面复杂的污染来源也会目标物的研究带来干扰.

目前关于空气中污染物沉降通量的研究大多集中于室外<sup>[16-18]</sup>, 对室内的研究非常少且极少研究季节变化<sup>[19-21]</sup>. 作为一种半挥发性有机污染物 (semivolatile organic compounds, SVOCs), PBDEs 受季节因素的显著影响, 研究其季节变化对认识其环境行为有重要意义. 笔者曾对上海家庭、办公室室内环境降尘通量进行研究<sup>[19]</sup>, 但该研究采样点较少, 且未考虑季节变化, 无法了解室内 PBDEs 年均沉降通量

与季节变化. 基于以上讨论, 本研究以厦门市主城区为例, 选取家庭、办公室、机房和家具厂等室内环境, 使用水平放置的玻璃板采集一年四季室内降尘样品, 研究城市不同室内环境中 PBDEs 的沉降通量、组成、季节变化和人体暴露水平.

对各类室内环境中 PBDEs 沉降通量的季节变化和人体暴露水平进行研究, 以期评价溴代阻燃剂的健康风险和采取相应改善措施提供科学依据.

## 1 材料与方法

### 1.1 采样

在厦门市选取 23 个家庭、17 个办公室 (含家具厂办公室 O17)、5 个机房 (含交换机房、服务器室和中控室等) 和 4 个家具生产车间 (采样点见表 1, 2), 采样点共计 49 个, 其中厦门市 (岛内) 29 个, 城郊 (岛外) 20 个. 采样点的选取尽量涵盖不同的地理位置、面积大小、装修年份、电器数量和使用时长, 家具数量和通风习惯等可能影响 PBDEs 沉降通量的因素. 每个采样点水平放置两块 25 cm × 32 cm 的玻璃板 (四周用洁净铝箔围起) 收集四季降尘, 采样时间为 2011 年 12 月 ~ 2012 年 12 月, 每个季节采样时间为 3 个月 (约 90 d), 除 3 个冬季家庭降尘和 3 个家具厂降尘 (春季 1 个, 夏季两个) 丢失外, 共收集到有效降尘样品 190 个. 玻璃板使用前清洗干净烘干后用丙酮润洗, 干燥后用铝箔包裹带至采样点, 放置在室内无人触及的合适地方, 四周用洁净铝箔围起. 采样结束后用 5 张抽提过的干净无尘纸 (Kimwipes, Kimberly-Clark, US) 滴加溶剂后仔细擦拭玻璃板以收集采集到的降尘, 含样无尘纸包好后置于洁净的铝箔中. 无尘纸采样前后均在恒温恒湿箱 (25℃, 60%) 中放置 24 h 后称重. 无尘纸使用前依次用甲醇和丙酮/正己烷 (1:1) 索氏抽提各 36 h.

室外沉降通量研究的常用方法由于采样面积相对较小, 而且会对日常生活产生一定影响, 因此不大适用于室内采样, 而玻璃板采样法则可以克服以上的缺点. 此外, 室内环境中风等外来扰动较少, 通过四周围起铝箔也可减弱采集颗粒物的再悬浮现象. 所以尽管采样方法与传统降尘沉降通量采样方法有一定差别, 本研究计算的沉降通量应该仍具有很好的参考价值.

表 1 家庭采样点信息

Table 1 Questionnaires on the home sampling sites in Xiamen, China

编号	岛内/外	街道	面积 /m <sup>2</sup>	装修 年份	电视 /台	电视生产 年份	使用时长 /h·d <sup>-1</sup>	电脑 /台	电脑 生产年份	使用时长 /h·d <sup>-1</sup>	空调 类型	使用时长 /h·d <sup>-1</sup>	地面 类型	沙发 数量	家具 数量	通风习惯	
H1	岛内	珍珠湾	12	2000	0	无	0	2	2008	5	壁挂	3	瓷砖	布面	1	3	开窗换气 8 h·d <sup>-1</sup>
H2	岛内	演武路	25	2009	0	无	0	4	2009	8	壁挂	4	瓷砖	无	0	4	开窗换气
H3	岛内	将军祠路	35	1990	1	2000	0	1	2009	15	壁挂	4	瓷砖	木质	0	3	开窗换气
H4	岛内	湖滨中路	19	1990	1	2006	4	1	2008	4	壁挂	5	瓷砖	布面	1	3	开窗换气 6 h·d <sup>-1</sup>
H5	岛内	槟榔新村	40	2009	1	2009	7	1	2009	2	柜机	3	瓷砖	皮革	3	5	开窗换气 2 h·d <sup>-1</sup>
H6	岛内	长青路	35	2007	1	2003	7	1	2008	2	壁挂	3	瓷砖	布面	4	4	开窗换气
H7	岛内	洪莲西里	45	2005	1	2007	1	6	2007	4	壁挂	5	瓷砖	皮革	1	3	开窗换气 1 h·d <sup>-1</sup>
H8	岛内	洪文五里	30	2007	2	2007/2011	3	2	2007/2010	12	壁挂	4	瓷砖	布面	1	4	开窗换气
H9	岛内	洪文一里	35	2000	1	2005	4	1	2004	6	柜机	4	木地板	皮革	1	1	开窗换气, 全天
H10	岛内	文兴一里	10	1999	1	2011	8	1	2008	8	无	0	瓷砖	木质	0	2	开窗换气, 16 h·d <sup>-1</sup>
H11	岛内	文兴东二里	10	2000	1	2007	4	1	2011	4	无	0	瓷砖	无	0	2	开窗换气 16 h·d <sup>-1</sup>
H12	岛内	塔埔东里	40	2008	1	2011	4	2	2011	0.5	壁挂	2	瓷砖	无	0	1	开窗换气
H13	岛内	洪莲路	50	2010	1	2010	8	1	2010	3	中央空调	1	木地板	皮革	3	10	开窗换气 2 h·d <sup>-1</sup>
H14	岛内	枋湖东二路	10	2008	1	2008	7	1	2006	1	壁挂	1	木地板	皮革	1	4	开窗换气
H15	岛外	集岑路	40	2007	1	2007	4	2	2008	3	壁挂	0	木地板	皮革	1	5	开窗换气 2 h·d <sup>-1</sup>
H16	岛外	盛光路	20	2010	1	2010	8	2	2011	6	壁挂	1	瓷砖	皮革	1	2	开窗换气
H17	岛外	集美大道	15	2009	1	—	4	1	—	6	无	无	瓷砖	布面	1	2	开窗换气 24 h·d <sup>-1</sup>
H18	岛外	集美大道	15	2009	1	2010	2	1	2006	8	壁挂	0	瓷砖	布面	1	1	开窗换气 24 h·d <sup>-1</sup>
H19	岛外	华侨大学	13	2007	0	无	0	2	2008/2009	6	壁挂	2	瓷砖	无	0	2	开窗换气 18 h·d <sup>-1</sup>
H20	岛外	日东路	30	2009	1	1998	16	0	无	无	壁挂	4	瓷砖	布面	1	1	开窗换气 12 h·d <sup>-1</sup>
H21	岛外	沧里东一里	40	2009	1	2009	5	1	2009	5	壁挂柜机	4	瓷砖	皮革	1	3	开窗换气
H22	岛外	沧翔路	40	2008	1	2009	8	1	2009	4	无	0	瓷砖	皮革	3	5	开窗换气 12 h·d <sup>-1</sup>
H23	岛外	翔安大道	30	2003	1	2003	3	1	2010	10	壁挂	6	瓷砖	无	0	1	开窗换气 12 h·d <sup>-1</sup>

表 2 办公室 (O) 和机房 (C) 采样点信息

Table 2 Questionnaires on the office (O) and computer room (C) sampling sites in Xiamen, China

编号	岛内/外	街道	面积 /m <sup>2</sup>	装修 年份	打印机 /台	复印机 /台	电脑 /台	电脑 生产年份	使用时长 /h·d <sup>-1</sup>	空调类型	使用时长 /h·d <sup>-1</sup>	地面 类型	沙发 类型	沙发 数量	沙发椅 数量	通风习惯
O1	岛内	珍珠湾软件园	300	2005	0	0	100	2009	8	中央空调	10	地毯	布面	2	120	空调换气
O2	岛内	民族路	35	—	2	2	1	2007	8	中央空调	3	木地板	布面	0	4	开窗换气
O3	岛内	鹭江道	30	2011	1	0	8	2010	12	中央空调	12	地毯	布面	0	4	空调换气
O4	岛内	鹭江道	80	—	0	0	20	2006	8	中央空调	3	地毯	布面	0	25	开窗换气 3 h·d <sup>-1</sup>
O5	岛内	厦禾路	40	2005	1	1	2	2006	8	柜机;	5	瓷砖	皮革	1	5	开窗换气 8 h·d <sup>-1</sup>
O6	岛内	禾祥西路	125	2009	1	0	6	2008	10	柜机	1	地毯	布面	1	10	开窗换气 3 h·d <sup>-1</sup>
O7	岛内	长青路	100	—	0	3	10	—	8	柜机	8	瓷砖	皮革	1	11	开窗换气 2 h·d <sup>-1</sup>
O8	岛内	望海路	50	2007	1	0	5	2007	10	中央空调	8	瓷砖	布面	0	15	开窗换气 4 h·d <sup>-1</sup>
O9	岛内	观音山商务中心	250	2011	1	1	20	2009	8	中央空调	7	瓷砖	布面	6	25	开窗换气 8 h·d <sup>-1</sup>
O10	岛内	云顶中路	200	2011	1	2	14	2009	8	中央空调	10	地毯	无	0	25	空调换气
O11	岛内	后埔西二里	150	—	0	1	3	2010	6	柜机	1	瓷砖	皮革	1	25	开窗换气 8 h·d <sup>-1</sup>
O12	岛内	后埔西二里	60	—	0	0	1	2010	6	柜机	5	地毯	皮革	3	0	开窗换气
O13	岛外	集美大道	100	2006	1	0	14	2006	8	柜机	2	瓷砖	皮革	0	10	开窗换气
O14	岛外	集美大道	600	2011	0	0	0	—	0	中央空调	8	瓷砖	木质	0	0	开窗换气
O15	岛外	集美大道	30	2006	0	0	0	—	0	壁挂	6	瓷砖	皮革	0	12	开窗换气
O16	岛外	海沧大道	40	2007	1	1	2	2008	8	中央空调	24	瓷砖	皮革	0	3	空调换气
O17	岛外	同安工业园	20	—	2	0	4	2007	9	壁挂	6	瓷砖	布面	0	4	空调换气
C1	岛内	湖滨中路	40	2008	0	0	2	2010	24	中央空调	24	木地板	无	0	0	空调换气
C2	岛内	湖滨北路	20	—	2	3	14	2009	24	中央空调	24	木地板	布面	0	3	空调换气
C3	岛内	高崎机场	15	2010	0	0	2	2008	16	中央空调	24	地板	布面	0	3	开窗换气
C4	岛外	集美大道	200	2006	0	0	45	2006	24	柜机	4	地板	皮革	1	5	开窗换气 12 h·d <sup>-1</sup>
C5	岛外	集美大道	300	2006	0	0	2	2010	24	柜机	24	地板	无	0	0	空调换气

## 1.2 样品预处理与分析

### 1.2.1 标样与试剂

PBDEs 标样购自 Accustandards (New Haven, CT, USA),  $^{13}\text{C}_{12}$ -CB-141,  $^{13}\text{C}_{12}$ -CB-208 和  $^{13}\text{C}_{12}$ -CB-209 购自 Cambridge Isotope Laboratories (Andover, MA, USA). 所有溶剂(正己烷、二氯甲烷、丙酮等)为分析纯(上海国药集团化学试剂有限公司), 有机溶剂经全玻璃系统重蒸后使用.

### 1.2.2 样品预处理和仪器分析

样品预处理和仪器分析方法已建立, 参见文献 [19, 22]. 简要描述如下: 降尘样品用丙酮/正己烷(1:1)索氏抽提, 抽提液经旋蒸浓缩后将溶剂置换为正己烷, 然后过多层硅胶/氧化铝柱(柱层析硅胶: 80~100 目, 青岛海洋化工厂分厂; 柱层析用  $\text{Al}_2\text{O}_3$ : 100~200 目, 上海国药集团化学试剂有限公司; 柱层析材料使用前均依次用甲醇和二氯甲烷索氏抽提各 36 h, 真空干燥器干燥后活化使用)净化, 多层硅胶/氧化铝柱的填料自下至上依次为: 中性  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、中性硅胶、碱性硅胶、中性硅胶、酸性硅胶和无水  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , 用 70 mL 二氯甲烷/正己烷(1:1)淋洗、收集包含 PBDEs 的馏分, 淋洗液旋蒸浓缩后转入 1.5 mL 棕色玻璃瓶中, 氮吹置换溶剂为正己烷, 定容至 50  $\mu\text{L}$  后进行气相色谱-质谱联用仪(GC-MS)分析.

样品进样前加入 5  $\mu\text{L}$  125  $\text{ng}\cdot\text{mL}^{-1}$  的  $^{13}\text{C}_{12}$ -CB-208 作为内标, 使用安捷伦 GC-MS (Agilent 7890N GC connected to an Agilent 5975 MS), 采用负化学电离(Negative Chemical Ionization, NCI)选择离子扫描(SIM)法测定 PBDEs 的组成. 3~7 溴二苯醚的检测离子为 79、81, BDE-209 的检测离子为 79、81、486.7 和 488.7. 内标( $^{13}\text{C}_{12}$ -CB-208)的检测离子为: 473.8、475.8 和 477.8. 回收率指示物  $^{13}\text{C}_{12}$ -CB-141 的检测离子为: 369.9、371.9 和 373.9, 回收率指示物  $^{13}\text{C}_{12}$ -CB-209 的检测离子为: 507.7、509.7 和 511.7. 本研究的目标化合物为 BDE-17, -28, -71, -47, -66, -77, -100, -99, -85, -118, -154, -153, -138, -183, -190 和 BDE-209, 共 16 种同系物. 采用内标法五点校正曲线进行定量. 方法检测限: 3~7 溴二苯醚为 0.12~0.46  $\text{pg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ , BDE-209 为 0.81  $\text{pg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ . 空白中只有少量的 BDE-209 (58  $\text{pg}$ ) 检出, 小于样品含量的 5%. 平行样相对偏差: 3~7 溴二苯醚 < 11%, BDE-209 < 20%. PBDEs 同系物空白加标的回收率为 89%  $\pm$  6%, 回收率指示物  $^{13}\text{C}_{12}$ -CB-141,  $^{13}\text{C}_{12}$ -CB-209 的回收率分别为 93%  $\pm$  9% 和

94%  $\pm$  9%. 数据未经回收率校正.

## 2 结果与讨论

### 2.1 沉降通量

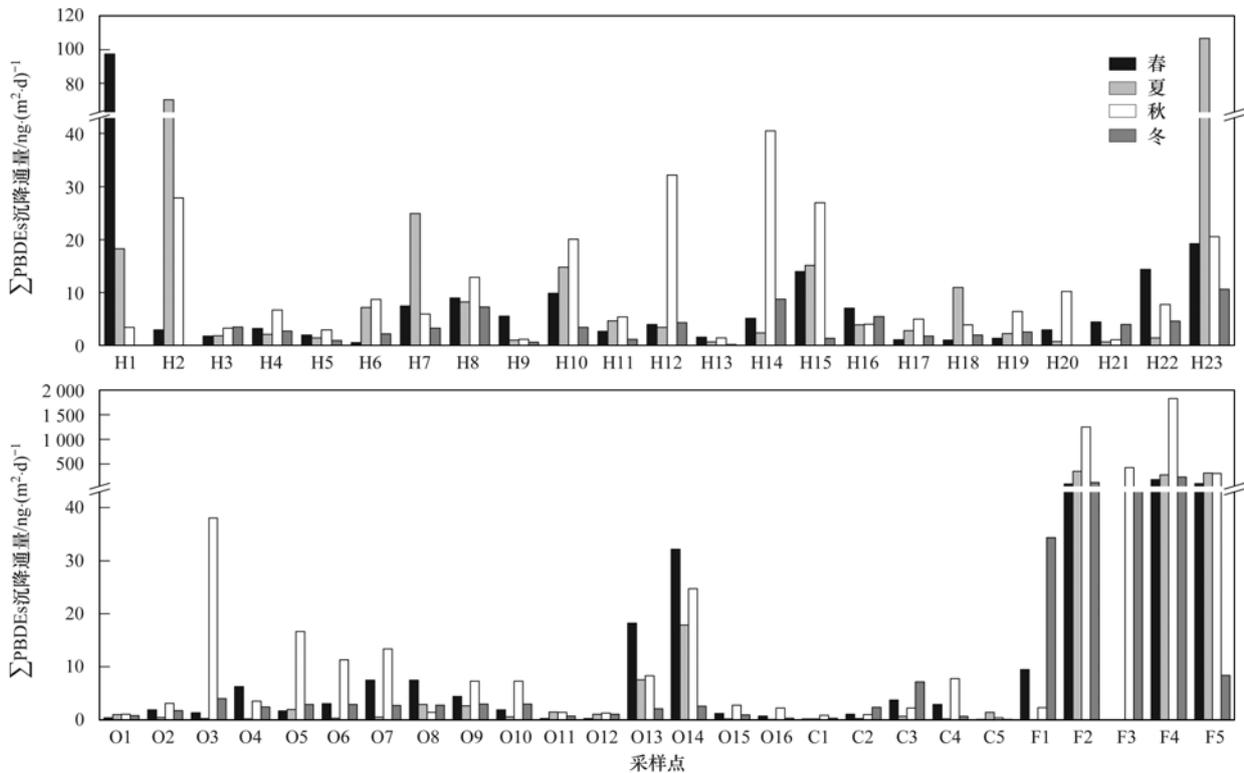
各类采样点四季  $\sum_{15}$  PBDEs (除 BDE-209 外的 15 种 PBDEs 同系物)、BDE-209 或  $\sum$  PBDEs (包括 BDE-209 在内的 16 种 PBDEs 同系物) 的沉降通量均符合对数正态分布 (Kolmogorov-Smirnov normality test, SPSS 16.0,  $\alpha=0.05$ ), 因此以下如无特殊说明, 采用几何均值进行讨论. 厦门家庭、办公室、机房和家具厂中  $\sum$  PBDEs 的全年沉降通量几何均值分别为 6.1、3.0、1.1 和 179.8  $\text{ng}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ . 家庭、办公室、机房和家具厂各室内采样点  $\sum$  PBDEs 沉降通量均存在明显的采样点间变化和季节变化, 家具厂  $\sum$  PBDEs 沉降通量比其他室内环境高出 1~2 个数量级(图 1).

由于目前室内 PBDEs 沉降通量报道较少, 将其与其他地区室内或室外 PBDEs 沉降通量对比, 以期对厦门各类室内环境 PBDEs 沉降通量有一个定性的认识(表 3). 由于其他研究大都使用中值或算数均值, 为便于对比, 此处对厦门各类室内环境年均  $\sum$  PBDEs 沉降通量的讨论也使用中值.

厦门家庭  $\sum$  PBDEs 沉降通量中值是上海的一半多, 但变化范围更大, 这可能与上海研究的采样点较少且未考虑季节变化有关. 办公室  $\sum$  PBDEs 沉降通量中值不到上海的一半, 但厦门的变化范围同样更大, 并且有较多  $\sum$  PBDEs 沉降通量很小的采样点. 这说明, 部分办公室内的设备可能并未使用 PBDEs 作为阻燃剂. 机房  $\sum$  PBDEs 沉降通量低于普通办公室, 由于多数机房全封闭, 极低的降尘通量可能是主要原因. 此外, 这一定程度上也说明这些机房的设备可能大多并未使用 PBDEs 作为阻燃剂. 厦门某大型家具厂的  $\sum$  PBDEs 沉降通量比家庭和办公室高出近 2 个数量级, 甚至比其他地区室外 PBDEs 沉降通量也要高出数倍, 特殊的工作环境中高的 PBDEs 沉降通量及其可能存在的健康风险值得关注. 厦门岛内(主城区)家庭(H1~H14)  $\sum$  PBDEs 沉降通量高于岛外(城郊)家庭(H15~H23), 这与城市中心城区大气中 PBDEs 质量浓度通常高于郊区的报道是一致的<sup>[25~27]</sup>. 岛内

办公室(O1~O12)  $\sum$  PBDEs 沉降通量低于岛外(O13~O16,不含家具厂办公室 O17). 这可能与办公室主要位于城区,城郊办公室采样点较少有关,一

定程度上也表明  $\sum$  PBDEs 沉降通量可能更多受到室内设备/材料是否添加 PBDEs 或/和局地室外释放源的影响<sup>[28, 29]</sup>.



H:家庭,O:办公室,C:机房,F:家具厂,F5即O17,为家具厂办公室

图1 各室内采样点四季 PBDEs 沉降通量

Fig. 1 Seasonal deposition flux of PBDEs in all the indoor sampling sites

表3 厦门室内环境 PBDEs 沉降通量与其他地区的对比/ $\text{ng}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$

Table 3 Comparison of indoor PBDEs deposition flux in Xiamen with those in other areas around the world/ $\text{ng}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$

城市/地区	国家	采样时间 (年·月)	采样点 类型	样品 类型	BDE-209		$\sum$ PBDEs		同系物 数量	文献
					算数均值	算数均值	中值	范围		
Lund	瑞典	2000-08~2000-09	室外	总沉降 <sup>1)</sup>	—	2.0	—	2.0 $\pm$ 1.0	9	[23]
Izmir	土耳其	2004-09, 2005-02~2005-03	室外	干沉降 <sup>2)</sup>	107.5	128.8	—	128.8 $\pm$ 122.8	7	[24]
Daeyeon-dong	韩国	2004-01~2004-12	城市室外	总沉降	131.8	136.4	—	73.2~243.8	20	[18]
Wolpo-dong	韩国	2004-01~2004-12	城市室外	总沉降	90.5	95.6	—	63.0~139.2	20	[18]
Gijang-gun	韩国	2004-01~2004-12	郊区室外	总沉降	55.2	61.1	—	40.8~127.9	20	[18]
Haengam-dong	韩国	2004-01~2004-12	乡村室外	总沉降	46.4	47.9	—	27.7~64.7	20	[18]
上海	中国	2008-07~2008-08	家庭	降尘	10.6	10.9	8.0	1.7~25.4	16	[19]
上海	中国	2008-07~2008-08	办公室	降尘	13.8	14.2	8.5	3.1~32.4	16	[19]
厦门	中国	2011-12~2012-12	(全部)家庭	降尘	9.9	10.1	4.7	0.2~106.7	16	本研究
厦门	中国	2011-12~2012-12	岛内家庭	降尘	10.5	10.7	7.0	0.2~97.3	16	本研究
厦门	中国	2011-12~2012-12	岛外家庭	降尘	9.1	9.3	4.6	0.7~106.7	16	本研究
厦门	中国	2011-12~2012-12	(全部)办公室	降尘	4.6	4.7	3.4	0.1~38.1	16	本研究
厦门	中国	2011-12~2012-12	岛内办公室	降尘	3.7	3.8	3.4	0.1~38.1	16	本研究
厦门	中国	2011-12~2012-12	岛外办公室	降尘	7.5	7.6	5.1	0.1~32.2	16	本研究
厦门	中国	2011-12~2012-12	机房	降尘	1.6	1.6	1.1	0.1~7.7	16	本研究
厦门	中国	2011-12~2012-12	家具厂	降尘	333.7	334.3	345.7	2.2~1 830.4	16	本研究

1) 总沉降是室外空气中干沉降和湿沉降的总和; 2) 干沉降是室外空气中颗粒物的自然沉降,即室外降尘

另一方面,与国内城市相比,厦门家庭室内降尘中年均  $\sum$  PBDEs 含量 ( $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ ) 高于南京,但低于广州和上海(表 4)。厦门办公室降尘中年均  $\sum$  PBDEs 含量中值比上海低,即使是家具厂降尘中 PBDE 的含量也低于上海办公室。这说明,厦门各类室内降尘中 PBDEs 的平均含量处于中等水平,家具厂高的 PBDEs 沉降通量更多是受厂房内高降

尘通量的影响。与国外其他城市相比,除亚洲的科威特、越南河内外,厦门家庭和办公室降尘中 PBDEs 的含量低于北美、欧洲、澳洲和亚洲的多个城市。这表明,厦门市室内降尘中 PBDEs 的平均含量处于相对较低的水平。但值得注意的是,厦门室内降尘中 PBDEs 的含量变化范围大,部分室内降尘的 PBDEs 含量与上海最高含量相当或更高,说明厦门部分室内环境中仍有添加 PBDEs 的设备在使用。

表 4 厦门室内降尘中 PBDEs 的含量与其他地区的比较/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$

Table 4 Comparison of  $\sum$  PBDEs concentration in indoor dustfall in Xiamen and those in other areas around the world/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$

城市	国家	采样时间 (年-月)	类型	样品 类型	采样方式	BDE-209		$\sum$ PBDEs		同系物 数量	文献
						算数均值	算数均值	中值	范围		
华盛顿	美国	2004-01 ~ 03	家庭	灰尘	吸尘器	2 090	5 900	4 250	780 ~ 30 100	22	[30]
阿马里洛 奥斯丁	美国	2006-10	家庭	灰尘	吸尘器	1 600	4 800	3 500	920 ~ 17 000	8	[31]
多伦多	加拿大	2006-09	家庭	灰尘	吸尘器	670	1 400	950	750 ~ 3 500	8	[31]
渥太华	加拿大	2002 ~ 2003	家庭	灰尘	吸尘器	1 100	5 500	1 800	170 ~ 170 000	13	[32]
伯明翰	英国	2006-07 ~ 08	家庭	灰尘	吸尘器	45 000	45 000	2 900	360 ~ 52 000	8	[31]
慕尼黑等	德国	—	家庭	灰尘	吸尘器	1 233	1 365	992	16 ~ 5 294	8	[33]
西澳州多地	澳大利亚	2009-06 ~ 2011-04	家庭	灰尘	—	415 <sup>1)</sup>	—	571	60 ~ 82 400	7	[34]
—	科威特	—	家庭	灰尘	吸尘器	129	149	90	1 ~ 393	9	[35]
—	新加坡	—	家庭	灰尘	镊子刮取	2 200	2 900	1 200	110 ~ 13 000	8	[36]
河内	越南	2008-09 ~ 11	家庭	灰尘	扫帚	160 <sup>1)</sup>	—	230	40 ~ 270	40	[37]
大阪	日本	2006-11	旅馆	灰尘	吸尘器	82% ~ 94% <sup>2)</sup>	—	1 200	10 ~ 1 700	27	[38]
北京	中国	2012-03 ~ 08/12	办公室	灰尘	吸尘器	127 ~ 28 300 <sup>3)</sup>	—	—	135 ~ 30 200	9	[39]
广州	中国	2010-08 ~ 12	家庭	空调滤网灰尘	吸尘器	985	1 458	739	295 ~ 4 690	26	[40]
南京	中国	2011-03 ~ 06	家庭	灰尘	吸尘器	235	311	109	0.3 ~ 9 574	8	[41]
上海	中国	2008-07 ~ 08	家庭	降尘	玻璃板	1 133	1 169	1 150	297 ~ 2 207	16	[19]
上海	中国	2008-07 ~ 08	办公室	降尘	玻璃板	3 105	3 203	2 720	900 ~ 6 730	16	[19]
厦门	中国	2011-12 ~ 2012-12	家庭	降尘	玻璃板	625	654	397	29 ~ 6 112	16	本研究
厦门	中国	2011-12 ~ 2012-12	办公室	降尘	玻璃板	631	646	340	16 ~ 6 387	16	本研究
厦门	中国	2011-12 ~ 2012-12	机房	降尘	玻璃板	331	343	362	15 ~ 1 815	16	本研究
厦门	中国	2011-12 ~ 2012-12	家具厂	降尘	玻璃板	1 329	1 333	1 319	11 ~ 7 099	16	本研究

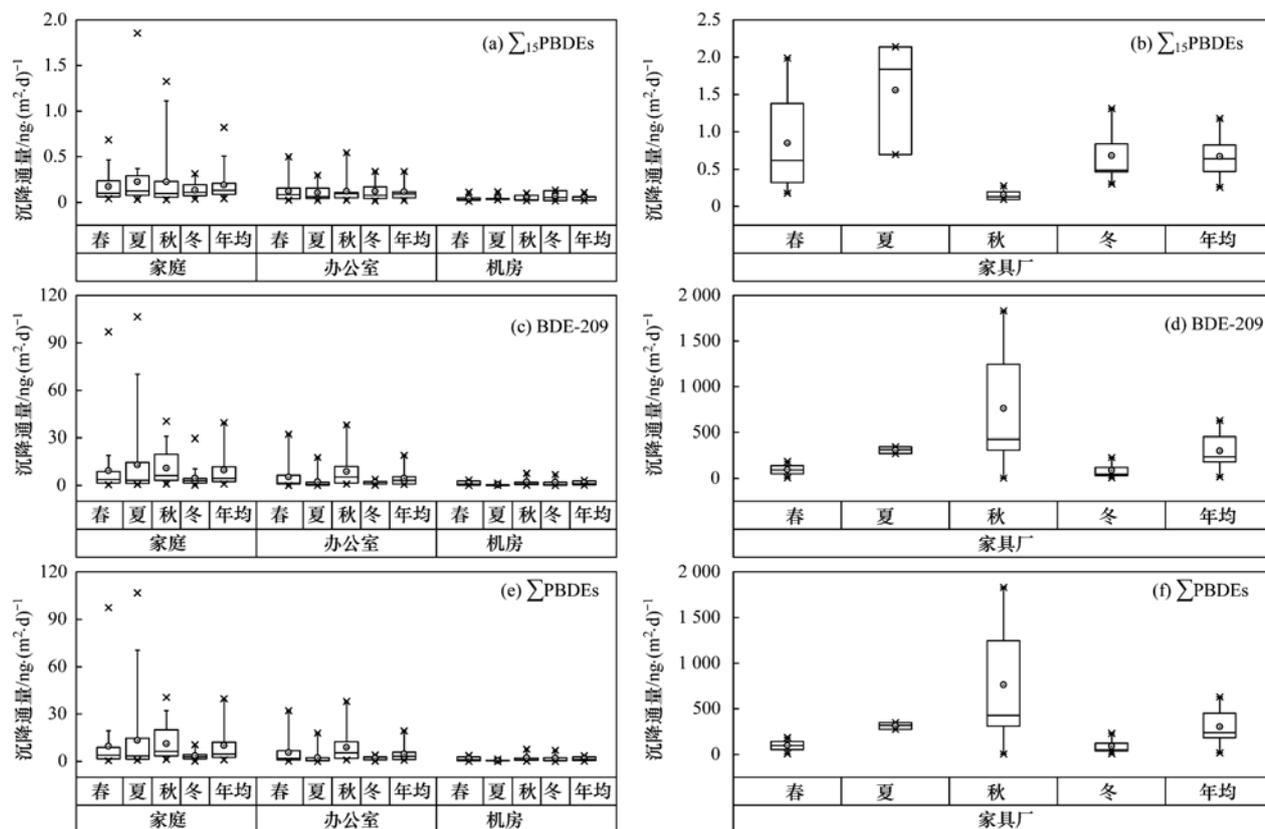
1) BDE-209 含量中值; 2) BDE-209 占  $\sum$  PBDEs 的百分比范围; 3) BDE-209 含量范围

## 2.2 季节变化

家庭、办公室(不含家具厂办公室 O17)、机房以及家具厂车间四季中  $\sum$  PBDEs 沉降通量几何均值最大的均为秋季(家具厂夏季通量较小的两个样品:木材切割储存车间和打磨车间采样玻璃板丢失,造成几何均值偏大,但从中值仍可看出秋季最大),最小的不一致,家庭最小的是冬季,办公室和机房最小的是夏季,家具厂车间是春季(图 2)。其中,家庭秋季  $\sum$  PBDEs 沉降通量几何均值约是最低值冬季的 2.8 倍。办公室秋季  $\sum$  PBDEs 沉降通量几何均值约是最低值夏季的 6 倍多。机房秋季  $\sum$  PBDEs 沉降通量几何均值约是最低值夏季的 4 倍。家具厂

秋季  $\sum$  PBDEs 沉降通量中值是最小值春季的 9 倍多。各类室内环境中  $\sum$  PBDEs 沉降通量都有明显的季节变化。少数采样点的季节变化不一致,可能受其周边环境中小局地释放源的影响,如特定时间段内施工等造成扬尘较多的影响。不同采样点通风习惯各异,也会造成受室外颗粒物影响程度不同。房屋朝向和不同季节风向的影响也可能造成季节变化的不一致。

四季间  $\sum_{15}$  PBDEs 或 BDE-209 沉降通量的 Spearman 相关性分析(表 5)表明,除家庭夏季与秋冬之间外,家庭和办公室四季间  $\sum_{15}$  PBDEs 的沉降通量有较显著至极显著的相关性(家庭  $r$  为 0.36 ~



箱中空圆圈和横线分别表示算数均值和中值,箱体上下边间距为四分位距(25% ~ 75%),箱外竖线两端表示 15% ~ 95% 百分位值,×表示最小或最大值,下同

图 2 厦门室内环境中 PBDEs 的沉降通量箱图

Fig. 2 Box plots of indoor deposition flux of PBDEs in Xiamen, China

表 5 四季间  $\sum_{15}$  PBDEs 或 BDE-209 沉降通量的 Spearman 相关系数<sup>1)</sup>

Table 5 Spearman correlation coefficients of  $\sum_{15}$  PBDEs or BDE-209 deposition flux among four seasons

项目	季节	Spearman's rho	家庭					办公室				
			春	夏	秋	冬	年均	春	夏	秋	冬	年均
$\sum_{15}$ PBDEs	春	Correlation Coefficient	1					1				
		Sig. (2-tailed)	.					.				
	夏	Correlation Coefficient	0.632 **	1				0.718 **	1			
		Sig. (2-tailed)	0.001	.				0.002	.			
	秋	Correlation Coefficient	0.494 *	0.275	1			0.696 **	0.727 **	1		
	Sig. (2-tailed)	0.017	0.205	.			0.003	0.001	.			
	冬	Correlation Coefficient	0.361	0.105	0.403	1		0.835 **	0.700 **	0.668 **	1	
	Sig. (2-tailed)	0.118	0.659	0.078	.		0.000	0.003	0.005	.		
	年均	Correlation Coefficient	0.803 **	0.674 **	0.711 **	0.522 *	1	0.932 **	0.856 **	0.823 **	0.868 **	1
	Sig. (2-tailed)	0.000	0.000	0.000	0.018	.	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	.
BDE-209	春	Correlation Coefficient	1					1				
		Sig. (2-tailed)	.					.				
	夏	Correlation Coefficient	0.338	1				0.382	1			
		Sig. (2-tailed)	0.115	.				0.144	.			
	秋	Correlation Coefficient	0.276	0.490 *	1			0.576 *	0.091	1		
	Sig. (2-tailed)	0.203	0.018	.			0.019	0.737	.			
	冬	Correlation Coefficient	0.526 *	0.248	0.535 *	1		0.500 *	0.171	0.726 **	1	
	Sig. (2-tailed)	0.017	0.292	0.015	.		0.049	0.528	0.001	.		
	年均	Correlation Coefficient	0.647 **	0.756 **	0.750 **	0.660 **	1	0.750 **	0.418	0.900 **	0.747 **	1
	Sig. (2-tailed)	0.001	0.000	0.000	0.002	.	0.001	0.107	0.000	0.001	.	

1) \*\* 为  $P < 0.01$  (双尾); \* 为  $P < 0.05$  (双尾)

0.63,  $P$  为 0.001 ~ 0.12; 办公室  $r$  为 0.67 ~ 0.84,  $P < 0.005$ ; Spearman correlation,  $\alpha = 0.05$ , SPSS 16.0, 下同), 表明各采样点  $\sum_{15}$  PBDEs 沉降通量的季节变化较一致,  $\sum_{15}$  PBDEs 沉降通量受温度等季节因素的显著影响. 家庭季节间  $\sum_{15}$  PBDEs 不显著或较低的相关性与通风较多, 受室外空气影响较大有关. 家庭和办公室四季间 BDE-209 的沉降通量也有一定的相关性 (家庭  $r$  为 0.25 ~ 0.54,  $P$  为 0.015 ~ 0.29; 办公室  $r$  为 0.09 ~ 0.73,  $P$  为 0.001 ~ 0.74), 但弱于  $\sum_{15}$  PBDEs, 这表明室内 BDE-209 可能部分来自室外. 除冬季外, 家庭和办公室其他三季  $\sum_{15}$  PBDEs 与 BDE-209 的沉降通量间有较显著的相关性 (家庭  $r$  为 0.38 ~ 0.67,  $P$  为 0.001 ~ 0.07; 办公室  $r$  为 0.39 ~ 0.49,  $P$  为 0.05 ~ 0.13), 这表明  $\sum_{15}$  PBDEs 与 BDE-209 可能来自相同的释放源<sup>[42, 43]</sup>, 也可能表明部分低溴二苯醚来自于 BDE-209 的降解<sup>[44, 45]</sup>.

### 2.2.1 家庭

家庭室内  $\sum$  PBDEs 四季沉降通量中, 冬季最低, 且多数采样点间沉降通量差异最小 (图 1). 秋季最高, 且各采样点间通量差异较大. 家庭春、夏季  $\sum$  PBDEs 沉降通量是冬季的近 2 倍, 这与厦门春、夏季气温高, 开窗通风多受室外颗粒物影响较大有关.

### 2.2.2 办公室

办公室室内  $\sum$  PBDEs 四季沉降通量中, 夏季最低, 且多数采样点间通量差异较小 (图 1). 秋季最高, 且各采样点间通量差异较大. 春季办公室  $\sum$  PBDEs 沉降通量几何均值略高于冬季, 但各办公室  $\sum$  PBDEs 沉降通量变化范围更大. 办公室夏季  $\sum$  PBDEs 沉降通量几何均值约是冬、春季的不足一半. 家庭和办公室的  $\sum$  PBDEs 不同的季节变反映了两种环境的差异. 造成这种差异的原因可能包括: ①办公室相对家庭环境更封闭, 受到外界影响较少; 而家庭环境夏季因天气炎热较多开窗通风, 受外界颗粒物影响较大<sup>[46, 47]</sup>. ②办公室夏季空调开启时间较长, 温度较低.

### 2.2.3 机房

机房室内  $\sum$  PBDE 四季沉降通量中, 夏季最

低, 且多数采样点间通量差异最小, 这一点与办公室一致. 秋季最高, 是冬春两季的近 2 倍, 是夏季的约 4 倍. 春季各机房  $\sum$  PBDEs 沉降通量相比冬季的季节变化不一致. 其中, 全封闭的大型交换机房 (C5) 春季与冬季  $\sum$  PBDEs 沉降通量相近, 无明显季节变化. 这与此交换机房为全封闭, 很少有人进入, 且常年处于恒温状态有关. 相反, 与 C5 位于同一栋楼的中控室 (C4) 春季  $\sum$  PBDEs 沉降通量约是冬季的近 5 倍, 该中控室门窗常年开启, 且厦门冬春不使用空调, 所以存在明显的季节变化.

### 2.2.4 家具厂

家具厂室内  $\sum$  PBDEs 四季沉降通量中, 冬春较低且相近 [中值  $85.9 \text{ ng} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$  和  $94.8 \text{ ng} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ ], 但春季几何均值更低 [ $54.8 \text{ ng} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ ], 约是冬季的 2/3. 这表明春季各点的沉降通量相对冬季更低且差异更大. 冬春较低与家具厂冬季有较长的春节假期, 春季是家具生产淡季等有关. 秋季最高 [中值  $836.7 \text{ ng} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ ] 更多受到订单和加工量的影响. 此外, 各家具厂车间 (F1: 木材切割储存、F2: 组装、F3: 打磨、F4: 喷漆)  $\sum$  PBDEs 沉降通量差异较大, 最高点出现在喷漆车间 [ $1830.4 \text{ ng} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ ], 是最低点 (木材切割储存车间) 的 817 倍. 这表明, 家具漆料中可能含有大量的 PBDEs 作为阻燃剂.

### 2.3 同系物组成

在各类室内降尘中, PBDEs 同系物组成上均以 BDE-209 为主, 其各季节几何均值都在 80% 以上, 这与我国主要使用十溴二苯醚工业品的情况是一致的. BDE-209 为主要的同系物组成与亚洲地区其他国家研究一致, 而与北美国家以低溴 BDEs 为主的情况不同 (表 4). 除 BDE-209 外, 主要的同系物还有 BDE-47、99、153、183 等. 其中, 家具厂 BDE-209 的比例最高, 各季节几何均值在 99% 左右, 变化范围 94 ~ 100%. 这表明, 家具生产环节仍有使用 PBDEs 作为阻燃剂, 且仅使用十溴二苯醚. 家庭、办公室和机房 BDE-209 的比例变化范围则相对较大.

按季节来分, 冬季平均比例均在 90% 以上. 家庭和办公室的 BDE-209 的平均比例相近 (91% 和 93%), 但不同家庭间 BDE-209 的比例变化 (59% ~ 99%) 较办公室 (82% ~ 99%) 更大. 这可能是由于不同家庭因经济条件悬殊导致家电等室内设施材料

生产年代和类别差异较大,不少低收入群体和老人仍在生产使用日期较早的电视等家电设备(表1),较老的设备和材料中可能含有较多的低溴BDEs<sup>[42, 43, 48]</sup>.春季BDE-209在各类采样点中的平均比例与冬季相似,但家庭采样点中BDE-209的比例有所提高,最低比例从59%提高至81%,这与春季气温适宜,开窗较多,受外界影响较大有关.夏季同系物组成上,办公室中BDE-209的几何平均比例相对冬春下降,最低比例更是从冬季的82%降至33%(O2),O2是某政府部门文印室,内有数台复印机、打印机和1台电脑,使用较频繁,其中复印机和电脑较老,为2007年购置,较老的办公设备可能含低溴BDEs<sup>[49, 50]</sup>.O2夏季较低的BDE-209比例可能与夏季温度较高,低溴BDEs的释放量相对冬季更高有关<sup>[43]</sup>.四季中,秋季家庭、办公室和机房的BDE-209比例最高(~97%),且略高于春季,由于厦门春季潮湿,而秋季相对湿度较低,秋季较高的BDE-209比例可能与秋季空气中的颗粒物质量浓度相对更高有关.

## 2.4 PBDEs 沉降通量的影响因素

### 2.4.1 PBDEs 沉降通量和降尘通量的相关性

家庭和办公室室内 $\sum$ PBDEs沉降通量和降尘通量显著相关(家庭: $r = 0.40$ ,  $P = 0.0001$ ;办公室: $r = 0.36$ ,  $P = 0.004$ ; Spearman correlation,  $\alpha = 0.05$ , SPSS 16.0,下同),表明降尘通量是影响家庭和办公室室内PBDEs沉降通量的重要因素之一.机房室内 $\sum$ PBDEs沉降通量和降尘通量相关性高于家庭和办公室( $r = 0.56$ ,  $P = 0.01$ ),表明机房室内 $\sum$ PBDEs沉降通量受到降尘通量影响更大,这与其封闭的环境有关.家具厂室内 $\sum$ PBDEs沉降通量和降尘通量无显著相关性( $r = 0.35$ ,  $P = 0.25$ ),表明降尘通量并非家具厂室内 $\sum$ PBDEs沉降通量的主要决定因素.

### 2.4.2 PBDEs 沉降通量和室内设备、装修等的相关性

家庭和办公室 $\sum_{15}$ PBDEs沉降通量与电脑年龄显著相关(家庭: $r = 0.38$ ,  $P = 0.095$ ;办公室: $r = 0.66$ ,  $P = 0.02$ ),表明较老的电脑中含有较多的低溴二苯醚<sup>[43, 49, 50]</sup>. $\sum_{15}$ PBDEs和BDE-209沉降通量与电器(电视、电脑、打印机、复印机等)数量、电器使用时长、沙发等家具数量、装修情况等均没

有显著的相关性,这与很多研究一致<sup>[48~50]</sup>.原因包括:①PBDEs在不同的品牌、不同类型电器和家具中的使用与否情况各异<sup>[28, 29]</sup>;②不同采样点室外空气中PBDEs质量浓度可能存在较大差异,室内PBDEs沉降通量可能受到室外不同程度的影响.

虽然PBDEs沉降通量和室内设备、装修等不存在显著相关性,但室内设备和材料确实会影响室内降尘中PBDEs的含量.例如,华侨大学办公室(O13、15)和图书馆(O14)各季节对比,办公室 $\sum$ PBDE沉降通量是图书馆的约3~137倍,冬季比值最小,夏季最大.其中,图书馆夏季 $\sum$ PBDE沉降通量最低,这主要受学校暑假期间图书馆较少开放所致.由于图书馆内陈设多为书、钢制书架和木质桌椅,而办公室内有多台电脑等电器和部分复合材质家具,办公室和图书馆悬殊的比例表明,电器的使用和部分复合材质的家具可能是PBDEs的释放源.

## 2.5 不同室内环境中PBDEs沉降通量的比较

### 2.5.1 家庭与办公室比较

家庭室内全年 $\sum$ PBDEs沉降通量几何均值是办公室的2倍,各季节比值变化范围是1.4~5.8倍,且家庭 $\sum$ PBDEs沉降通量变化范围更大.家庭和办公室四季最高沉降通量相比,家庭是办公室的约1.1~6.0倍,这可能是由于家庭电器设备等更新速度相对办公室要更慢,且不同家庭间经济条件等差异较大,不少低收入群体和老人仍在生产使用日期较早或二手的家电等设备,这些旧设备中含有较多的PBDEs.

### 2.5.2 办公室和机房比较

办公室室内全年 $\sum$ PBDEs沉降通量几何均值是机房的近3倍,各季节比值变化范围是2.3~3.7倍.由于多数机房环境封闭且恒温,低降尘通量是PBDEs沉降通量小的一个重要原因.机房采样点中,最低的点是一个全封闭的大型交换机房(C5),由于常年全封闭且极少有人进入,所以降尘通量非常低,PBDEs的沉降通量也相应就低.同时,一定程度上也说明这个交换机房的设备中可能并未使用PBDEs作为主要阻燃剂.

### 2.5.3 家具厂与普通室内环境比较

家具厂打磨车间(F3)四季 $\sum$ PBDEs沉降通量是临近家具厂办公室(O17)的1.3~5.9倍.其中,冬季比值(5.9)最高,由于冬季办公室因温度低较密闭,厂房与办公室较高的沉降通量梯度可能与

此有关. 其他季节因温度适宜而门窗敞开时间较长, 受厂房影响较大, 沉降通量梯度较小. 家具厂各季节  $\sum$  PBDEs 沉降通量几何均值是普通办公室相应季节的 26 ~ 391 倍, 说明家具厂车间  $\sum$  PBDEs 沉降通量远高于普通办公环境, 且生产车间对临近办公室的影响很大.

## 2.6 人体对降尘中 $\sum$ PBDEs 的暴露水平

人体每日通过降尘摄入  $\sum$  PBDEs 的量通过以下公式计算<sup>[5, 32]</sup>:

$$\text{Intake}_{\text{dust}} = C_{\text{dust}} \times R_{\text{d}}$$

式中,  $\text{Intake}_{\text{dust}}$ : 人体每日通过灰尘摄入 PBDEs 的量 ( $\text{ng} \cdot \text{d}^{-1}$ ),  $C_{\text{dust}}$ : 室内灰尘中  $\sum$  PBDEs 的含量 ( $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$ ),  $R_{\text{d}}$ : 室内灰尘平均日摄入量, 采用美国国家环保局数值<sup>[51]</sup>: 成人  $0.03 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$ , 幼儿  $0.06 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$ . 根据以上公式计算得出厦门市成人和幼儿每日通过灰尘摄入  $\sum$  PBDEs 的量. 美国国家环保

署提供了几种 BDE 同系物参考剂量<sup>[52]</sup> (Reference Dose, RfD,  $\text{ng} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ b. w.}$ ), 包括 BDE-47 和 99 ( $100 \text{ ng} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ b. w.}$ ), 153 ( $200 \text{ ng} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ b. w.}$ ), 183 ( $3\,000 \text{ ng} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ b. w.}$ )<sup>[5]</sup>, 209 ( $7\,000 \text{ ng} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ b. w.}$ ). 成人和幼儿年均每日通过降尘摄入 BDE 同系物的量 (Intake) 与 RfD 的比值箱图 (图 3) 表明, BDE-209 的摄入贡献最大, 其次是五溴 BDE, 而八溴 BDE 的摄入贡献很小. 为评价所有测定同系物的毒性, 将以上已知的 RfD 用于对应的五、八溴同系物. 为了简便, 假设 PBDEs 对人体的生物利用率等同于动物实验得出的 RfD<sup>[33]</sup>. 在极端情况下 (灰尘中 PBDEs 年均含量最大值, 室内灰尘摄入最大速率<sup>[5, 51]</sup>, 成人  $0.1 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$ , 幼儿  $0.2 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$ ), 家庭环境人体对  $\sum$  PBDEs 的暴露水平是 RfD 的 0.35% (成人) ~ 2.83% (幼儿), 办公室为 RfD 的 0.30% (成人) ~ 2.38% (幼儿). 家庭或办公室人体对  $\sum$  PBDEs 的暴露水平均低于 RfD.

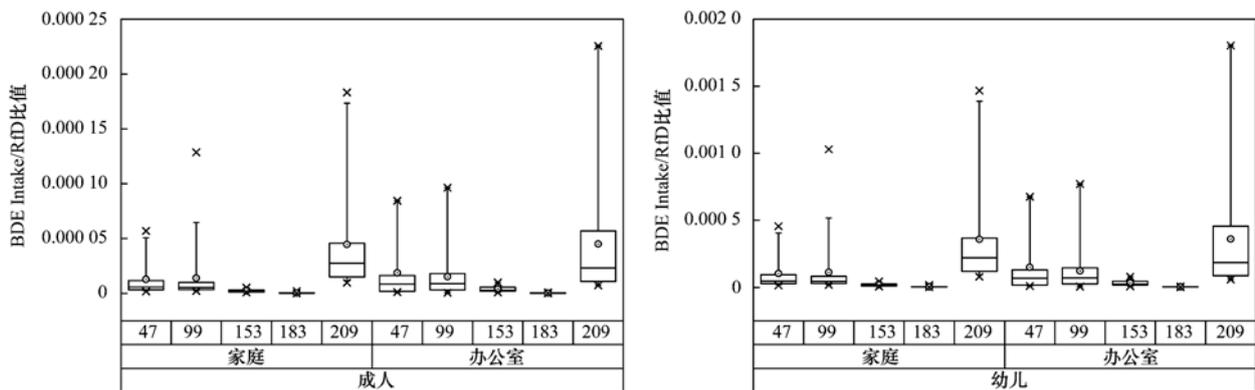


图 3 成人和幼儿每日通过降尘摄入 BDE 同系物的量与 RfD 的比值箱图

Fig. 3 Box plot of ratios of BDE congeners intake via dust ingestion to RfD for adults and toddlers

由于鱼类体内 PBDEs 含量高, 鱼类等水产品的食用是人体通过饮食摄入 PBDEs 的最主要途径之一<sup>[53, 54]</sup>, 将人体通过室内降尘每日摄入  $\sum$  PBDEs 的量与其进行比较, 以对降尘在人体摄入  $\sum$  PBDEs 的贡献有进一步认识. 成人和幼儿的单位体重日摄入鱼类的量 [ $0.23 \text{ g} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$  和  $0.26 \text{ g} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$ ] 参考美国国家环保局推荐数值<sup>[51]</sup>, 成人和幼儿体重分别取 60 kg 和 15 kg, 鱼中 PBDEs 的含量中值参考广东<sup>[55]</sup>、厦门<sup>[56]</sup> 和太湖<sup>[57]</sup> 的研究数据计算.  $\sum$  PBDEs 及其主要同系物日摄入量的比较表明 (表 6), 由于降尘和鱼中 PBDEs 同系物组成显著不同, 虽然人体每日通过室内降尘摄入  $\sum$  PBDEs 的总量高于通过食鱼摄入的量, 但主要

体现在高溴二苯醚尤其是 BDE-209 的摄入量高, 而低溴二苯醚尤其是五溴二苯醚则以食鱼摄入的量多. 值得注意的是, 幼儿通过室内降尘摄入的 BDE-99 高于食鱼摄入的量, 说明室内降尘在幼儿对 PBDEs 的暴露中扮演更为重要的角色. 这表明, 室内降尘是人体对 PBDEs 尤其是高溴 BDEs 的一条主要暴露途径.

## 3 结论

(1) 厦门家庭、办公室、机房和家具厂  $\sum$  PBDEs 沉降通量有显著的季节变化, 年均沉降通量 (几何均值) 分别为  $6.1$ 、 $3.0$ 、 $1.1$  和  $179.8 \text{ ng} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ , 与国内外城市相比处于较低水平. 家具厂 PBDEs 沉降通量比普通环境高出 2 个数量级左右.

表 6 厦门市成人和幼儿通过降尘和食鱼途径对 PBDEs 日摄入量的比较

Table 6 Comparison of daily intake of PBDEs via eating fish and dust ingestion for adults and toddlers in Xiamen, China

人群	项目	PBDEs 含量(以湿重计)/ $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$			PBDEs 日摄入量/ $\text{ng}\cdot\text{d}^{-1}$				
		广东鱼	厦门鱼	太湖鱼	食广东鱼	食厦门鱼	食太湖鱼	厦门家庭降尘	厦门办公室降尘
成人	BDE-47	76.8	33.1	149.0	1.06	0.46	2.06	0.03	0.05
	BDE-99	5.4	4.2	8.6	0.07	0.06	0.12	0.02	0.05
	BDE-153	5.5	4.0	30.6	0.08	0.05	0.42	0.02	0.03
	BDE-183	ND <sup>1)</sup>	3.7	2.3	ND	0.05	0.03	0.05	0.05
	BDE-209	ND	ND	53.8	ND	ND	0.74	8.54	7.79
	$\sum$ PBDEs	156.0	68.7	481.0	2.15	0.95	6.64	8.73	8.04
幼儿	BDE-47	76.8	33.1	149.0	0.30	0.13	0.58	0.06	0.10
	BDE-99	5.4	4.2	8.6	0.02	0.02	0.03	0.05	0.10
	BDE-153	5.5	4.0	30.6	0.02	0.02	0.12	0.04	0.07
	BDE-183	ND	3.7	2.3	ND	0.01	0.01	0.09	0.10
	BDE-209	ND	ND	53.8	ND	ND	0.21	17.09	15.57
	$\sum$ PBDEs	156.0	68.7	481.0	0.61	0.27	1.88	17.46	16.08

1) ND 表示未检出

(2) 各类室内降尘中 PBDEs 同系物组成均以 BDE-209 为主。

(3) 降尘通量是影响家庭、办公室和机房室内  $\sum$  PBDEs 沉降通量的重要因素之一, 但并非家具厂室内  $\sum$  PBDEs 沉降通量的主要影响因素。家庭和办公室  $\sum_{15}$  PBDEs 沉降通量与电脑使用年限显著正相关, 而与电器数量、装修等无显著相关性。

(4) 室内降尘是人体对  $\sum$  PBDEs 尤其是高溴 BDEs 的一条主要暴露途径。

致谢: 感谢各采样点工作人员提供的便利。感谢张娴和廖旭老师在仪器使用上的大力支持。

#### 参考文献:

- [ 1 ] Webster T F, Stapleton H M, McClean M D. Exposure to polybrominated diphenyl ethers in the indoor environment [J]. Fire Technology, 2015, **51**(1): 85-95.
- [ 2 ] Abbasi G, Buser A M, Soehl A, *et al.* Stocks and flows of PBDEs in products from use to waste in the US and Canada from 1970 to 2020 [J]. Environmental Science & Technology, 2015, **49**(3): 1521-1528.
- [ 3 ] Besis A, Samara C. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in the indoor and outdoor environments-A review on occurrence and human exposure [J]. Environmental Pollution, 2012, **169**: 217-229.
- [ 4 ] Johnson-Restrepo B, Kannan K. An assessment of sources and pathways of human exposure to polybrominated diphenyl ethers in the United States [J]. Chemosphere, 2009, **76**(4): 542-548.
- [ 5 ] Ni K, Lu Y L, Wang T Y, *et al.* A review of human exposure to polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in China [J]. International Journal of Hygiene and Environmental Health, 2013, **216**(6): 607-623.
- [ 6 ] Dodson R E, Camann D E, Morello-Frosch R, *et al.* Semivolatile organic compounds in homes: Strategies for efficient and systematic exposure measurement based on empirical and theoretical factors [J]. Environmental Science & Technology, 2015, **49**(1): 113-122.
- [ 7 ] Król S, Zabiegała B, Namieśnik J. Monitoring and analytics of semivolatile organic compounds (SVOCs) in indoor air [J]. Analytical and Bioanalytical Chemistry, 2011, **400**(6): 1751-1769.
- [ 8 ] Barro R, Regueiro J, Llompart M, *et al.* Analysis of industrial contaminants in indoor air: Part 1. Volatile organic compounds, carbonyl compounds, polycyclic aromatic hydrocarbons and polychlorinated biphenyls [J]. Journal of Chromatography A, 2009, **1216**(3): 540-566.
- [ 9 ] Seo Y, Han T. Assessment of penetration through vacuum cleaners and recommendation of wet cyclone technology [J]. Journal of the Air & Waste Management Association, 2013, **63**(4): 453-461.
- [ 10 ] Quang T N, He C R, Morawska L, *et al.* Influence of ventilation and filtration on indoor particle concentrations in urban office buildings [J]. Atmospheric Environment, 2013, **79**: 41-52.
- [ 11 ] Isaxon C, Gudmundsson A, Nordin E Z, *et al.* Contribution of indoor-generated particles to residential exposure [J]. Atmospheric Environment, 2015, **106**: 458-466.
- [ 12 ] Wu C L, Chao C Y H, Sze-To G N, *et al.* Ultrafine particle emissions from cigarette smouldering, incense burning, vacuum cleaner motor operation and cooking [J]. Indoor and Built Environment, 2012, **21**(6): 782-796.
- [ 13 ] Afshari A, Matson U, Ekberg L E. Characterization of indoor sources of fine and ultrafine particles; a study conducted in a full-scale chamber [J]. Indoor Air, 2005, **15**(2): 141-150.
- [ 14 ] Bennett D H, Moran R E, Wu X M, *et al.* Polybrominated diphenyl ether (PBDE) concentrations and resulting exposure in homes in California: relationships among passive air, surface wipe and dust concentrations, and temporal variability [J]. Indoor Air, 2015, **25**(2): 220-229.

- [15] Butt C M, Diamond M L, Truong J, *et al.* Spatial distribution of polybrominated diphenyl ethers in southern Ontario as measured in indoor and outdoor window organic films [J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, **38**(3): 724-731.
- [16] Wang X L, Liu S Z, Zhao J Y, *et al.* Deposition flux of aerosol particles and 15 polycyclic aromatic hydrocarbons in the North China Plain [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2014, **33**(4): 753-760.
- [17] Wang W T, Simonich S L M, Giri B, *et al.* Spatial distribution and seasonal variation of atmospheric bulk deposition of polycyclic aromatic hydrocarbons in Beijing-Tianjin region, North China [J]. *Environmental Pollution*, 2011, **159**(1): 287-293.
- [18] Moon H B, Kannan K, Lee S J, *et al.* Atmospheric deposition of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in coastal areas in Korea [J]. *Chemosphere*, 2007, **66**(4): 585-593.
- [19] 韩文亮, 冯加良, 彭小霞, 等. 上海室内环境中多溴二苯醚的沉降通量与组成 [J]. *环境科学*, 2010, **31**(3): 579-585.
- [20] 吴铎, 魏海涛, 赵瑞瑞, 等. 兰州市室内大气降尘环境磁学特征及其随高度变化研究 [J]. *环境科学*, 2014, **35**(1): 79-84.
- [21] 李岫雯, 曾辉, 倪宏刚. 办公室内颗粒物载带溴系阻燃剂的人体呼吸暴露 [J]. *环境科学*, 2015, **36**(6): 1989-1997.
- [22] Han W L, Feng J L, Gu Z P, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers in the atmosphere of Taizhou, a major e-waste dismantling area in China [J]. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 2009, **83**(6): 783-788.
- [23] ter Schure A F H, Larsson P. Polybrominated diphenyl ethers in precipitation in Southern Sweden (Skåne, Lund) [J]. *Atmospheric Environment*, 2002, **36**(25): 4015-4022.
- [24] Cetin B, Odabasi M. Particle-phase dry deposition and air-soil gas-exchange of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in Izmir, Turkey [J]. *Environmental Science & Technology*, 2007, **41**(14): 4986-4992.
- [25] Hearn L K, Kennedy K, Hawker D W, *et al.* Spatial mapping of city-wide PBDE levels using an exponential decay model [J]. *Journal of Environmental Monitoring*, 2012, **14**(2): 643-650.
- [26] Melymuk L, Robson M, Csiszar S A, *et al.* From the city to the lake: Loadings of PCBs, PBDEs, PAHs and PCMs from Toronto to Lake Ontario [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **48**(7): 3732-3741.
- [27] Melymuk L, Robson M, Helm P A, *et al.* PCBs, PBDEs, and PAHs in Toronto air: Spatial and seasonal trends and implications for contaminant transport [J]. *Science of the Total Environment*, 2012, **429**: 272-280.
- [28] Li Y, Duan Y P, Huang F, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers in e-waste: Level and transfer in a typical e-waste recycling site in Shanghai, Eastern China [J]. *Waste Management*, 2014, **34**(6): 1059-1065.
- [29] Allen J G, McClean M D, Stapleton H M, *et al.* Linking PBDEs in house dust to consumer products using X-ray fluorescence [J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, **42**(11): 4222-4228.
- [30] Stapleton H M, Dodder N G, Offenbergh J H, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers in house dust and clothes dryer lint [J]. *Environmental Science & Technology*, 2005, **39**(4): 925-931.
- [31] 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]. *Environment International*, 2008, **34**(2): 232-238.
- [32] Wilford B H, Shoeib M, Harner T, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers in indoor dust in Ottawa, Canada: Implications for sources and exposure [J]. *Environmental Science & Technology*, 2005, **39**(18): 7027-7035.
- [33] Fromme H, Hilger B, Kopp E, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs), hexabromocyclododecane (HBCD) and "novel" brominated flame retardants in house dust in Germany [J]. *Environment International*, 2014, **64**: 61-68.
- [34] Stasinska A, Reid A, Hinwood A, *et al.* Concentrations of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in residential dust samples from Western Australia [J]. *Chemosphere*, 2013, **91**(2): 187-193.
- [35] 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**(4): 603-608.
- [36] Tan J, Cheng S M, Loganath A, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers in house dust in Singapore [J]. *Chemosphere*, 2007, **66**(6): 985-992.
- [37] Tue N M, Takahashi S, Suzuki G, *et al.* Contamination of indoor dust and air by polychlorinated biphenyls and brominated flame retardants and relevance of non-dietary exposure in Vietnamese informal e-waste recycling sites [J]. *Environment International*, 2013, **51**: 160-167.
- [38] Takigami H, Suzuki G, Hirai Y, *et al.* Flame retardants in indoor dust and air of a hotel in Japan [J]. *Environment International*, 2009, **35**(4): 688-693.
- [39] Cao Z G, Xu F C, Covaci A, *et al.* Differences in the seasonal variation of brominated and phosphorus flame retardants in office dust [J]. *Environment International*, 2014, **65**: 100-106.
- [40] Wang W, Zheng J S, Chan C Y, *et al.* Health risk assessment of exposure to polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) contained in residential air particulate and dust in Guangzhou and Hong Kong [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **89**: 786-796.
- [41] Wang B L, Pang S T, Zhang X L, *et al.* Levels of polybrominated diphenyl ethers in settled house dust from urban dwellings with resident preschool-aged children in Nanjing, China [J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2015, **68**(1): 9-19.
- [42] Betts K. PBDEs and PCBs in computers, cars, and homes [J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, **40**(24): 7452.
- [43] Wayne S K, Anderson A, Corsi R L, *et al.* Thermal effects on polybrominated diphenyl ether mass transfer and emission from computer cases [J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2013, **64**: 343-351.

- [44] Stapleton H M, Dodder N G. Photodegradation of decabromodiphenyl ether in house dust by natural sunlight[J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2008, **27**(2): 306-312.
- [45] Schechter A, Pöpke O, Joseph J E, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in US computers and domestic carpet vacuuming: Possible sources of human exposure[J]. *Journal of Toxicology and Environmental Health-Part a-Current Issues*, 2005, **68**(7): 501-513.
- [46] Edwards R D, Yurkow E J, Liou P J. Seasonal deposition of house dusts onto household surfaces[J]. *Science of the Total Environment*, 1998, **224**(1-3): 69-80.
- [47] Weschler C J. Changes in indoor pollutants since the 1950s[J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(1): 153-169.
- [48] Hazrati S, Harrad S. Causes of variability in concentrations of polychlorinated biphenyls and polybrominated diphenyl ethers in indoor air[J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, **40**(24): 7584-7589.
- [49] Li Y, Chen L, Wen Z H, *et al.* Characterizing distribution, sources, and potential health risk of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in office environment[J]. *Environmental Pollution*, 2015, **198**: 25-31.
- [50] Destailhats H, Maddalena R L, Singer B C, *et al.* Indoor pollutants emitted by office equipment: A review of reported data and information needs[J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(7): 1371-1388.
- [51] US-EPA. Exposure factors handbook: 2011 Edition (Final) [M]. Washington, DC: National Center for Environmental Assessment, U. S. Environmental Protection Agency, 2011.
- [52] Integrated Risk Information System [EB/OL]. 2012. <http://cfpub.epa.gov/ncea/iris/index.cfm>.
- [53] Domingo J L. Polybrominated diphenyl ethers in food and human dietary exposure: A review of the recent scientific literature[J]. *Food and Chemical Toxicology*, 2012, **50**(2): 238-249.
- [54] 王俊霞, 王春艳, 刘莉莉, 等. 多溴联苯醚在市场鲫鱼体内分布和食鱼暴露量[J]. *环境科学*, 2014, **35**(8): 3175-3182.
- [55] 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]. *Environmental Science & Technology*, 2007, **41**(14): 4882-4887.
- [56] 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.
- [57] Yu Y X, Zhang S H, Huang N B, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers and polychlorinated biphenyls in freshwater fish from Taihu Lake, China: Their levels and the factors that influence biomagnification [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2012, **31**(3): 542-549.

## CONTENTS

Development and Performance Evaluation of a Supramicron Particle Generation System for Aerosol Instrument Calibration .....	CHEN Xiao-tong,JIANG Jing-kun,DENG Jian-guo, <i>et al.</i> ( 789 )
Establishment of Assessment Method for Air Bacteria and Fungi Contamination .....	ZHANG Hua-ling, YAO Da-jun, ZHANG Yu, <i>et al.</i> ( 795 )
Chemical Characteristics and Sources of Atmospheric Carbonyls During the 2014 Beijing APEC .....	HE Xiao-lang, TAN Ji-hua, GUO Song-jun, <i>et al.</i> ( 801 )
Different Air Pollution Situations of O <sub>3</sub> and PM <sub>2.5</sub> During Summer in Beijing .....	WANG Zhan-shan, ZHANG Da-wei, LI Yun-ting, <i>et al.</i> ( 807 )
Aerosol Optical Properties in the Northern Suburb of Nanjing During Haze Days in January 2013 .....	WANG Li-peng, MA Yan, ZHENG Jun, <i>et al.</i> ( 816 )
A Numerical Study of Typical Heavy Air Pollution Episode of PM <sub>2.5</sub> in Shanghai .....	CHANG Lu-yu, XU Jian-ming, ZHOU Guang-qiang, <i>et al.</i> ( 825 )
Indoor Deposition Flux, Seasonal Variations and Human Exposure Levels of Polybrominated Diphenyl Ethers in Xiamen, China .....	HAN Wen-liang, LIU Yu, CHEN Hai-ming, <i>et al.</i> ( 834 )
Nitric Oxide Removal with a Fe-TiO <sub>2</sub> /PSF Hybrid Catalytic Membrane Bioreactor .....	LI Bao-ren, CHEN Zhou-yang, WANG Jian-bin, <i>et al.</i> ( 847 )
Potential Bioavailability of Dissolved Organic Nitrogen in the Discharge Outlets of Sewage Treatment Plants Around the Jiaozhou Bay .....	KONG Xiu-jun,ZHANG Peng,YANG Nan-nan, <i>et al.</i> ( 854 )
Inversion Model and Daily Variation of Total Phosphorus Concentrations in Taihu Lake Based on GOCI Data .....	DU Cheng-gong, LI Yun-mei, WANG Qiao, <i>et al.</i> ( 862 )
Temporal and Spatial Distribution of Environmental Factors and Phytoplankton During Algal Bloom Season in Pengxi River, Three Gorges Reservoir .....	ZHOU Chuan, YU Jian-jun, FU Li, <i>et al.</i> ( 873 )
Three-dimensional Fluorescence Spectral Characteristics of Different Molecular Weight Fractionations of Dissolved Organic Matter in the Water-level Fluctuation Zones of Three Gorges Reservoir Areas .....	CHEN Xue-shuang, JIANG Tao, LU Song, <i>et al.</i> ( 884 )
Distribution Characteristics and Source Apportionment of <i>n</i> -Alkanes in Water from Yellow River in Henan Section .....	FENG Jing-lan, XI Nan-nan, ZHANG Fei, <i>et al.</i> ( 893 )
Distribution Characteristics and Source Identification of Organochlorine Pesticides in Surface Soil in Karst Underground River Basin .....	XIE Zheng-lan, SUN Yu-chuan, ZHANG Mei, <i>et al.</i> ( 900 )
Effects of Long-term Different Tillage Methods on Mercury and Methylmercury Contents in Purple Paddy Soil and Overlying Water .....	WANG Xin-yue, TANG Zhen-ya, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> ( 910 )
Speciation and Risk Characteristics of Heavy Metals in the Sediments of the Yangtze Estuary .....	YIN Su, FENG Cheng-hong, LI Yang-yang, <i>et al.</i> ( 917 )
Distribution and Pollution Assessment of Nutrient and Heavy Metals in Surface Sediments from Lake Gehu in Southern Jiangsu Province, China .....	XIONG Chun-hui, ZHAGN Rui-lei, WU Xiao-dong, <i>et al.</i> ( 925 )
Characteristics of Deposited Sediment and Assessment of Heavy Metals in Typical Tributaries Bay Riparian Zone of the Three Gorges Reservoir .....	WANG Yong-yan, WEN An-bang, SHI Zhong-lin, <i>et al.</i> ( 935 )
Pollution Characteristics Analysis and Risk Assessment of Total Mercury and Methylmercury in Aquatic Products of the Haihe Stem River .....	TONG Yin-dong, ZHANG Wei, DENG Chun-yan, <i>et al.</i> ( 942 )
Distribution and Content of Transferable Nitrogen in the Soil of Water Level Fluctuating Zones of Mainstream and Its Tributary of Three Gorges Reservoir Areas During the Dry Period .....	HE Li-ping, LIU Dan, YU Zhi-guo, <i>et al.</i> ( 950 )
Effect of Soil and Dominant Plants on Mercury Speciation in Soil and Water System of Water-Level-Fluctuation Zone in the Three Gorges Area .....	LIANG Li, WANG Yong-min, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> ( 955 )
Runoff Pollution Experiments of Paddy Fields Under Different Irrigation Patterns .....	ZHOU Jing-wen, SU Bao-lin, HUANG Ning-bo, <i>et al.</i> ( 963 )
Grain Size Distribution Characteristics of Suspended Particulate Matter as Influenced by the Apparent Pollution in the Eutrophic Urban Landscape Water Body .....	GONG Dan-yan, PAN Yang, HUANG Yong, <i>et al.</i> ( 970 )
Effect of Intermittent Aeration on Nitrogen Removal Efficiency in Vertical Subsurface Flow Constructed Wetland .....	WANG Jian, LI Huai-zheng, ZHEN Bao-chong, <i>et al.</i> ( 980 )
Effect of Non-dissolved Quinone on Perchlorate Reduction by Strain GWF .....	ZHANG Yuan-yuan, GUO Yan-kai, ZHANG Chao, <i>et al.</i> ( 988 )
Effects of UV Radiation on the Physicochemical Properties and Coagulation Properties of Humic Acid Solution .....	WANG Wen-dong, ZHANG Ke, FAN Qing-hai, <i>et al.</i> ( 994 )
Removal of Sulfate Ions from Aqueous Solution by Adsorption with Hydrotalcite-like Composite .....	GU Yi-bing, MA Yong-wen, WAN Jin-quan, <i>et al.</i> ( 1000 )
Effects of Fulvic Acid on Adsorption and Form Distribution of Heavy Metals on Sediments .....	LI Yu-qing, HE Jiang, LÜ Chang-wei, <i>et al.</i> ( 1008 )
Rapid Synthesis of Metal Organic Framework and Its Adsorption Properties on Anionic Dyes .....	SUN De-shuai, LIU Ya-li, ZHANG Xiao-dong, <i>et al.</i> ( 1016 )
Adsorption Properties of Fluorine onto Fulvic Acid-Bentonite Complex .....	FANG Dun, TIAN Hua-jing, YE Xin, <i>et al.</i> ( 1023 )
Influence of Three Low-Molecular-Weight Organic Acids on the Adsorption of Phenanthrene in Purple Soil .....	XIE Li, CHEN Ben-shou, ZHANG Jin-zhong, <i>et al.</i> ( 1032 )
Adsorptive Stabilization of Soil Cr(VI) Using HDTMA Modified Montmorillonite .....	JIANG Ting-ting, YU Kai, LUO Qi-shi, <i>et al.</i> ( 1039 )
Effects of Hydrothermal Treatment Time on the Transformations of N, P, K and Heavy Metals in Sewage Sludge .....	WANG Xing-dong, LIN Jing-jiang, LI Zhi-wei, <i>et al.</i> ( 1048 )
Inhibition of Denitrification by Total Phenol Load of Coal Gasification Wastewater .....	ZHANG Yu-ying, CHEN Xiu-rong, WANG Lu, <i>et al.</i> ( 1055 )
Element Sulfur Autotrophic Denitrification Combined Anaerobic Ammonia Oxidation .....	ZHOU Jian, HUANG Yong, LIU Xin, <i>et al.</i> ( 1061 )
Changes of Microbial Community Structure in Activated Sludge Bulking at Low Temperature .....	DUAN Zheng-hua, PAN Liu-ming, CHEN Xiao-ou, <i>et al.</i> ( 1070 )
Synergetic Inhibitory Effect of Free Ammonia and Aeration Phase Length Control on the Activity of Nitrifying Bacteria .....	SUN Hong-wei, LÜ Xin-tao, WEI Xue-fen, <i>et al.</i> ( 1075 )
Heterotrophic Nitrification and Aerobic Denitrification of the Hypothermia Aerobic Denitrification Bacterium: <i>Arthrobacter arilaitensis</i> .....	HE Teng-xia, NI Jiu-pai, LI Zhen-lun, <i>et al.</i> ( 1082 )
Isolation, Identification and Nitrogen Removal Characteristics of a Heterotrophic Nitrification-Aerobic Denitrification Strain y3 Isolated from Marine Environment .....	SUN Qing-hua, YU De-shuang, ZHANG Pei-yu, <i>et al.</i> ( 1089 )
Estimation of Topsoil Carbon Sequestration Potential of Cropland Through Different Methods: A Case Study in Zhuanglang County, Gansu Province .....	SHI Chen-di, XU Ming-xiang, QIU Yu-jie ( 1098 )
Priming Effects of Soil Moisture on Soil Respiration Under Different Tillage Practices .....	ZHANG Yan, LIANG Ai-zhen, ZHANG Xiao-ping, <i>et al.</i> ( 1106 )
Effects of Green Manure Intercropping and Straw Mulching on Winter Rape Rhizosphere Soil Organic Carbon and Soil Respiration .....	ZHOU Quan, WANG Long-chang, XIONG Ying, <i>et al.</i> ( 1114 )
Heidaigou Opencast Coal Mine: Soil Enzyme Activities and Soil Physical and Chemical Properties Under Different Vegetation Restoration .....	FANG Ying, MA Ren-tian, AN Shao-shan, <i>et al.</i> ( 1121 )
C, N, P, K Stoichiometric Characteristic of Leaves, Root and Soil in Different Abandoned Years in Loess Plateau .....	ZHANG Hai-dong, RU Hai-li, JIAO Feng, <i>et al.</i> ( 1128 )
Soil Heavy Metal Spatial Distribution and Source Analysis Around an Aluminum Plant in Baotou .....	ZHANG Lian-ke, LI Hai-peng, HUANG Xue-min, <i>et al.</i> ( 1139 )
Mixture Leaching Remediation Technology of Arsenic Contaminated Soil .....	CHEN Xun-feng, LI Xiao-ming, CHEN Can, <i>et al.</i> ( 1147 )
Performance of Electricity Generation and Feasibility of Discontinuous Power Supply of MFC by Using Pretreated Excess Sludge as Fuel .....	ZHAO Yan-hui, ZHAO Yang-guo, GUO Liang ( 1156 )
Correlation of Persistent Free Radicals, PCDD/Fs and Metals in Waste Incineration Fly Ash .....	WANG Tian-jiao, CHEN Tong, ZHAN Ming-xiu, <i>et al.</i> ( 1163 )
Effects of Eliminating Backward Production Capacities on Reduction of Dioxin Emissions in Key Industries .....	GENG Jing, LÜ Yong-long, REN Bing-nan, <i>et al.</i> ( 1171 )

# 《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军  
朱永官 刘志培 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明  
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞  
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

## 环 境 科 学

( HUANJING KEXUE )

(月刊 1976年8月创刊)

2016年3月15日 第37卷 第3期

## ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 37 No. 3 Mar. 15, 2016

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science ( HUANJING KEXUE ) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencecp. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencecp. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301  
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 120.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行