

典型电子垃圾拆解区大气中多溴联苯醚的污染

陈多宏^{1,3}, 李丽萍², 毕新慧¹, 赵金平^{1,3}, 盛国英¹, 傅家谟^{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, 广东省环境资源利用与保护重点实验室, 广州 510640;
2. 汕头大学医学院伤害预防研究中心, 汕头 515031; 3. 中国科学院研究生院, 北京 100049)

摘要: 分别在典型电子垃圾拆解区(E)和其上风向参考点(S)采集了大气颗粒相和气相样品, 以研究该区域大气中 PBDEs 的浓度水平、污染特征和气/固分布特点. 分析过程中运用气相色谱-质谱联用仪, 负化学离子源(GC-NCI-MS)检测了 11 种 PBDEs. 结果表明, 电子垃圾拆解造成了比较严重的 PBDEs 污染, 三溴~十溴联苯醚的浓度范围为 $51.1 \sim 2\,685 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ (平均值 $830 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$), 而对照区由于制衣行业的影响也造成了一定程度的 PBDEs 污染, 三溴~十溴联苯醚的浓度范围为 $1.00 \sim 98.9 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ (平均值 $28.7 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$). 在气/固分布的研究中发现, 不同的 PBDEs 在气相和颗粒相的分布比例相差很大, 从低溴至高溴 PBDEs 在气相中的比例呈降低趋势, 而在颗粒相中的比例呈上升趋势. 电子垃圾拆解区以五溴-联苯醚污染为主, 占 $\sum_{11}$ PBDEs 总量的 54.3%; 而十溴-联苯醚污染次之, 占 $\sum_{11}$ PBDEs 总量的 23.8%, 该污染特征进一步证实了该地区电子垃圾的来源, 不仅来自亚洲国家, 而且还来自欧美等国家.

关键词: 电子垃圾; 大气污染; PBDEs; 气/固分配

中图分类号: X501 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2008)08-2105-06

PBDEs Pollution in the Atmosphere of a Typical E-waste Dismantling Region

CHEN Duo-hong^{1,3}, LI Li-ping², BI Xin-hui¹, ZHAO Jin-ping^{1,3}, SHENG Guo-ying¹, FU Jia-mo¹

(1. Guangdong Key Laboratory of Environmental Protection and Resources Utilization, State Key Laboratory of Organic Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China; 2. Injury Preventive Research Center, Shantou University Medical College, Shantou 515031, China; 3. Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: The vapor-phase and particulate-phase samples were collected from the E-waste dismantling region (E) and a reference region (S), which is located in the upwind direction of the E and where the costume industry is developed. The aim was to acquire information about the concentrations, gas/particle partitioning and distribution of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs). 11 congeners PBDEs were detected with GC-NCI-MS. The results showed that E-waste dismantling has resulted in serious pollution and the PBDE concentrations (from tri- to deca-BDE) ranged from $51.1 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ to $2\,685 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ (mean: $830 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$), while the PBDE concentrations (from tri- to deca-BDE) in S were in the range of $1.00 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ to $98.9 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ (mean: $28.7 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$). The gas/particle partitioning of PBDEs exhibited a strong dependence on bromine number. Low-brominated PBDEs tend to have a higher concentration in the gas-phase while highly brominated PBDEs are mostly associated with the particulate. The mass distribution of PBDEs in E (including vapor-phase and particulate-phase) was dominated by penta-BDE, accounting for 54.3% of the total PBDEs, followed by deca-BDE, accounting for 23.8%. This pollution characters validated that the E-waste did not only come from Asia, but also from North America and Europe.

Key words: E-waste; atmosphere pollution; polybrominated diphenyl ethers (PBDEs); gas/particle partitioning

多溴联苯醚 (polybrominated diphenyl ethers, PBDEs) 是溴代阻燃剂类化合物, 常作为阻燃添加剂加入树脂、聚苯乙烯和聚氨酯泡沫等高分子合成材料中, 广泛地应用于塑料制品、纺织品、电路板和建筑材料等领域^[1]. 商业上主要使用的 3 种含溴阻燃剂是: 五溴-联苯醚 (penta-BDE), 八溴-联苯醚 (octa-BDE) 和十溴-联苯醚 (deca-BDE). 各国在不同的时期对这 3 种含溴阻燃剂的使用模式不同^[2]. 在关于 1999 年和 2001 年的市场需求量的报告中指出^[3], 多溴联苯醚主要在美国使用, 特别是五溴-联苯醚, 而亚洲和欧洲主要使用的是十溴-联苯醚. 近期, 因为低溴代 PBDEs 在环境中具有持久性和广泛存在于

环境^[4, 5]、生物机体^[6, 7]、甚至人体血液和乳汁中^[8, 9], 对生态健康构成潜在危害, 在欧盟^[10]、美国加利福尼亚和缅因州^[11]以及一些工厂自愿地放弃五溴-联苯醚和八溴-联苯醚的使用^[12]. 但是十溴-联苯醚并没有包含在这些禁令之中, 所以, 十溴-联苯醚在 2003 年的使用量上升到了 $56\,418 \text{ t}$ ^[13].

电子工业是世界上规模最大并且增长最快的生产行业, 伴随着这种生产的增长, 大量的废旧、遗弃

收稿日期: 2007-08-24; 修订日期: 2007-10-24

基金项目: 国家自然科学基金项目 (40590392)

作者简介: 陈多宏 (1979~), 男, 博士, 主要研究方向为环境污染及防治技术.

* 通讯联系人, E-mail: fujm@gig.ac.cn

的电子产品或是电子垃圾应运而生,成为了工业世界中的废物主流^[14].此外,大量的电子洋垃圾通过各种渠道被运送到发展中国家.据报道,大概 80% 的电子洋垃圾被运送到了亚洲,而这其中的 90% 又被运送到了中国^[15],所以中国成了全世界电子垃圾的处置地.

电子垃圾在被处理的过程中会释放大量的持久性有机污染物 (POPs),比如多环芳烃 (PAHs)、多氯联苯 (PCBs)、PBDEs 和二 英 (dioxin)^[16].在瑞典的电子垃圾回收工厂内,空气中检测出的 PBDEs 浓度要高于其它类型的工作环境^[17].中国电子垃圾的量非常巨大,然而,对于粗放式的电子垃圾处理过程,国内很少有关于 PBDEs 的污染报道.本研究的目的是:①调查研究位于中国南部的一个典型电子垃圾拆解区大气中 PBDEs 的污染程度和气/固分配情况;②与世界各地的污染特征进行对比,归纳总结出该电子垃圾污染区的污染特征.

1 材料与方法

1.1 材料与标准物质

PBDEs 标样 (Accustandards, USA) 包括混合标样 (BDE-28、BDE-47、BDE-66、BDE-85、BDE-99、BDE-100、BDE-138、BDE-153、BDE-154, IUPAC 命名) 和单个化合物标样 (BDE-183 和 BDE-209); ¹³C-PCB141, ¹³C-PCB208 (Cambridge Isotope Laboratories) 和 PCB209 (Accustandards, USA).

1.2 采样点

本研究分别在中国南方的一个电子垃圾拆解区 (E) 和其上风向的一个点 (作为参考点, S) 采集了气相和颗粒相大气样品. E 采样点位于一平房的房顶, 四周都是居民住宅区和回收电子垃圾的商业区. 这些电子垃圾通常在家庭作坊的后庭院进行处理, 处理过程包括: 回收塑料, 从电子设备中回收电子元器件、金属, 焚烧废弃的垃圾等. 在煤炉上熔化电路板来获取有用的零部件是最普遍使用的方法. 最后, 没有用处的材料或是被弃置, 倾倒入荒野, 或是被焚烧^[16].

参考点 S 位于 E 的西南方向, 距离约为 9 km. 在夏季该地区的盛行风向是西南或者是东南向, 所以, 在采样期间, S 处于 E 的上风向. 在 S 地区, 其主要的产业是服装生产. S 采样点位于该镇的一所中学 3 楼楼顶.

1.3 样品采集和前处理

于 2005-09-13 ~ 2005-09-21, 使用大流量采样器

在 2 个采样点同时采集大气样品, 使用石英滤膜 (QFFs, 20.3 cm × 25.4 cm, Whatman) 和聚氨酯泡沫 (polyurethane foam, 6.5 cm × 7.5 cm) 分别采集大气中颗粒相和气相样品, 采样流速约为 0.3 ~ 0.5 m³/min, 采样时间约为 16 h. 采集样品之前, 铝箔和石英滤膜放在马弗炉中焙烧 6 h 以去除有机污染物, 聚氨酯泡沫分别使用甲醇、丙酮和正己烷 (1:1, 体积比) 的混合溶剂各抽提 48 h. 样品采集之后, 石英滤膜使用焙烧过的铝箔包好, 并放置于密实袋中密封保存; 石英滤膜在采集样品前、后, 均放置于 25℃ 和 50% 湿度的恒温恒湿条件下平衡 24 h 后称重; 聚氨酯泡沫使用焙烧过的铝箔包裹后放入密实袋中密封. 样品拿回实验室之后均置于冰箱中 -20℃ 保存.

样品处理过程中, 颗粒相样品和气相样品分别加入 PCB209 和 ¹³C-PCB141 作为回收率指示物, 然后使用丙酮和正己烷的混合溶剂 (1:1, 体积比) 索氏抽提 72 h, 旋转蒸发后的浓缩液经过多层硅胶氧化铝层析柱净化, 用 70 mL 正己烷和二氯甲烷 (1:1, 体积比) 的混合溶剂冲淋出目标组分. 再旋转蒸发浓缩至约 1 mL, 转移至细胞瓶中, 在柔和的氮气下定容为 200 μL, 上仪器分析之前再加入定量的 ¹³C-PCB208 作内标.

1.4 仪器分析

分析仪器为岛津气相色谱-质谱联用仪 (Shimadzu GCMS-QP2010), 负化学电离 (NCI) 源. 使用 DB-XLB (30 m × 0.25 mm × 0.25 μm, J&W Scientific) 色谱柱对三溴 ~ 七溴联苯醚 (BDE-28, -47, -66, -85, -99, -100, -138, -153, -154 和 -183) 进行分析检测, 并使用内标法进行定量; 对 BDE-209 使用 CP-Sil 13 CB (12.5 m × 0.25 mm × 0.2 μm) 色谱柱进行检测, 并使用外标法进行定量. 仪器检测限定义为 3 倍信噪比 (即 S/N = 3), 当色谱峰的 S/N ≥ 3 时, 认为该色谱峰被检出. 以采样体积为 300 m³ 为基准, BDE-209 的检测限为 7.93 pg·m⁻³, 其他目标化合物的检测限为 0.08 ~ 0.33 pg·m⁻³.

1.5 质量保证和质量控制 (QA/QC)

使用 1.5 个聚氨酯泡沫采样做穿透实验, 结果表明, 后半块 PUF 中的 PBDEs 含量均小于前一个 PUF 中含量的 5%, 表明前 PUF 有效地捕捉了气相中的目标物. 野外空白中 (将空白滤膜和 PUF 分别在采样器中放置与采集样品时相同的时间) 仅检测到少量 PBDEs, 其含量小于样品中的 8%, 实验空白 (n = 3) 中的 PBDEs 含量均低于野外空白. 回收率指

示物 PCB209 和¹³C-PCB141 的回收率分别为:71% ~ 117% 和 79% ~ 115%, 分析结果均未经回收率校正.

2 结果与讨论

2.1 大气中 PBDEs 的浓度及其分布

表 1 给出了 2 个采样点大气中平均 PBDEs 浓度(颗粒相和气相之和). E 地区和 S 地区从三溴 ~ 十溴总的 PBDEs 平均浓度分别为:51.1 ~ 2 685 pg•m⁻³ (平均值 830 pg•m⁻³), 1.00 ~ 98.9 pg•m⁻³ (平均值 28.7 pg•m⁻³). 对于单个 PBDEs 的同类物来说, E 的浓度均远远高于 S, 其倍数关系约为 22(BDE-209) ~ 50(BDE-66)倍. 由此可见, 电子垃圾造成的 PBDEs 污染要远远高于制衣行业.

表 1 2 采样点大气中平均 PBDEs 浓度
Table 1 Average PBDE concentrations in the two regions

化合物	E		S		E/S
	平均值/pg•m ⁻³	标准方差	平均值/pg•m ⁻³	标准方差	
BDE-28	827	555	23.2	15.0	36
BDE-47	2 685	2 348	95.1	56.3	28
BDE-66	663	588	13.3	10.9	50
BDE-100	133	111	5.42	2.82	25
BDE-99	1 656	1 580	36.6	22.5	45
BDE-85	69.5	56.8	1.68	1.20	41
BDE-154	123	66.8	4.99	4.07	25
BDE-153	365	183	10.7	9.12	34
BDE-138	51.1	25.0	1.00	1.24	51
BDE-183	386	316	15.2	11.6	25
∑ ₁₀ PBDEs	6 959	5 224	217	114	32
BDE-209	2 174	1 645	98.9	111	22
∑ ₁₁ PBDEs	9 133	6 287	316	208	29

2.2 PBDEs 在颗粒相和气相中的分布

PBDEs 在气相/颗粒相中的分布将影响它们在大气中的沉降、降解、迁移及其归宿. 污染物在气相/颗粒相中的分布受化合物理化性质的影响. 图 1 为 2 采样点 9 种 PBDEs 系列物在气相和颗粒相的平均百分含量. BDE-138 因为在部分样品中的含量较低, BDE-209 仅在颗粒相检出, 所以没有列出气相和颗粒相的平均含量. 从图 1 中可以看出, 三溴联苯醚(BDE-28)几乎全部(94% ~ 96%)在气相, 而七溴联苯醚(BDE-183)大部分(> 93%)都在颗粒相中, 对于四溴 ~ 六溴联苯醚, 它们在颗粒相的比例分别为: 四溴联苯醚(BDE-47, -66), 16% ~ 29%; 五溴联苯醚(BDE-100, -99, -85), 35% ~ 81%; 六溴联苯醚(BDE-154, -153), 68% ~ 95%. 该气/固分布形式与 PBDEs

2 个采样点 PBDEs 的分布特征类似. 组成十溴-联苯醚的主要成分 BDE-209 在 2 个采样点的百分含量分别为 23.8%(E)和 31.3%(S), 在其余 10 种 PBDEs 中, BDE-47 和-99 是主要成分, 两者之和占 ∑₁₁ PBDEs 的 47.5%(E)和 43.0%(S), 组成五溴-联苯醚的 5 种主要同系物(BDE-47, -99, -100, -153, -154)占 ∑₁₁ PBDEs 总量的 54.3%(E)和 49.9%(S), 而八溴工业品的 2 种主要同系物(BDE-138 和 -183)仅占 ∑₁₁ PBDE 的 4.8%(E)和 5.3%(S). 该结果表明这 2 个地区主要含溴污染物为工业品五溴-联苯醚和十溴-联苯醚, 而八溴-联苯醚污染较少.

的理化性质相吻合, 与国内外的相关研究结果也相似^[18, 19]. 而 PBDEs 在 2 地区具体的气/固分布稍有差异, 可能主要由于 2 地区污染源和颗粒物浓度差异(S 地区颗粒物平均浓度为 169.40 μg•m⁻³, E 为 242.86 μg•m⁻³)而造成 PBDEs 系列物在气/固分配上的区别. 该结果表明, PBDEs 在颗粒相和气相均有一定程度的分布, 低溴代联苯醚主要分布在气相中, 而高溴代联苯醚主要分布在颗粒相中, 所以要比较准确、完整地评价 PBDEs 在大气中的污染情况, 必须把颗粒相和气相进行同时采集、监测, 否则会低估 PBDEs 在大气中的污染状况.

2.3 与世界各地 PBDEs 的对比

表 2 列出了北美洲、欧洲和亚洲部分地区大气环境中 PBDEs 的浓度以及 BDE-209 所占的体积分

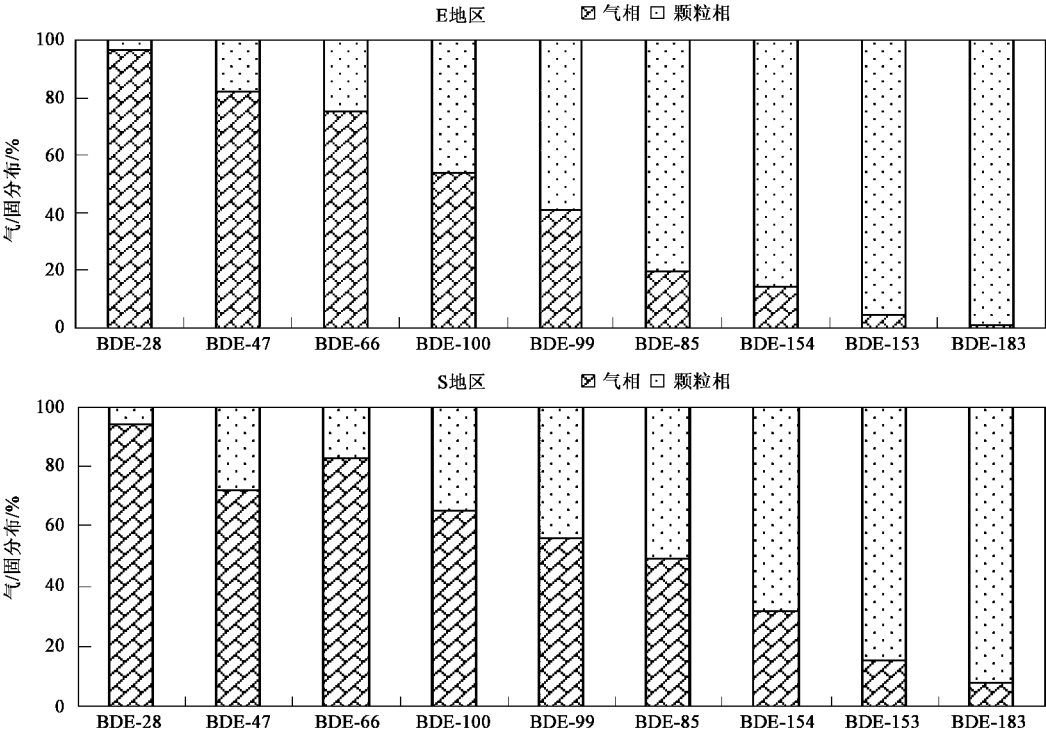


图 1 气/固百分比分配
Fig.1 Percentage of gas/particle partitioning

数.从表 2 可以看出,在 E 地区 BDE-47、-99 和-209 浓度均远高于世界其他非工业地区室外环境中的大气浓度^[4, 19, 20];同电子垃圾拆解区和电子工业区对比,在 E 地区五溴-联苯醚的主要成分 BDE-47 和 BDE-99 浓度高于瑞典固体垃圾焚烧场^[21]和广州工业区^[18],BDE-47 的浓度甚至高于瑞典一家电子垃圾拆解工厂大厅内的浓度^[17]. BDE-209 呈现与低溴 PBDEs 不同的形式,E 的浓度高于瑞典固体垃圾焚烧场的浓度,却低于广州工业区和瑞典的电子垃圾拆解大厅内的浓度^[17, 18].该 PBDEs 的污染分布形式反映出该地区的含溴阻燃剂的使用模式与其他地区有所差异.

S 地区的 PBDEs 浓度和大城市相比,BDE-47 和 BDE-99 浓度要高于芝加哥和广州城区,而 BDE-209 的浓度却与芝加哥的浓度相当,而低于广州城区的^[4, 18].这说明制衣工业中大量使用的海绵向大气中释放了大量的 PBDEs,特别是低溴的 PBDEs^[22],从而造成了该地区 PBDEs 浓度的升高.

从表 2 中还可以看出,BDE-209 占 PBDEs 总量的百分比在北美洲较小,约为 15%,仅有芝加哥(2002~2003)其百分比达到了 60.1%,这是因为从 1997~2003 年,BDE-209 的使用量增加的结果^[4, 19].

在欧洲和亚洲 BDE-209 的百分比较大,平均值超过了 50%.

E 和 S 这 2 个地区虽然位于亚洲,但是 BDE-209 所占比例却不同于亚洲其他地区. BDE-209 所占比例在 E(23.8%)和 S(31.3%)的值大于北美洲,而小于欧洲和亚洲的平均值.这主要与这 2 个地区特殊的工业生产有着密切关系.对于 E 地区主要以回收电子垃圾为主,BDE-209 的百分比值说明这些电子垃圾不仅来自中国等亚洲,还可能来自包括美国、瑞典等欧美国家.正是因为这些国家中 BDE-209 的比例各不相同,被运送到 E 地区回收处理过程中,BDE-209 的比例就变成各个国家综合的结果.这一结论也得到了相关研究报道的证实^[14, 23].总之,五溴、八溴和十溴工业品在不同的国家和地区有着不同的使用模式,电子垃圾反映的是过去含溴阻燃剂的使用比例,而不是如今的使用模式^[24].因此,电子垃圾的处理过程是把历史的 PBDEs 污染源释放到了现今的环境中去^[21].

而对于 S 地区,如前所述,主要因为该地区的制衣行业中使用了大量的海绵材料,进而释放出大量的低溴 PBDEs,特别是五溴 PBDEs^[22, 25],从而降低了 BDE-209 所占比例.

表 2 世界各地 PBDEs 浓度对比
Table 2 PBDEs concentrations comparison with the world

地点	PBDEs					类型	地区	年份	参考文献
	BDE-47 /pg·m ⁻³	BDE-99 /pg·m ⁻³	BDE-209 /pg·m ⁻³	∑PBDEs ¹⁾ /pg·m ⁻³	BDE-209 /%				
伊梅尔海港(苏必利尔湖)	2.90	2.10	<0.1	5.50	<1.82	边远地区	北美洲	1997~1999	[19]
斯特金(伊利湖)	3.80	2.80	<0.1	7.20	<1.39	郊区	北美洲	1997~1999	[19]
睡熊沙丘风景区(密歇根湖)	8.40	5.30	<0.1	15.0	<0.67	郊区	北美洲	1997~1999	[19]
芝加哥(美国)	33.0	16.0	0.30	52.0	0.58	城区	北美洲	1997~1999	[19]
芝加哥(美国)	17.4	7.39	60.1	100	60.1	城区	北美洲	2002~2003	[4]
密歇根州(美国)	6.18	5.14	<1.52	16.2	<9.37	边远地区	北美洲	2002~2003	[4]
印第安纳州(美国)	7.01	5.14	<2.21	19.0	<11.6	大学城	北美洲	2002~2003	[4]
阿肯色州(美国)	9.16	5.37	<9.02	30.0	<30.0	农业地区	北美洲	2002~2003	[4]
路易斯安那(美国)	6.91	2.99	<2.78	16.4	<16.9	边远地区	北美洲	2002~2003	[4]
电子垃圾回收工厂(瑞典)	1 200	2 600	36 000	64 000	56.5	拆解大厅	欧洲	2000	[17]
固体垃圾焚烧厂(瑞典)	2.10	1.90	10.4	16.7	62.3	固体垃圾处理厂	欧洲	2001~2002	[21]
某城郊区(瑞典)	1.70	0.90	6.50	10.0	65.0	城市背景区	欧洲	2001~2002	[21]
广州背景区(中国)	26.8	31.8	478	577	82.8	城市背景区	亚洲	2004-06	[18]
广州城区(中国)	26.9	17.5	264	346	76.1	城区	亚洲	2004-06	[18]
工业区-1(中国)	2 182	1 058	4 192	7 859	53.3	工业区	亚洲	2004-06	[18]
工业区-2(中国)	74.7	66.1	750	973	77.1	工业区	亚洲	2004-06	[18]
E 区(中国)	2 685	1 656	2 174	9 133	23.8	电子垃圾拆解区	亚洲	2005-09	本研究
S 区(中国)	95.1	36.6	98.9	316	31.3	制衣工业区	亚洲	2005-09	本研究

1) ∑PBDEs 为 PBDE 总和

3 结论

(1)由于大量的电子垃圾粗放式处理,造成 E 比较严重的 PBDEs 大气污染,其中主要是五溴-联苯醚和十溴-联苯醚的含溴阻燃剂。

(2)PBDEs 的气/固分配随着含溴数量的不同而表现出不同的分布比例。

(3)与世界其它地区对比,所研究的电子垃圾拆解区 BDE-209 占 PBDEs 的比例介于北美洲、亚洲和欧洲之间,由此进一步证实该地区的电子垃圾不仅来自中国等亚洲国家,也有大量的电子垃圾来自欧美等国家。

参考文献:

[1] Environmental health criteria 162: brominated diphenyl ethers [R]. World Health Organization, 1994.

[2] Hites R A. Polybrominated diphenyl ethers in the environment and in people: a meta-analysis of concentrations [J]. Environmental Science and Technology, 2004, **38**: 945-956.

[3] Total market demand [R]. Bromine Science and Environmental Forum. Brussels: Belgium, 2000.

[4] Hoh E, Hites R A. Brominated flame retardants in the atmosphere of

the East-Central United States [J]. Environmental Science and Technology 2005, **39**: 7794-7802.

[5] 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.

[6] den Steen E V, Covaci A, Jaspers V L B, *et al.* Accumulation, tissue-specific distribution and debromination of decabromodiphenyl ether (BDE-209) in European starlings (*Sturnus vulgaris*) [J]. Environmental Pollution, 2007, **148**: 648-653.

[7] 向彩红, 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.

[8] 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.

[9] Sjödin A, Patterson D G J, Bergman Å. A review on human exposure to brominated flame retardants-particularly polybrominated diphenyl ethers [J]. Environment International, 2003, **29**: 829-839.

[10] Cox P, Ethymiou P. Directive 2003/11/EC of the European parliament and of the council of February 6, 2003 amending for the 24th time Council Directive 76/669/EEC relating to restrictions on the marketing and use of certain dangerous substances and preparations (pentabromodiphenyl ether, octabromodiphenyl ether) [R]. Official Journal of the European Union, 2003.

- [11] States look to ban toxic flame retardants, PBDEs: AK first state to require labeling of GM fish [R]. June 10 National Caucus of Environmental Legislators, Bulletins March 4 and May 31, 2005.
- [12] Tullo A. Environment-Great Lakes to phase out flame retardants [J]. Chemical & Engineering News, 2003, **81**: 13.
- [13] Total market demand by region in 2001 in metric tons [R]. Bromine Science and Environmental Forum, Brussels: Belgium, 2005.
- [14] Puckett J, Byster L, Westervelt S, *et al.* Exporting harm: The high-tech trashing of Asia [R]. Basel Action Network, 2002.
- [15] Schwarzer S, de Bono A, Giuliani G, *et al.* E-waste, the hidden side of IT equipment's manufacturing and use [J]. Environment Alert Bulletin, 2005.
- [16] Deng W J, Louie P K K, Liu W K, *et al.* Atmospheric levels and cytotoxicity of PAHs and heavy metals in TSP and PM_{2.5} at an electronic waste recycling site in southeast China [J]. Atmospheric Environment, 2006, **40**: 6945-6955.
- [17] Sjödin A, Carlsson H, Thuresson K, *et al.* Flame retardants in indoor air at an electronics recycling plant and at other work environments [J]. Environmental Science and Technology, 2001, **35**: 448-454.
- [18] Chen L, Mai B, Bi X, *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.
- [19] Strandberg B, Dodder N G, Basu I, *et al.* Concentrations and spatial variations of polybrominated diphenyl ethers and other organohalogen compounds in Great Lakes air [J]. Environmental Science and Technology 2001, **35**: 1078-1083.
- [20] Lee R G M, Thomas G O, Jones K C. PBDEs in the Atmosphere of Three Locations in Western Europe [J]. Environmental Science and Technology 2004, **38**: 699-706.
- [21] Agrella C, ter Schure A F H, Svedera J, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers (PBDES) at a solid waste incineration plant I: atmospheric concentrations [J]. Atmospheric Environment, 2004, **38**: 5139-5148.
- [22] D'Silvia K, Fernandes A, Rose M. Brominated organic micropollutants-igniting the flame retardant issue [J]. Critical Reviews in Environmental Science and Technology, 2004, **34**: 141-207.
- [23] Qiu B, Peng L, Xu X J, *et al.* Medical investigation of e-waste demanufacturing industry in Guiyu Town [R]. In: International Conference on Electronic Waste and Extended Producer Responsibility in China, Beijing, 21st-22nd April, 2004. 74-83.
- [24] de Boer J, de Boer K, Boon J P. Polybrominated Biphenyls and Diphenylethers [J]. The Handbook of Environmental Chemistry: Springer-Verlag: Berlin, Heidelberg 2000, **3**: 61-95.
- [25] Hale R C, Guardia M J L, Harvey E, *et al.* Potential role of fire retardant-treated polyurethane foam as a source of brominated diphenyl ethers to the US environment [J]. Chemosphere, 2002, **46**: 729-735.