

多溴联苯醚在桂花鱼体内的分布

郭英^{1,2}, 唐洪磊^{1,2}, 孟祥周^{1,2}, 麦碧娴¹, 曾永平^{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: 使用 GC-MS-NCI 检测方法对持久性有机污染物多溴联苯醚(PBDEs)的同系物 BDE28, 47, 66, 85, 99, 100, 138, 153, 154, 183, 209 在桂花鱼体内的含量及分布进行了研究. 结果表明, Σ_{10} PBDEs (不包括 BDE209) 在肾脏中含量最高, 肌肉中含量最低, 其干重平均值分别为 $5.71 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 和 $0.95 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$. Σ_{10} PBDEs 在肾脏、鱼鳔、肝脏、鱼鳃、生殖腺、鱼皮、肠胃和肌肉中的干重含量分别为 $3.04 \sim 12.8$, $0.81 \sim 6.90$, $1.28 \sim 8.87$, $0.09 \sim 6.36$, $1.05 \sim 5.73$, $0.022 \sim 5.06$, $0.69 \sim 5.98$ 和 $0.14 \sim 2.61 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$. Σ_{10} PBDEs 在各组织和器官的含量顺序为: 肾脏、鱼鳔、肝脏 > 鱼鳃、生殖腺 > 肠胃、肌肉、鱼皮. 桂花鱼体所含低溴取代 PBDEs 以 BDE47 为主要同系物, 所占丰度为 $35.7\% \sim 65.6\%$. 十溴取代物 BDE209 在所有样品中检出率为 45.2% , 其中在肾脏和生殖腺中含量较高. 研究表明, PBDEs 由摄食、呼吸 2 种主要途径进入桂花鱼体内, 易富集在肝脏、鱼鳔、鱼鳃等脂肪含量较高的组织和器官中.

关键词: 多溴联苯醚; 桂花鱼; 体分布; BDE209

中图分类号: X171.5 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2007)12-2806-05

Tissue Distribution of PBDEs in Mandarin Fish

GUO Ying^{1,2}, TANG Hong-lei^{1,2}, MENG Xiang-zhou^{1,2}, MAI Bi-xian¹, ZENG Eddy Y¹

(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: Levels and distribution of polybrominated diphenyl ether (PBDE) congeners, including BDE28, 47, 66, 85, 99, 100, 138, 153, 154, 183, and 209 (sum of which except for BDE 209 is designated as Σ_{10} PBDEs), in Mandarin fish (*Siniperca chuatsi*) tissues were determined using the method of gas chromatography-mass spectrometry operating in the negative chemical ionization mode. The highest and lowest mean concentrations of Σ_{10} PBDEs were $5.71 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ and $0.95 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ (dry weight), found in kidney and muscle tissue, respectively. The concentration ranges of Σ_{10} PBDEs in kidney, swimming bladder, liver, gills, gonad, gastrointestinal tract, skin, and muscle were $3.04 \sim 12.8$, $0.81 \sim 6.90$, $1.28 \sim 8.87$, $0.09 \sim 6.36$, $1.05 \sim 5.73$, $0.022 \sim 5.06$, $0.69 \sim 5.98$, and $0.14 \sim 2.61 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ (dry weight), respectively. The tissue concentrations of Σ_{10} PBDEs followed the sequence of kidney, swimming bladder, liver > gills, gonad > stomach, skin, muscle. BDE47 was the predominant component among the low brominated PBDEs, accounting for 35.7% to 65.6% of Σ_{10} PBDEs. BDE209 was detected in 45.2% of the samples, and its levels were higher in kidney and gonad than in other organs. These results indicated that PBDEs were bioaccumulated in Mandarin fish from both feeding and gill inhalation, and they particularly preferred to concentrate in tissues with high lipid contents, such as liver, swimming bladder, and gills.

Key words: PBDEs; Mandarin fish; tissue distribution; BDE209

多溴联苯醚(PBDEs)作为广泛使用的添加型阻燃剂, 主要用在电子设备、塑料以及家具中. PBDEs 由于其性质稳定, 脂溶性强, 可长距离迁移而在各种环境介质中长期存在, 并可通过生物浓缩和食物链放大作用使其浓度提高^[1].

珠江三角洲地区电子信息产业发达, 且拥有丰富复杂的水系和充沛的雨量, 渔业发达, 有机污染物易通过地表径流和大气干湿沉降等方式进入鱼塘, 对鱼塘生态体系造成危害. 鱼类代谢有机污染物的能力较低^[2], 因此鱼体内所含污染物含量在一定程度上反映出所处环境的污染状况^[3]. 此外, 持久性有机物进入生物体是一个相当复杂的过程^[4], 其机理一直是科研人员关注的热点.

目前, 对于珠江三角洲地区 PBDEs 的研究较

少^[5-7], 仅有向彩虹等^[8]针对珠江河口水生生物体肌肉和肝脏中 PBDEs 的分布情况进行了讨论. 本研究采用 GC-MS-NCI 检测技术, 进一步研究了淡水养殖的桂花鱼体内各组织和器官中 PBDEs 的含量水平、同系物分布, 并对 PBDEs 进入桂花鱼体的途径进行探讨.

1 材料与方法

1.1 PBDEs 标样

PBDEs 标样 (Accustandards, USA), 包括混合标

收稿日期: 2007-01-04; 修订日期: 2007-03-24

基金项目: 国家自然科学基金项目 (40532013); 中国科学院“引进国外杰出人才计划”基金项目

作者简介: 郭英 (1981 ~), 女, 博士研究生, 主要研究方向为生物体中的多溴联苯醚.

* 通讯联系人, E-mail: eddyzeng@gig.ac.cn

样(BDE28、BDE47、BDE66、BDE85、BDE99、BDE100、BDE138、BDE153 和 BDE154, IUPAC 命名)和单化合物标样(BDE183 和 BDE209);内标 ^{13}C -PCB208 (Cambridge Isotope laboratories), 回收率标样 ^{13}C -PCB141 (Cambridge Isotope Laboratories) 和 PCB209 (Accustandards, USA)。

1.2 样品采集

2004-11 中旬分别在广州、珠海、中山、江门、阳江、茂名水产市场及超市随机采集桂花鱼 8 条,样品采集后,登记编号,保存在加冰的保温箱中运回实验室,然后将其保存于 -20°C 冰箱中备用。

1.3 样品前处理方法

鱼在室温下解冻,鱼体各个部分采集方式如下。鱼皮:选取鱼脊背两侧鱼皮,去除鱼鳞,刮去表面残留肌肉;肌肉:采集脊背上的肌肉组织;分离鱼鳃、肝脏、肾脏、生殖腺、鱼鳔;肠胃,直接取出,去除内部食物。所有样品用二次蒸馏水分别清洗干净,混合均匀,真空冷冻干燥后研磨。将 PBDEs 的回收率指示物标样 ^{13}C -PCB141 和 PCB209 加入样品,用 200 mL 1:1(体积比)丙酮/正己烷混合溶剂索氏提取 48 h,提取液浓缩并置换溶剂为正己烷后定容为 5 mL,取 1 mL 提取液用重量法测定脂肪含量。

取 4 mL 提取液过凝胶渗透色谱柱 GPC(填料为 40 g Bio-beads SX-3),纯化去除大分子组分。用 280 mL 1:1(体积比)二氯甲烷/正己烷混合溶剂淋洗凝胶色谱柱,收集 90 ~ 280 mL 组分。淋洗液浓缩至 4 mL,取其中 2 mL GPC 浓缩液过多层硅胶氧化铝复合柱。使用 75 mL 1:1(体积比)正己烷/二氯甲烷溶剂淋洗。收集 PBDEs 组分,淋洗液浓缩转入 2 mL 棕色细胞瓶中,用柔和氮气吹至 0.1 mL,加入内标 ^{13}C -PCB208 进行 GC-MS-NCI 分析。

1.4 分析仪器及色谱条件

采用岛津气相色谱-质谱联用仪(Shimadzu GCMS-QP2010),负化学电离(NCI),进行 PBDEs 的测量。对于 BDE28, 47, 66, 85, 99, 100, 138, 153, 154, C^{13} -PCB141, C^{13} -PCB208, 色谱柱 DB-XLB (30 m $\times$ 0.25 mm $\times$ 0.25 μm , J&W Scientific)。升温程序:初始温度 110°C 保留 1 min, $8^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 升至 180°C , 保留 1 min, 以 $2^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 升至 240°C , 保留 5 min 以 $2^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 升至 280°C , 保留 25 min, 以 $5^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 升至 290°C , 保留 13 min。对于高溴取代物 BDE209, 色谱柱为 CP-Sil 13 CB (12.5 m $\times$ 0.25 mm $\times$ 0.2 μm , Varian), 升温程序:初始温度 110°C , 保留 1 min, 然后以 $8^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 的速率升至 300°C , 保留 20 min。其它条件:载气为高纯氮气,反应气为甲烷,柱流速为 $1.0\text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$, 离子源温度 200°C , 界面温度 280°C , 无分流进样 1 μL 。

1.5 质量控制与质量保证

质量控制与质量保证体系主要包括:方法空白、基质加标、加标空白和基质加标平行样。每个分析样品(包括标准样品)都要添加回收率指示物标样,以控制分析流程的回收率。本研究中 PBDEs 指示物标样 ^{13}C -PCB141 和 PCB209 的回收率分别为 $(89.6 \pm 17.9)\%$ 和 $(83.6 \pm 19.1)\%$ 。方法空白中 BDE28 和 BDE47 有检出,平均含量分别为 $0.01\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $0.09\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$,对最后结果没有影响。数据没有进行空白扣除和回收率校正。

2 结果与讨论

2.1 样品脂肪含量

采用重量法对桂花鱼体各组织和器官脂肪含量进行测定,其结果如表 1 所示。

表 1 桂花鱼样品中脂肪含量百分比¹⁾/%
Table 1 Lipid percentage of Mandarin Fish sample/%

名称	肾脏	鱼鳔	鱼鳃	鱼皮	肝脏	肠胃	生殖腺	肌肉
含量	3.0~8.1 (5.2)	3.0~11.2 (9.2)	3.9~6.0 (5.1)	0.98~2.1 (1.4)	4.3~12.7 (8.4)	1.9~4.8 (2.8)	1.5~3.6 (2.9)	1.0~2.7 (1.7)

1) 括号内数值位平均值

所检测样品中,鱼鳔、肝脏脂肪含量较高,平均含量分别为 9.2% 和 8.4%,其次是肾脏、鱼鳃,再次是生殖腺、肠胃、肌肉、鱼皮,其脂肪含量大约为 2.0%。

2.2 桂花鱼体内多溴联苯醚分布

$\sum_{10}$ PBDEs (包括 BDE28、47、66、85、99、100、

138、153、154 和 183) 在桂花鱼体内各组织和器官含量有差异(图 1),其干重浓度范围为 $0.022 \sim 12.8\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$,顺序为:肾脏、鱼鳔、肝脏 > 鱼鳃、生殖腺 > 肠胃、鱼皮、肌肉。

肾脏、肝脏、鱼鳔含量较高,最高浓度出现在肾脏,干重浓度为 $12.8\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$,肌肉含量较低,最高值

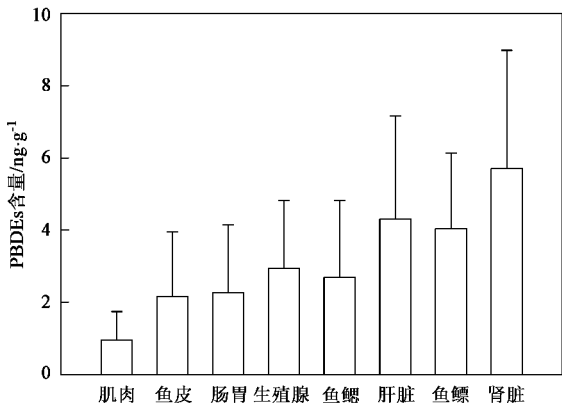


图 1 PBDEs 在桂花鱼体内含量分布(平均含量 + 标准偏差)

Fig.1 Tissue distribution of PBDEs in Mandarin Fish

仅为 $2.40\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$. 肝脏、肾脏和肌肉中的污染物能够反映近期和长期受污染的状况^[9], 污染物随着血液运送到生物体各部使其在生物体内部达到平衡需要较长的时间^[10]. Bureau 等^[11]利用自动射线照相术研究了¹⁴C-BDE47 经白斑狗鱼摄食后在鱼体内的分布以及代谢过程, 结果表明, 肝脏和肾脏的放射性在暴露后第 36 d 变化不大, 仍然是狗鱼体内各个部分放射性较强的部位, 而肌肉的放射性非常弱, 其强度小于鱼皮. 经过 65 d, ¹⁴C-BDE47 及其代谢产物在鱼体内仍然没有达到平衡, 肾脏、肝脏、肌肉放射强度都有所降低, 且肌肉和其他脂肪含量较高器官的强度差别在 36 ~ 65 d 内要大于 9 ~ 18 d 的, 表明脂肪可能是低取代多溴联苯醚在生物体内最终的“汇”. 表 1 数据表明, 鱼鳃、肝脏的脂肪含量较高, 而肾脏、鱼鳃居中, 肠胃、生殖腺、肌肉、鱼皮较低, 这和 PBDEs 的浓度分布次序相似. 肾脏和肝脏中较高浓度的 PBDEs 表明这些物质是近期进入桂花鱼体内的, 还没有达到平衡或是处于持续暴露状态, 肌肉中少 PBDEs 的存在可能是由于其组织中有血液的关系.

2.3 PBDEs 同系物分布

PBDEs 随着溴化程度的增加, 其生物有效性先增大后减小^[12]. BDE47 在所有样品中都可检出, BDE28, 66, 99, 100, 153, 154 检出率均为 96.7%, BDE85、BDE183、BDE138 检出率分别为 83%、88%、37%. 大量研究均表明 BDE47 最易在生物样品中富集^[11, 13], 其次为 BDE99. 在桂花鱼所有样品中, 如图 2 所示, BDE47 丰度最高, 其范围为 35.7% ~ 65.6%, 其他同系物丰度分布在不同组织和器官略有不同.

在鱼鳃、鱼鳔、肌肉、肝脏中, PBDEs 同系物丰度顺序为: BDE47 > BDE28 > BDE154 > BDE100 > BDE153 > BDE183 > BDE66、BDE99 > BDE85、BDE138. 其中 BDE28 平均丰度为 13.3%, 仅次于 BDE47 (62.5%), 最小的是 BDE138 (0.5%), 其样品检出率为 37.1%. 与 Konomou 等^[14, 15]研究结果不同, 本研究中 BDE99 的丰度不高 (1.1%). 在鱼皮、生殖腺、肠胃中, PBDEs 同系物丰度顺序略有不同: BDE47 > BDE183 > BDE28 > BDE153、BDE154 > BDE100、BDE99 > BDE66、BDE85、BDE138, 其中 BDE183 平均丰度变化较大 (25.1%), 超过了 BDE28 (9.3%).

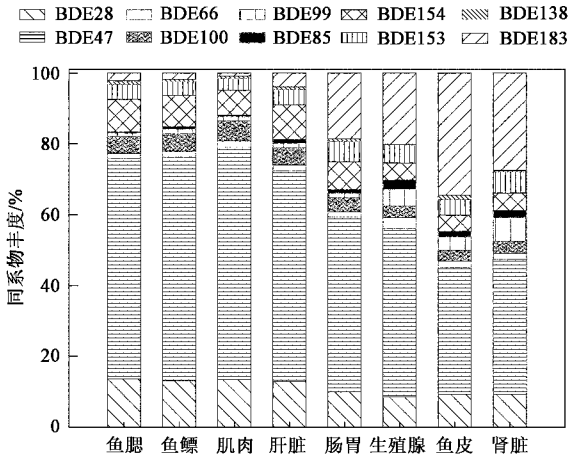


图 2 PBDEs 同系物百分含量

Fig.2 Compound percentage of PBDEs

三、四溴联苯醚 (BDE28、BDE47) 丰度较高. BDE47、BDE99、BDE100、BDE153、BDE154 是五溴阻燃剂的主要组成^[16], 这些同系物可能来自五溴阻燃剂. Chen 等^[7]对广州地区大气中 PBDEs 的分布进行了研究, 同样发现了类似五溴阻燃剂组成的同系物结构模式, 而且 BDE28 的丰度要明显高于产品中的丰度. 这些低溴同系物, 或是高溴同系物在迁移过程中脱溴降解的产物^[17, 18], 具有较高的溶解度和蒸汽压而易于通过大气以及水体输送, 在鱼塘这个相对封闭体系中形成“汇”, 从而使鱼体遭受污染. 数据显示, 鱼鳃、鱼鳔中 BDE28 和 BDE47 丰度和超过了 75%, 表明低溴同系物可能直接由鱼鳃的呼吸作用进入鱼体. 这些低溴同系物也可能是高溴同系物进入鱼体后降解的产物, 研究发现, BDE99 可降解为 BDE47^[19], BDE153 可降解为 BDE99^[20].

桂花鱼属于底栖型食肉鱼类, 其肾脏和肠胃中较高丰度的同系物 BDE183、BDE153 和 BDE154 可能和其生活习性有关. 高溴代 PBDEs 更易吸附于细

小颗粒物并随它们 在环境中迁移^[21],桂花鱼很可能直接通过摄食被污染的食物或是颗粒物而吸收 BDE183.此外,在鱼皮、肠胃、肾脏这些反映近期鱼体所受污染的样品中 BDE183 的丰度都较高,表明 BDE209 的降解也可能是 BDE183 来源之一^[22].样品中较高丰度的 BDE153 和 BDE154,很可能与 BDE209 和 BDE183 的降解有关^[19,22~24].

2.4 有关 BDE209 的讨论

BDE209 的样品检出率为 45.2%,如表 2 所示,肠胃样品中只有 1 个没有检出.

据统计,十溴阻燃剂是我国溴系阻燃剂中使用量最大的添加型阻燃剂,年产量约为 1.5×10^5 t, BDE209 是十溴阻燃剂的主要成分($> 90\%$)^[16].珠江三角洲地区电子产业发达,在其水域、大气体系中 BDE209 广泛存在^[7,25].

十溴联苯醚 BDE209 与其他低取代的多溴联苯醚相比,具有很高的 $\lg K_{ow}$ 值(大约为 10),较高的分子量以及独特的分子结构,一般不易进入生物体,普遍认为其生物有效性很小^[26],但通过鱼类喂养实验发现,仍有大约 0.5% 的 BDE209 被吸收^[24]. BDE209 在水中溶解度低,一般易于附着在颗粒物和沉积物上.桂花鱼属于底栖型鱼类,其肠胃和鱼皮中 BDE209 的检出可能和其生活习性有关.在桂花鱼其他部位都可检测到该物质,也证明该物质是可被生物吸收利用的,但由于 BDE209 易光降解^[18],进入生物体后可能迅速转化^[13,22],所得到的数据并不稳定. BDE209 在肠胃样品中的检出率最高,肌肉中的含量较低,以及它与 BDE183 在肠胃、肾脏等器官的对应关系,都表明 BDE209 很可能主要通过摄食进入桂花鱼体.

表 2 BDE209 在桂花鱼体内含量分布¹⁾
Table 2 Tissue distribution of BDE209 in Mandarin fish

编号	性别	BDE209 的浓度(干重) /ng•g ⁻¹							
		肠胃	鱼鳃	肾脏	肝脏	鱼皮	鱼鳔	生殖腺	肌肉
阳江-1	F	3.04	4.78	91.0	2.70	—	nd	nd	nd
江门-2	M	2.68	1.76	nd	nd	nd	1.69	nd	1.10
江门-3	M	3.58	—	8.42	8.75	4.88	2.95	64.6	nd
茂名-4	M	2.24	nd	9.96	nd	nd	nd	nd	0.61
茂名-5	M	3.04	nd	nd	nd	7.19	4.81	39.4	nd
珠海-6	M	14.4	nd	nd	nd	13.9	nd	nd	nd
中山-7	F	1.56	nd	nd	nd	14.1	nd	nd	nd
广州-8	M	nd	1.49	nd	1.13	6.08	nd	16.0	0.59

1) nd 表示其浓度低于检测限;—表示样品缺失;M 为雄性,F 为雌性

在 3 个生殖腺样品中有高浓度 BDE209 的检出,其干重浓度分别为 16.0、39.4 和 64.6 ng•g⁻¹,都要高于低溴同系物中的最高浓度.值得注意的是,这 3 个样品均是雄性.桂花鱼产卵期一般在 6~7 月份,采集样品的时间是 11 月份.在 2 个雌性样品中并没有检出 BDE209,但在随机采取、测试的 1 个桂花鱼仔样品中,BDE209 干重浓度达到 5.22 ng•g⁻¹.近期一些研究在陆生鸟卵中也发现较高浓度的 BDE209^[27].有关桂花鱼生殖器官中高浓度 BDE209 的富集机理还有待进一步探讨.

3 结论

(1) 桂花鱼体内 Σ_{10} PBDEs 在各组织和器官中干重浓度范围为 0.022~12.8 ng•g⁻¹,顺序为:肾脏、鱼鳔、肝脏 > 鱼鳃、生殖腺 > 肠胃、鱼皮、肌肉.

(2) 所有检测样品中,BDE47 占 Σ_{10} PBDEs 的丰

度最高,其余 PBDEs 同系物丰度在不同样品中有差别,变化较大的是 BDE183.

(3) BDE209 可以被桂花鱼吸收,具有一定的生物有效性.

(4) PBDEs 主要通过呼吸和摄食 2 种途径进入桂花鱼体,其中低溴同系物可能主要通过鱼鳃呼吸,而高溴同系物主要通过摄食. PBDEs 在桂花鱼体内经过吸收、降解,易在脂肪含量较高的部分富集.

参考文献:

[1] Damerud P O, Eriksen G S, Jóhannesson T, et al. Polybrominated diphenyl ethers: occurrence, dietary exposure, and toxicology [J]. Environmental Health Perspectives, 2001, 109: 49~68.

[2] Rhead M M, Perkins J M. An evaluation of the relative importance of food and water as sources of p, p'-DDT to the goldfish, *Carassius auratus* [J]. Water Research, 1984, 18: 719~725.

[3] Lanfranchi A L, Menone M L, Miglironza K S B, et al. Striped weakfish (*Cynoscion guatucupa*): a biomonitor of organochlorine pesticides in estuarine and near-coastal zones [J]. Marine Pollution Bulletin, 2006, 52: 74~80.

- [4] Mackay D, Fraser A. Bioaccumulation of persistent organic chemicals: mechanisms and models [J]. Environmental Pollution, 2000, **110**: 375 ~ 391.
- [5] Bi X H, Qu W Y, Sheng G Y, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers in South China maternal and fetal blood and breast milk [J]. Environmental Pollution, 2006, **144**: 1024 ~ 1030.
- [6] Mai B X, Zeng E Y, Luo X J, *et al.* Abundances, depositional fluxes, and homologue patterns of polychlorinated biphenyls in dated sediment cores from the Pearl River Delta, China [J]. Environmental Science and Technology, 2005, **39**: 49 ~ 56.
- [7] 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]. Environmental Science and Technology, 2006, **40**: 1190 ~ 1196.
- [8] 向彩虹, 罗孝俊, 余梅, 等. 珠江河口水生生物中多溴联苯醚的分布 [J]. 环境科学, 2006, **27**(9): 1732 ~ 1737.
- [9] Albaigés J, Farrán A, Soler M, *et al.* Accumulation and distribution of biogenic and pollutant hydrocarbons, pcbs and ddt in tissues of western mediterranean fishes [J]. Marine Environmental Research, 1987, **22**: 1 ~ 18.
- [10] Vives I, Grimalt J O, Lacorte S, *et al.* Polybromodiphenyl ether flame retardants in fish from lakes in European High Mountains and Greenland [J]. Environmental Science and Technology, 2004, **38**: 2338 ~ 2344.
- [11] Burreau S, Broman D, Örn U. Tissue distribution of 2, 2', 4, 4'-tetrabromo[¹⁴C]dipheyl ether ([¹⁴C]-PBDE47) in pike (*Esox lucius*) after dietary exposure-a time series study using whole body autoradiography [J]. Chemosphere, 2000, **40**: 977 ~ 985.
- [12] Jansson B, Andersson R, Asplund L, *et al.* Chlorinated and brominated persistent organic compounds in biological samples from the environment [J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 1993, **12**: 1163 ~ 1174.
- [13] Tomy G T, Palace V P, Halldorson T, *et al.* Bioaccumulation, biotransformation, and biochemical effects of brominated diphenyl ethers in juvenile lake trout (*Salvelinus namaycush*) [J]. Environmental Science and Technology, 2004, **38**: 1496 ~ 1504.
- [14] Manchester-neesvig J B, Valters K, Sonzogni W C. Comparison of polybrominated diphenyl Ethers (PBDEs) and polychlorinated biphenyls (PCBs) in Lake Michigan Salmonids [J]. Environmental Science and Technology, 2001, **35**: 1072 ~ 1077.
- [15] Konomou M G, Rayne S, Addison R F. Exponential increases of the brominated flame retardants, polybrominated diphenyl ethers, in the Canadian Arctic from 1981 to 2000 [J]. Environmental Science and Technology, 2002, **36**: 1886 ~ 1892.
- [16] La A G M J, Hale R C, Harvey E. 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**: 6247 ~ 6254.
- [17] Bezares-Cruz J, Jafvert C T, Hua I. Solar photodecomposition of decabromodiphenyl ethers: products and quantum yield [J]. Environmental Science and Technology, 2004, **38**: 4149 ~ 4156.
- [18] Söderström G, Sellström U, de Wit C A, *et al.* Photolytic debromination of decabromodiphenyl ether (BDE 209) [J]. Environmental Science and Technology, 2004, **38**: 127 ~ 132.
- [19] Stapleton H M, Letcher R J, Baker J E. Debromination of polybrominated diphenyl ether congeners BDE 99 and BDE 183 in the intestinal tract of the common carp (*Cyprinus carpio*) [J]. Environmental Science and Technology, 2004, **38**: 1054 ~ 1061.
- [20] Rayne S, Wan P, Ikononou M. Photochemistry of major commercial polybrominated diphenyl ether flame retardant congener: 2, 2', 4, 4', 5, 5'-Hexabromodiphenyl ether (BDE153) [J]. Environment International, 2006, **32**: 575 ~ 585.
- [21] Piérard C, Budzinski H, Garrigues P. Grain-size distribution of polychlorobiphenyls in coastal sediments [J]. Environmental Science and Technology, 1996, **30**: 2776 ~ 2783.
- [22] Stapleton H M, Brazil B, Holbrook R D, *et al.* In vivo and in vitro debromination of decabromodiphenyl ether (BDE 209) by juvenile rainbow trout and common carp [J]. Environmental Science and Technology, 2006, **40**: 4653 ~ 4658.
- [23] Stapleton H M, Letcher R J, Li J, *et al.* Dietary accumulation and metabolism of polybrominated diphenyl ethers by juvenile carp (*Cyprinus carpio*) [J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2004, **23**: 1939 ~ 1946.
- [24] Stapleton H M, Alae M, Letcher R J, *et al.* Debromination of the flame retardant decabromodiphenyl ether by juvenile carp (*Cyprinus carpio*) following dietary exposure [J]. Environmental Science and Technology, 2004, **38**: 112 ~ 119.
- [25] 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.
- [26] Hardy M L. A comparison of the properties of the major commercial PBDE/PBDE product to those of major PBB and PCB products [J]. Chemosphere, 2002, **46**: 717 ~ 728.
- [27] Lam J C W, Kajiwarra N, Ramu K, *et al.* Assessment of polybrominated diphenyl ethers in eggs of waterbirds from South China [J]. Environmental Pollution, 2007, **148**: 258 ~ 267.