

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第37卷 第11期

Vol.37 No.11

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

承德市大气污染源排放清单及典型行业对 PM _{2.5} 的影响	陈国磊,周颖,程水源,杨孝文,王晓琦 (4069)
浙江省木制品行业挥发性有机物排放特征及排放系数	姚轶,王浙明,何志桥,徐志荣,顾震宇 (4080)
山西省人为源 VOCs 排放清单及其对臭氧生成贡献	闫雨龙,彭林 (4086)
某化工区典型高污染过程 VOCs 污染特征及来源解析	高松,崔虎雄,伏晴艳,高爽,田新愿,方方,衣学文 (4094)
加油 VOCs 排放因子测试方法研究与应用	黄玉虎,常耀卿,任碧琪,秦建平,胡玮,刘明宇 (4103)
北京市生活垃圾填埋场氨排放特征研究	崔彤,李金香,杨妍研,程刚 (4110)
西安市人为源大气氨排放清单及特征	苏航,闫东杰,黄学敏,宋文斌,王惠琴,宋雪娟 (4117)
佛山市冬夏季非甲烷烃污染特征研究	周雪明,项萍,段菁春,贺克斌,马永亮,邓思欣,司徒淑婷,谭吉华 (4124)
天津市道路环境大气颗粒物水溶性无机离子分析	赵梦雪,吴琳,方小珍,杨志文,李凤华,毛洪钧 (4133)
戴云山国家级自然保护区大气氮沉降特点	袁磊,李文周,陈文伟,张金波,蔡祖聪 (4142)
青岛近海冬季大气生物气溶胶中微生物活性研究	孟祥斌,李孟哲,李鸿涛,高冬梅,祁建华 (4147)
玉米秸秆烟尘中正构脂肪酸的分子与碳同位素组成	刘刚,孙丽娜,徐慧,李久海,李中平,李立武 (4156)
极低风速条件下水-气界面甲烷气体传输速率分析	张成,吕新彪,龙丽,张军伟,穆晓辉,李迎晨,王圣瑞,张文丽,肖尚斌 (4162)
典型水库型湖泊中 CDOM 吸收及荧光光谱变化特征: 基于沿岸生态系统分析	陈雪霜,江韬,卢松,白薇扬,张成,王定勇,魏世强 (4168)
西苕溪支流河口水体营养盐的特征及源贡献分析	陈诗文,袁旭音,金晶,李正阳,许海燕 (4179)
周村水库主库区热分层初期氮素降低的驱动因子分析	张春华,黄廷林,方开凯,周石磊,夏超 (4187)
太湖湖泛易发区沉积物中有机磷形态分布特征	董丹萍,章婷曦,张丁予,王巧云,李德芳,王国祥 (4194)
多重扰动对湖泊内源磷迁移转化的影响	蔡顺智,李大鹏,王忍,刘焱见,徐垚,于胜楠,黄勇 (4203)
丹江口库区覆膜耕作土壤氮素淋失随夏玉米生长期的变化	王伟,于兴修,汉强,刘航,徐苗苗,任瑞,张家鹏 (4212)
营养盐恢复对氮磷饥饿铜绿微囊藻生长的影响	岳冬梅,李洁,肖琳 (4220)
氯灭活地下水源中 3 种优势真菌的效能与机制	文刚,朱红,黄廷林,赵建超,任崑,徐向前 (4228)
净水工艺对饮用水中微生物多重耐药性的影响与分析	马晓琳,陆洋,王钰,侯誉,白晓慧 (4235)
单过硫酸氢钾复合粉在饮用水消毒过程中的副产物生成特性及遗传毒性变化	敖秀玮,李豪杰,刘文君,余京儒 (4241)
三维有序介孔 Co ₃ O ₄ 非均相活化单过硫酸氢钾降解罗丹明 B	冯善方,邓思萍,杜嘉雯,马晓雁,卢遇安,高乃云,邓靖 (4247)
调控絮体形态强化电絮凝减缓膜污染	赵凯,杨春风,孙境求,李静,胡承志 (4255)
初始 pH 值对序批式 CANON 工艺脱氮效果和 N ₂ O 释放的影响	付昆明,王会芳,苏雪莹,周厚田 (4261)
3DBER-S-Fe 同步脱氮除磷及去除邻苯二甲酸酯的工艺特性	张娅,郝瑞霞,徐鹏程,徐忠强 (4268)
基于反硝化脱氮的硫铁复合填料除磷机制	范军辉,郝瑞霞,李萌,朱晚霞,万京京 (4275)
基于 ABR-MBR 组合工艺优化反硝化除磷性能的研究	程朝阳,赵诗惠,吕亮,吴鹏,沈耀良 (4282)
中常温变化对 PN-ANAMMOX 联合工艺脱氮效果的影响	袁砚,朱亮 (4289)
生物活性炭对不同 C/N 比废水同步硝化反硝化脱氮效果的影响	崔延瑞,邱鑫,张庆荣,王琦,吴青,孙剑辉 (4296)
ANAMMOX 菌利用零价铁还原硝酸盐脱氮研究	周健,完颜德卿,黄勇,刘忻,袁怡,李祥,姚鹏程,杨朋兵,薛鹏程 (4302)
间歇曝气 SBR 与传统 SBR 处理养猪沼液的比较研究	董宝刚,宋小燕,刘锐,川岸朋树,张永明,陈吕军 (4309)
应用解蛋白菌生物预水解剩余污泥	何晶晶,王颖,胡洁,吕凡,邵立明 (4317)
应用环境多介质逸度模型研究废旧电器拆解区多溴联苯醚的迁移及归趋	薛南冬,陈宣宇,杨兵,秦普丰,龙雨 (4326)
南宁市多环境介质中多环芳烃分布特征	苗迎,孔祥胜 (4333)
杭州城区室内灰尘中多溴联苯醚的含量及人体暴露水平	金漫彤,滕丹丹,郑艳霞,胡张璇,沈学优,金赞芳 (4341)
应用线性自由能关系估算药用活性化合物的生物碳质-水吸附系数	王佳怡,毕二平 (4349)
表流湿地细菌群落结构特征	魏佳明,崔丽娟,李伟,雷茵茹,于菁菁,秦鹏,穆泳林,梁钊瑞 (4357)
城市污水中硝化菌群落结构与性能分析	于莉芳,杜倩倩,傅学焘,张茹,李文江,彭党聪 (4366)
DNA 和 cDNA 水平对比研究施肥对稻田土壤细菌多样性的影响	王聪,吴讷,侯海军,汤亚芳,沈健林,秦红灵 (4372)
培养条件下双酚 A 对稻田土壤微生物群落特征的影响	刘畅,黄雅丹,张莹,靳振江,梁月明,宋昂,王腾,郭佳怡,李强 (4380)
1 株兼具好、厌氧汞甲基化能力细菌的分离鉴定	陶兰兰,向玉萍,王定勇,黄曼琳,申鸿 (4389)
北京地区菜田土壤抗生素抗性基因的分布特征	张兰河,王佳佳,哈雪姣,邱孟超,高敏,仇天雷,王旭明 (4395)
梅花鹿养殖场抗生素抗性基因分布特征	黄福义,安新丽,陈青林,任红云,苏建强 (4402)
几种高硅质矿物细颗粒的 A549 细胞毒性对比	霍婷婷,董发勤,邓建军,张青碧,贺小春,孙东平 (4410)
添加复合吸附剂对土壤吸附菲和 Cr(VI) 的影响	李文斌,孟昭福,吴琼,许绍娥,刘泽 (4419)
生物炭对西北黄土吸附壬基酚的影响	张振国,蒋煜峰,慕仲锋,孙航,周琦,展惠英 (4428)
集雨种植下不同沟垄比对土壤呼吸的影响及其对水热因子的响应	王昌江,施成晓,冯帆,陈婷,张磊,吕晓康,王伟,廖允成 (4437)
秸秆还田与化肥减量配施对稻-菜轮作下土壤养分及酶活性的影响	黄容,高明,万毅林,田冬,陶睿,王芳丽 (4446)
《环境科学》征稿简则 (4161)	《环境科学》征订启事 (4365)
信息 (4123,4132,4409)	

杭州城区室内灰尘中多溴联苯醚的含量及人体暴露水平

金漫彤¹, 滕丹丹¹, 郑艳霞¹, 胡张璇¹, 沈学优^{2,3}, 金赞芳^{1*}

(1. 浙江工业大学环境学院, 杭州 310014; 2. 浙江大学环境与资源学院, 杭州 310058; 3. 浙江省有机污染过程与控制重点实验室, 杭州 310058)

摘要: 为了评估杭州城区室内灰尘中多溴联苯醚(PBDEs)污染程度, 2013 年 3~8 月, 在杭州城区随机采集 19 个办公室、家庭和学生宿舍的室内灰尘样品。用 GC-ECD 定量分析了样品中 14 种 PBDEs 同系物的含量水平、同系物分布和可能的影响因素, 并估算了成年人和儿童通过灰尘摄入对 PBDEs 的暴露水平。结果表明, 办公室 $\sum_{14}$ PBDEs 的平均值 $9.28 \times 10^2 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 中值为 $1.03 \times 10^3 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$; 家庭 $\sum_{14}$ PBDEs 的平均值 $7.83 \times 10^2 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 中值为 $9.11 \times 10^2 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$; 学生宿舍 $\sum_{14}$ PBDEs 的平均值 $4.07 \times 10^2 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 中值为 $4.03 \times 10^2 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 办公室的污染水平高于居住环境。BDE-209 是贡献值最大的单体, 其贡献值为 75.48%, 其次分别是 BDE-190、BDE-154 和 BDE-71。成年人和儿童通过灰尘摄入的 PBDEs 暴露水平分别为 $13.12 \sim 32.63 \text{ ng} \cdot \text{d}^{-1}$ 和 $32.40 \sim 54.54 \text{ ng} \cdot \text{d}^{-1}$, 灰尘中儿童的 PBDEs 人体暴露量高于成人的人体暴露量, 主要是因为儿童灰尘摄入量要高于成人。分析得出, 从室内灰尘摄入的 PBDEs 存在健康隐患, 儿童潜在危害最大。

关键词: 室内灰尘; 多溴联苯醚; 含量; 灰尘摄入; 暴露水平

中图分类号: X131; X820.4 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2016)11-4341-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.201604121

PBDEs Levels in House Dust and Human Exposure to PBDEs via Dust Ingestion in Hangzhou

JIN Man-tong¹, TENG Dan-dan¹, ZHENG Yan-xia¹, HU Zhang-xuan¹, SHEN Xue-you^{2,3}, JIN Zan-fang^{1*}

(1. College of Environment, Zhejiang University of Technology, Hangzhou 310014, China; 2. College of Environmental and Resource Sciences, Zhejiang University, Hangzhou 310058, China; 3. Zhejiang Provincial Key Laboratory of Organic Pollution and Control, Hangzhou 310058, China)

Abstract: In order to evaluate the pollution degree of the dust in Hangzhou City, the indoor dust samples of 19 offices, families and students' dormitories were collected from August to March in 2013 at Hangzhou for evaluating the pollution level of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs), to analyze concentrations of 14 PBDEs congeners and congener distribution as well as the possible influencing factors, and to estimate the PBDEs exposure levels of adults and children through the dust intake. The results showed that the average $\sum_{14}$ PBDEs of office was $9.28 \times 10^2 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, and the median was $1.03 \times 10^3 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$; the average $\sum_{14}$ PBDEs of family was $7.83 \times 10^2 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, and the median was $9.11 \times 10^2 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$; the average $\sum_{14}$ PBDEs of student dormitory was $4.07 \times 10^2 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, and the median was $4.03 \times 10^2 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$. The pollution level of the office was higher than that of the living environment. BDE-209 was the largest monomer, and its contribution was 75.48%, followed by BDE-190, BDE-154 and BDE-71. PBDEs exposure levels of adults and children by dust intake were $13.12 \sim 32.63 \text{ ng} \cdot \text{d}^{-1}$ and $32.40 \sim 54.54 \text{ ng} \cdot \text{d}^{-1}$, respectively. Children's PBDEs exposure in the dust was higher than that of the adults, mainly because the average dust intake of children was higher than that of adults. The analysis showed that the PBDEs from indoor dust intake was a potential health hazard, and the biggest potential harm to children.

Key words: indoor dust; polybrominated diphenyl ethers; content; dust intake; exposure level

多溴联苯醚 (polybrominated diphenyl ethers, PBDEs) 是一类添加型溴系阻燃剂, 由于其优异的阻燃性能以及对材料性能影响小的特点, 广泛地应用于各类消费产品中, 如电子电器产品的塑料外壳和电路板、油漆、纺织品和聚氨酯海绵 (如沙发、床垫、地毯等)^[1] 等。商业上主要使用 3 种含溴阻燃剂: 五溴-联苯醚 (Penta-BDEs)、八溴-联苯醚 (Octa-BDEs) 和十溴-联苯醚 (Deca-BDEs)^[2]。PBDEs 具有持久性有机污染物的特性: 高度亲脂性、持久性、

生物蓄积性, 可随着食物链在生物体和人体内富集^[3], 对生物具有一定的毒作用, 主要表现为神经毒性、肝脏毒性、甲状腺毒性及一定的致癌性^[4], 因此, 2004 年 8 月起, Penta-BDEs 和 Octa-BDEs 在

收稿日期: 2016-04-16; 修订日期: 2016-06-29

基金项目: 国家重点研发计划项目 (2016YFC0207103); 浙江省自然科学基金项目 (LY16B070012); 浙江工业大学环境科学与工程省重中之重学科开放基金项目

作者简介: 金漫彤 (1967~), 女, 博士, 教授, 主要研究方向为污染控制与资源化, E-mail: jmtking@zjut.edu.cn

* 通讯联系人, E-mail: jinzanfang@zjut.edu.cn

欧洲市场和美国陆续被禁止使用,2008 年和 2013 年欧盟和美国分别开始禁止 Deca-BDEs 使用^[5]. 我国相关管理方法已限制使用 Penta-BDEs 和 Octa-BDEs,但 Deca-BDEs 仍然在继续使用,而且过去 20 年进入市场含五溴、八溴联苯醚的产品仍未淘汰还在使用,环境中 PBDEs 污染现状仍不容乐观^[6].

2008 年, Lorber^[7] 提出人们 PBDEs 暴露量的 80% 以上来源于室内灰尘,尤其是儿童,且人们在室内的时间越来越长,一生中约 80% 的时间都在室内度过. Fischer 等^[8] 和 Lunder 等^[9] 发现在美国家庭中,小孩体内的 PBDEs 含量分别是他们父母体内的 PBDEs 含量的 2~5 倍和 2.8 倍,而室内灰尘被认为是婴幼儿暴露于 PBDEs 的最主要途径. Johnson 等^[10] 也指出人体血液中 PBDEs 的含量和室内灰尘中 PBDEs 的浓度之间存在密切的关系. 因此测定室内环境灰尘中 PBDEs 的含量以及人体暴露量非常重要. 目前这方面的研究工作主要在欧洲和北美地区展开^[11~13], 中国关于室内灰尘中 PBDEs 污染情况的报道起步的较晚^[14,15]. 本文以杭州城区办公室和居住环境(家庭和学生宿舍)为研究对象,实地采集室内环境中灰尘样品来分析杭州市室内灰尘中 PBDEs 的污染特征及人体暴露量,通过完善杭州市室内环境中 PBDEs 相关数据,以期有效控制室内 PBDEs 污染提供科学依据,也为人体风险健康评估提供理论依据.

1 材料与方法

1.1 实验仪器与试剂

实验仪器: Agilent 6890N 气相色谱仪(美国安捷伦公司); RE-52AA 旋转蒸发仪(上海亚荣生化仪厂); MTN-2800W 型氮气浓缩装置(天津奥特赛恩斯仪器有限公司); SHB-III 循环水式多用真空泵(河南省太康科教器材厂); SX3-2-13 节能纤维电阻炉(杭州卓驰仪器有限公司); TC-15 型恒温加热套(海宁华兴仪器厂); 层析柱(长度 36 cm, 内径 1.5 cm). PBDEs 标准样品: 含有以下 14 种同类物, BDE-17、BDE-28、BDE-47、BDE-66、BDE-71、BDE-85、BDE-99、BDE-100、BDE-138、BDE-153、BDE-154、BDE-183、BDE-190、BDE-209, 浓度为 5 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 其中 BDE-209 浓度为 25 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ (美国 Accustandards 公司).

试剂及耗材: 分析纯正己烷(江苏永华精细化学品有限公司)、色谱纯正己烷(天津市四友精细化工品有限公司)、分析纯二氯甲烷(华东杭州双林化

工试剂厂)、分析纯丙酮(杭州化学试剂有限公司); 200~300 目分析纯硅胶(青岛海洋化工厂分厂)、分析纯无水 Na_2SO_4 (上海试四赫维化工有限公司); 玻璃纤维滤膜 GF(美国 Staplex Air Sampler Division, GF90 mm).

1.2 样品采集与保存

2013 年 3~8 月, 采用表面擦拭法采集杭州城区典型室内(办公室、家庭和学生宿舍)灰尘样品. 用干净的毛刷将灰尘扫至干净的锡箔纸上, 包裹好放入样品袋中密封保存, 及时带回实验室置于冰箱中保存, 待测. 样品采集量 0.1~1.0 g 不等, 经调查各采样点灰尘沉降时间差不超过 3 d, 灰尘样品信息详见表 1.

样品前处理之前, 将采集的灰尘过 100 目不锈钢筛, 去除灰尘样品中大颗粒的沙石、毛发等物.

为了避免发生交叉污染, 每次采样后的毛刷、不锈钢筛均需用超声清洗干净后用去离子水冲洗, 烘干.

1.3 样品前处理

索氏提取: 将待测灰尘样品用玻璃纤维滤膜包裹好放入索氏提取器中, 用 200 mL 正己烷-丙酮(1:1, 体积比)混合液索氏提取 24 h, 提取温度控制在 55℃ 左右, 提取过程中用铝箔纸包裹, 避免 BDE-209 见光分解.

多层硅胶柱净化: 采用湿式填充法, 用硅胶填充层析柱, 从下至上分别填加 1 g 活性硅胶^[16]、2 g 酸性硅胶^[17]、1 g 活性硅胶、2 g 酸性硅胶、2 g 活性硅胶、2 g 无水硫酸钠, 每填一层均需用洗耳球将其敲至平整以确保样品能有效分离, 避免净化过程中出现断层现象. 填充完成后, 将浓缩过的样品加入硅胶柱中, 用 120 mL 正己烷-二氯甲烷(1:1, 体积比)混合液淋洗硅胶柱, 接收并保留洗脱液.

氮吹定容: 将保留的洗脱液旋转蒸发浓缩至 1~2 mL 后, 用色谱纯正己烷置换两次, 浓缩至 1~2 mL. 移至进样瓶, 用柔和的 N_2 气流吹至近干, 加入色谱纯正己烷定容至 0.2 mL, 待仪器分析.

1.4 仪器分析

本研究选择 Agilent 6890N 气相色谱分析仪(配制 7683B 自动进样器和 ECD 为检测器以及 15 m $\times$ 0.25 mm $\times$ 0.10 μm BD-5 毛细色谱柱)进行样品分析. 因 PBDEs 样品含量低, 故采用不分流进样. 但为了改善不分流进样的样品峰易变宽、溶剂峰过高等问题, 采用程序升温, 设置吹扫流量, 同时考虑到 BDE-209 在高温下易降解, 故按照如下条件进行样

表 1 采集灰尘样品地点信息
Table 1 Information of sampling sites of dust

采样地点 ¹⁾	灰尘采集地方	灰尘质量/g	采集地点信息
O _{1a}	打印机旁,电脑主机旁	0.249	台式电脑 5 台,手提电脑 4 台,打印机 2 台,复印机 1 台,立式空调 1 台,使用时间 10 h
O _{1b}	电脑机箱内	0.201	
O ₂	空调上,仪器旁	0.518	仪器 5 台,立式空调 1 台,使用时间 24 h
O ₃	电脑主机旁	0.426	台式电脑 40 台,立式空调 1 台,使用时间 14 h
O _{4a}	窗户旁,办公桌上	0.609	通风时间 8 h,12 台电脑,使用时间 10 h
O _{4b}	电脑机箱内	0.318	
O ₅	办公桌上	0.114	12 台电脑,使用时间 6 h
O ₆	电视上	0.293	电脑 6 台,空调 1 台,电视 1 台,使用时间 8 h
O ₇	电脑上	0.100	电脑 10 台,空调 1 台,使用时间 8 h
O ₈	地面	0.160	电脑 3 台,打印机 1 台,使用时间 10 h
O ₉	电脑主机旁	0.846	电脑 15 台,空调 1 台,使用时间 10 h
O ₁₀	电脑主机旁	0.246	40 台电脑,1 台立式空调,使用时间 12 h
O ₁₁	柜子上	0.108	立式空调 1 台,使用时间 24 h
H ₁	地面	0.416	电脑 1 台,空调 1 台,使用时间 2 h
H _{2a}	窗框	0.128	空调 1 台,使用时间 8 h,电脑 2 台,使用时间 2 h
H _{2b}	电脑机箱内	0.162	
H ₃	地面	0.191	空调 1 台,电视机 1 台,使用时间 8 h
H ₄	窗框	0.104	电脑 3 台,电视 1 台,空调 1 台
D ₁	柜子上	0.979	电脑 4 台,使用时间 2 h
D ₂	柜子上	0.114	电脑 4 台,使用时间 8 h
D _{3a}	柜子上	0.946	电脑 3 台,使用时间 2 h
D _{3b}	电脑机箱内	0.134	
D ₄	柜子上	0.903	空调 1 台,电脑 2 台,使用时间 8 h

1) 其中 O 代表办公室,H 代表家庭,D 代表宿舍;a,b 表示同一采样地点的不同灰尘采集点

品仪器分析:

进样口温度 270℃,检测器温度 320℃,载气为高纯氮气,进样量为 1 μL. 升温程序: 初始温度 100℃,保持 1 min,然后以 25 ℃·min⁻¹升温至 200℃,再以 5 ℃·min⁻¹升温至 280℃,最后以 15 ℃·min⁻¹升温至 315℃,保持 4 min. 载气流速 2.4 mL·min⁻¹.

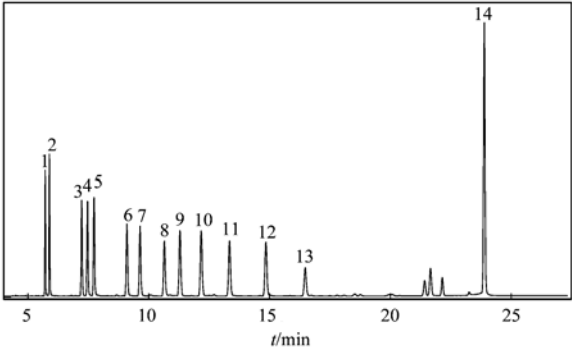
PBDEs 标准样品的气相色谱见图 1,各 PBDEs 同系物的标准曲线的 R² 值均在 0.999 以上.

1.5 质量控制与保证

仪器检测限定义为 3 倍信噪比,PBDEs 各单体的检测限分别为 0.076、0.098、0.118、0.154、0.232、0.220、0.387、0.641、0.361、0.574、0.997、1.719、0.919 和 0.208 μg·L⁻¹.

为避免实验过程中产生可能性的污染,每检测 5 个样品,设置一个空白样. 在空白样品中并未检测出 PBDEs 的存在.

为确保仪器分析的精确性及可靠性,每次检测样品前,用与样品中 PBDEs 相近浓度的标准样品溶液对标准曲线进行校正,若相对标准误差在 20% 以内,则认为结果是可靠的,反之,则对仪器进行重新



1. BDE-17; 2. BDE-28; 3. BDE-71; 4. BDE-47; 5. BDE-66;
6. BDE-100; 7. BDE-99; 8. BDE-85; 9. BDE-154; 10. BDE-153;
11. BDE-138; 12. BDE-183; 13. BDE-190; 14. BDE-209

图 1 200 g·L⁻¹ PBDEs 标准样品气相色谱图

Fig. 1 Gas chromatogram of the standard sample of 200 g·L⁻¹ PBDEs

调试,待仪器稳定后,重新建立标准曲线.

为验证实验方法的可行性,在净化过的玻璃纤维滤膜上分别添加 50、100 和 200 μg·L⁻¹ 的 PBDEs 混合标准溶液 200 μL,按样品实验步骤进行检测,根据回收率计算公式,求得回收率,见表 2.

表 2 标准样品 GF 的回收率/%

Table 2 Recovery of standard samples in GF/%

BDE	PBDEs 浓度/ $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$			平均值	相对标准偏差
	50	100	200		
BDE-17	89.80	101.62	89.58	93.67	6.89
BDE-28	93.17	99.20	98.13	96.84	3.22
BDE-47	93.39	96.87	85.23	91.83	5.97
BDE-66	98.03	95.20	100.18	97.80	2.50
BDE-71	100.25	102.12	90.00	97.46	6.53
BDE-85	82.48	107.21	96.32	95.34	12.39
BDE-99	104.70	85.47	87.44	92.54	10.58
BDE-100	84.27	89.83	94.16	89.42	4.96
BDE-138	91.58	100.68	94.87	95.71	4.61
BDE-153	95.34	95.77	95.70	95.61	0.23
BDE-154	99.44	93.04	96.17	96.22	3.20
BDE-183	107.53	97.19	86.55	97.09	10.49
BDE-190	90.73	96.63	100.15	95.83	4.76
BDE-209	87.92	102.28	93.95	94.71	7.21
平均值	89.80	101.62	89.58	93.67	6.89

2 结果与讨论

2.1 灰尘中 PBDEs 的含量水平

本研究检测了办公室、家庭和学生宿舍室内灰尘样品中 14 种 PBDEs 同系物的含量,14 种同系物在大部分的样品中被检测出来,但其含量水平存在一定的差异性详见表 3. 办公室、家庭和学生宿舍灰尘中 $\sum_{14}$ PBDEs 含量的平均值分别为 9.28×10^2 、 7.83×10^2 和 $4.07 \times 10^2 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$,中值分别为 1.03×10^3 、 9.11×10^2 和 $4.03 \times 10^2 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$. 办公室灰尘 PBDEs 含量的平均值是家庭 1.19 倍,学生宿舍的 2.28 倍,办公室灰尘中 PBDEs 污染程度明显高于居住环境. 这可能是因为所采集的办公室样品

中,含有的电脑、打印机等设备多于居住环境,而这些设备往往需要添加阻燃剂,这些阻燃剂可以通过挥发的方式从这些物品中释放出来,预示着在办公室工作的人群可能面临着较为严重的 PBDEs 暴露风险. 图 2 是各采样点的浓度,办公室灰尘中 PBDEs 浓度的最大值是最小值的 3.85 倍;而家庭和宿舍分别是 1.69 倍和 1.60 倍,办公室的浓度差异更为明显,这可能因为不同办公室样品间的装修情况,PBDEs 的排放源的数量(电脑等电器的使用数量差别很大)、产品种类、通风时间差别比较大,不同办公室样品间采集点距离释放源的距离不同. 办公人员长期暴露在 PBDEs 污染下,会对身体产生不良影响,对办公场所 PBDEs 的研究应给予重视.

表 3 不同室内灰尘中 PBDEs 的含量水平¹⁾/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$

Table 3 Summary of PBDE concentrations in different indoor dusts/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$

单体	平均值			中位值			范围		
	办公室	家庭	宿舍	办公室	家庭	宿舍	办公室($n=11$)	家庭($n=4$)	宿舍($n=4$)
BDE-17	7.53	16.8	6.77	8.65	9.40	8.02	1.27~12.7	5.80~35.1	3.91~8.39
BDE-28	12.8	14.8	24.0	10.3	14.0	16.0	2.37~40.0	8.50~21.9	7.87~56.2
BDE-47	9.74	15.6	12.3	8.47	10.8	8.72	2.02~20.1	6.40~34.3	4.83~26.9
BDE-66	12.5	12.3	16.2	11.8	13.4	13.0	2.39~5.3	6.90~15.58	11.50~27.4
BDE-71	16.6	18.0	21.0	16.6	17.1	16.6	2.76~36.1	9.00~28.8	15.00~35.8
BDE-85	11.5	15.9	12.7	11.1	9.90	11.3	1.69~5.2	4.40~39.3	10.00~18.1
BDE-99	15.5	18.0	19.9	15.2	17.1	18.6	3.59~3.7	5.80~32.1	17.20~25.4
BDE-100	12.3	10.8	12.2	12.2	9.91	11.3	3.89~22.5	4.30~19.1	7.44~18.8
BDE-138	12.0	9.44	21.9	11.7	10.3	18.0	3.35~23.8	3.70~13.5	12.60~39.0
BDE-153	13.9	12.2	21.1	12.2	11.8	20.5	2.86~42.3	4.30~21.0	15.30~28.2
BDE-154	22.1	14.8	28.5	15.2	12.3	31.1	6.65~77.6	4.60~30.0	12.00~39.8
BDE-183	19.8	10.2	17.9	15.7	12.6	14.9	3.95~62.5	3.30~14.6	12.20~29.7
BDE-190	41.9	13.5	13.6	17.9	15.0	12.7	3.23~ 1.25×10^2	4.50~19.6	10.30~18.6
BDE-209	7.39×10^2	6.11×10^2	1.81×10^2	7.96×10^2	6.26×10^2	1.86×10^2	$2.52 \times 10^2 \sim 1.21 \times 10^3$	$4.37 \times 10^2 \sim 7.55 \times 10^2$	$92.1 \sim 2.59 \times 10^2$
$\sum_{13}$ PBDEs	2.08×10^2	1.82×10^2	2.28×10^2	1.56×10^2	1.79×10^2	2.22×10^2	$43.9 \sim 4.43 \times 10^2$	$71.5 \sim 2.59 \times 10^2$	$1.93 \times 10^2 \sim 2.68 \times 10^2$
$\sum_{14}$ PBDEs	9.28×10^2	7.83×10^2	4.07×10^2	1.03×10^3	9.11×10^2	4.03×10^2	$3.90 \times 10^2 \sim 1.50 \times 10^3$	$6.00 \times 10^2 \sim 1.01 \times 10^3$	$3.16 \times 10^2 \sim 5.07 \times 10^2$

1) $\sum_{13}$ PBDEs 指 17,28,47,66,71,85,99,100,138,153,154,183,190 之和; $\sum_{14}$ PBDEs 指 17,28,47,66,71,85,99,100,138,153,154,183,190 与 209 之和

杭州的居住环境 PBDEs 污染情况明显低于美国 and 加拿大等^[18] 北美国家, 高于丹麦^[19] 和比利时^[20] 等欧洲国家, 和日本^[21] 等亚洲国家相当. 而且亚洲国家的 PBDEs 以 BDE-209 为主, 占比均达到了 80% 以上, 这与亚洲国家以使用 Deca-BDEs 为主的政策有关. 而欧美国家被检测出来的 PBDEs 主要是 BDE-47 和 BDE-99 为代表的 Penta-BDEs, 这与以前欧美国家大量使用 Penta-BDEs 的事实相一致. 虽然欧美国家从 2004 年起就已经逐步禁止使用 Penta-BDEs 和 Octa-BDEs, 但由于 PBDEs 的持久性和富集性, 同时上世纪末生产的电子电器还未淘汰完全, 所以目前环境中的 PBDEs 不减反增. 杭州办公室的 PBDEs 污染程度略低于欧美^[22,23] 国家, 与尼日利亚^[24] 相当, 高于澳大利亚^[25]. 但是除了英国, 与其他国家的差距不是很明显, 这是因为为了达到消防安全要求, 英国 95% 的装修材料都添加了阻燃剂. 而且所对比的国家办公室污染程度均高于居住环境. 与国内的一线城市北上广深相比^[26~29], 杭州以旅游业为主, 汽车制造, 电子拆解等工厂少, 所以室内灰尘中 PBDEs 的污染程度略低. 不过杭州市的汽车保有量较大, 相比较一些二三线城市, 杭州市的室内灰尘中 PBDEs 的污染程度较高.

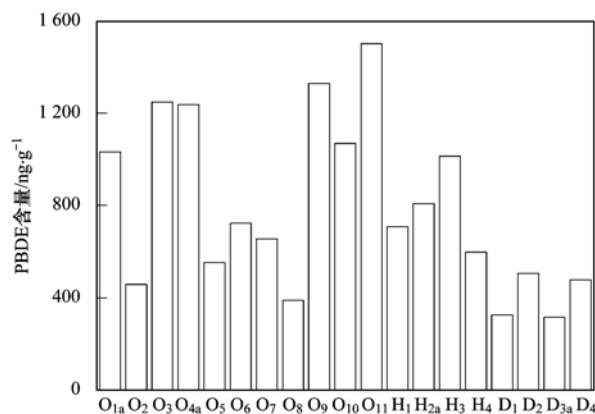


图2 各个采样点含量

Fig. 2 Concentration of PBDEs in different sampling sites

2.2 灰尘中 PBDEs 的同系物分布

图 3 代表的是灰尘样品中各同系物的分布情况. 办公室样品中 BDE-209 贡献值的平均值为 78.18%, 其次是 BDE-190 和 BDE-183, 分别是 3.22% 和 1.78%; 家庭样品中 BDE-209 贡献值的平均值是 78.31%, 其次是 BDE-71 和 BDE-99, 分别是 22.41% 和 22.05%; 宿舍中 BDE-209 贡献值的平均值为 42.80%, 其次是 BDE-154 和 BDE-153, 分

别是 7.78% 和 5.51%. 综合来说各同系物对多溴联苯醚的贡献值如图 4, 贡献率最大的是 BDE-209, 其次分别是 BDE-190、BDE-154 和 BDE-71. 由此可见 BDE-209 是主要的 PBDEs 污染物, 大部分地区普遍存在 BDE-209 的污染, BDE-209 会在生物体代谢转化为低溴代的联苯醚, 引起更强的毒理效应, 导致肝增重、血浆中乳酸浓度显著增加、血色素降低、淋巴细胞的数目明显降低、抑制 EROD、ECOD 和转羟乙醛酶活性等现象^[30]. 其他同系物虽然浓度小但因其毒性大, 其对人体的伤害仍不可忽视. Stoker 等^[31] 的实验表明大鼠青春期暴露 BDE-71 会使青春期延长, 并抑制依赖于雄性激素生长的器官的发育, 大鼠体内的性激素分泌受到干扰. 目前, 对 PBDEs 的毒性研究主要集中在动物上, 对人体的直接作用机理尚不明确, 但是从大量的动物身上的研究结果来看, PBDEs 对人体的伤害性急需要受到重视, 以后应该侧重对人体的直接研究.

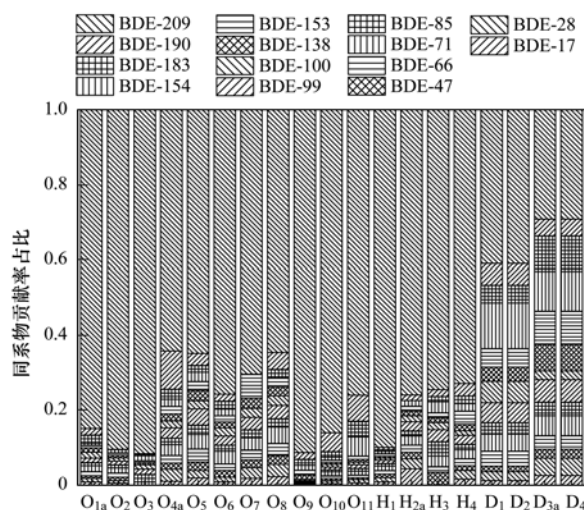


图3 灰尘中各同系物的分布情况

Fig. 3 Distribution of congeners in dusts

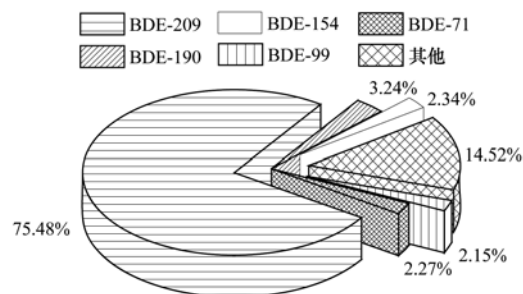


图4 各同系物对 PBDEs 的贡献值

Fig. 4 Contribution of congeners to PBDEs

为了探究室内灰尘中目标物之间的亲疏关系, 采用 SPSS 软件对 14 种 PBDEs 同系物来源不同以

及除 BDE-209 外的 13 种同系物做了聚类分析,结果见图 5. 从关系最近的关系层去看[图 5(a)], BDE-17、BDE-28、BDE-47、BDE-66、BDE-71、BDE-85、BDE-99、BDE-100 归为一类,BDE-138、BDE-153 为一类,BDE-154、BDE-183 为一类. 同一类物质可能来自同一污染源. 从 PBDEs 中 3 种商业品的组成成分上看,BDE-17、BDE-28、BDE-47、

BDE-66、BDE-71、BDE-85、BDE-99、BDE-100 是 Penta-BDEs 的主要组成成分,在聚类分析上属于同类物质,说明它们可能均来源于添加 Penta-BDEs 的材料. 从图 5(b)可以看出 BDE-209 单独属于一类,说明 BDE-209 与其他 13 种同系物来源不同,在本研究条件下,即使 BDE-209 发生了降解,对其他 13 种单体的影响也不大.



图 5 PBDEs 聚类分析树状图
Fig. 5 Cluster analysis tree of PBDEs

2.3 室内灰尘中 PBDEs 的影响因素

为了更细致地表明 PBDE 是否来自 PCB 电路板中 PBDE 的挥发,在 O₁、O₄、H₂、D₃ 这 4 个采样地点内的不同两个位置采集灰尘(表 1). O_{1a}、O_{4a}、H_{2a}、D_{3a} 在室内的表面采集, O_{1b}、O_{4b}、H_{2b}、D_{3b} 在电脑的机箱内采集. 结果如图 4,对比发现机箱内采集的灰尘中 PBDEs 的含量高于在室内表面采集的,可以说明灰尘中 PBDEs 来自 PCB 电路板中 PBDEs 的挥发,但是 4 个采样点对比高出的含量不一致,因为灰尘中 PBDEs 的含量还受其他因素的影响. 在采样的同时,也记录下了采样地点的电脑、空调、电视机等电器的数量和使用时间以及室内通风时间. 分析了它们与室内灰尘中 PBDEs 各个同系物浓度水平之间的相关性. 结果表明,电器数目与 BDE-85 和 BDE-209 有较好的相关性,与其他同系物相关性不明显;使用时间与 BDE-209 为显著正相关,但与其他同系物相关性一般;通风时间与 BDE-17 和 BDE-153 有显著正相关关系,与 BDE-209 和 BDE-190 呈负相关但相关性不大. 整体来说,除了 BDE-209,办公室和居住环境灰尘中的 PBDEs 含量与电器数目、使用时间和通风时间之间没有明显的相关性,室内灰尘中 PBDEs 浓度受电器数目、使用时间和通风时间影响不大,与黄玉妹等^[29]的研究结果相似. 产生这种结果的主要原因可能是:①空气流通作用对灰尘浓度影响较小. ②每个产品的参数不同也有影响,如生产厂家、使用的年数、阻燃剂的添

加量和各种同系物的添加量等. ③除了记录的产品外,还有未被记录的产品是室内灰尘中 PBDEs 的来源. 总的来说,相较于室内空气,影响灰尘中多溴联苯醚浓度的因素更为复杂,包括环境特征、室内通风条件、建筑物的使用龄、建筑材料、家具及室内装饰用品、生活规律、室内环境行为等等.

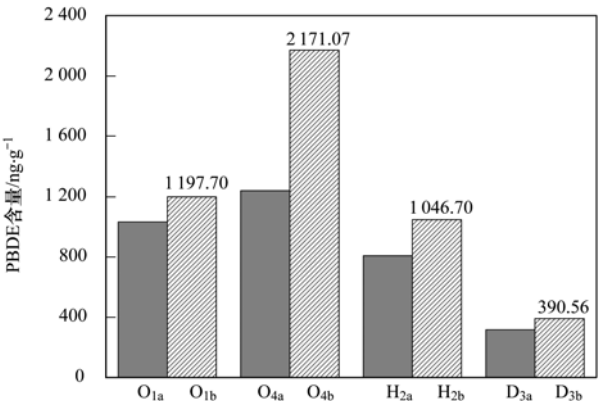


图 6 物体表面与电脑机箱内 PBDEs 含量对比
Fig. 6 Content of PBDEs on the surface compared with that in the computer case

2.4 灰尘中 PBDEs 暴露水平研究

人体对多溴联苯醚的暴露主要有 4 个途径: 饮食摄入、灰尘摄入、空气吸入和真皮吸入,已有的研究表明,饮食(尤其是食用鱼类)是人体摄入 PBDEs 的主要途径^[32],但随着人们活动越来越集中在室内,室内灰尘摄入已成为不可忽视的暴露途径. 结合本研究的相关数据,根据下面的公式计算成人

与儿童通过室内灰尘摄入 PBDEs 的量,结果见表 4。
$$\text{Intake}_{\text{dust}}(\text{ng} \cdot \text{d}^{-1}) = [(C_{\text{DH}}F_{\text{H}} + C_{\text{DO}}F_{\text{O}})] \cdot R_{\text{dust}}$$
式中, C_{DH} 和 C_{DO} 代表的是家庭以及办公室灰尘中 PBDEs 的含量, $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$, F_{H} 和 F_{O} 代表的是人们在家庭以及办公室的时间的百分比, R_{dust} 代表的是日灰尘摄入量,成人 $0.03 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$,儿童 $0.06 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$ 。

表 4 灰尘中 PBDEs 的人体总暴露量评估

Table 4 Estimation of human exposure to PBDEs in indoor and outdoor dust				
不同人群	最大值/ $\text{ng} \cdot \text{d}^{-1}$	最小值/ $\text{ng} \cdot \text{d}^{-1}$	平均值/ $\text{ng} \cdot \text{d}^{-1}$	贡献值/%
儿童	54.54	32.40	42.28	87.34
成人(工作日)	32.63	13.12	22.36	73.93
成人(周末)	25.86	15.30	19.97	74.20

灰尘中儿童的 PBDEs 人体暴露量高于成人的人体暴露量,主要是因为儿童日灰尘摄入量要高于成人,而成人在工作日以及周末的人体暴露量平均值大致相同,但是由于工作环境不同,工作日的人体暴露量有较大的差别,工作日的差别远远大于周末的差别。

根据 EPA 规定,一个成人对 PBDEs 的可摄入量为 $900 \text{ ng} \cdot \text{d}^{-1}$,而儿童对 PBDEs 的可摄入量为 $105 \text{ ng} \cdot \text{d}^{-1}$ 。就数据来说,目前每天从室内灰尘摄入的 PBDEs 对杭州市民的健康影响有限。但儿童对毒物具有很高的敏感性,从表 4 数据可以看出,儿童 PBDEs 的摄入量是成人的 2 倍,而且儿童每天有 90% 以上的时间都在室内度过。正在蹒跚学步的小孩儿,主要在离地面较近的区域活动,而且有频繁的手口接触,会触碰和摄入大量含有 PBDEs 的灰尘,这对小孩儿的成长发育有不良影响。文献[33]对 100 名自闭症发育迟缓和正常儿童的血样进行检测,发现自闭症和发育迟缓的儿童血清中 PBDEs 浓度高于正常对照组,自闭症和发育迟缓的儿童血清中 PBDEs 的含量相近。而且有关研究显示母乳中 PBDEs 的含量在过去二三十年间呈现指数增长的态势,最近的数据显示全球范围内母乳中 PBDEs 的最高含量(以脂肪计)超过 $100 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ [34],为了儿童的成长发育,应该对室内灰尘中 PBDEs 的研究给予重视。

3 结论

杭州市办公室和居住环境中 PBDEs 的含量处于中等水平,低于欧美国家,与亚洲一些国家水平相当,办公室的污染水平高于居住环境。14 种同系物中 BDE-209 的含量最高,对 PBDEs 的贡献率达到 75.48%。各同系物受电器数目、使用时间和通风时间影响不大,影响灰尘中 PBDEs 含量的因素较复杂,需要更深入的研究。就数据来说,目前每天从室内灰尘摄入的 PBDEs 对杭州市民的健康影响有限。但是灰尘摄入是儿童暴露于 PBDEs 的最主要途径,而且

儿童对毒物具有较高的敏感性,潜在危害性最大,需要给予重视。目前对于 PBDEs 的室内研究主要集中在家庭和办公场所,对于大型公共场所、交通工具(火车和公交车等)的研究极少,应该给予关注。

参考文献:

[1] 黄玉妹,陈来国,许振成,等. 室内尘土中 PBDEs 的含量、分布、来源和人体暴露水平[A]. 见: 中国环境科学学会 2009 年学术年会论文集(第四卷)[C]. 北京: 中国环境科学学会, 2009. 849-853.

[2] 陈多宏,李丽萍,毕新慧,等. 典型电子垃圾拆解区大气中多溴联苯醚的污染[J]. 环境科学, 2008, 29(8): 2105-2110.

Chen D H, Li L P, Bi X H, *et al.* PBDEs Pollution in the atmosphere of a typical e-waste dismantling region [J]. Environmental Science, 2008, 29(8): 2105-2110.

[3] 胡永彪,李英明,耿大玮,等. 北京冬季大气中多溴联苯醚的污染水平和分布特征[J]. 中国环境科学, 2013, 33(1): 9-13.

Hu Y B, Li Y M, Geng D W, *et al.* Levels and distribution of polybrominated diphenyl ethers in the ambient air of Beijing during winter[J]. China Environmental Science, 2013, 33(1): 9-13.

[4] 徐志强,周启星,张蕊,等. 多溴二苯醚动物毒理学研究进展及其生态毒理学展望[J]. 应用生态学报, 2007, 18(5): 1143-1152.

Xu Z Q, Zhou Q X, Zhang Q, *et al.* Research advances in animal toxicology of polybrominated diphenyl ethers and expectations on their ecotoxicology [J]. Chinese Journal of Applied Ecology, 2007, 18(5): 1143-1152.

[5] Gentes M L, Letcher R J, Caron-Beaudoin E, *et al.* Novel flame retardants in urban-feeding ring-billed gulls from the St. Lawrence River, Canada [J]. Environmental Science & Technology, 2012, 46(17): 9735-9744.

[6] 赵其国,骆永明,滕应,等. 当前国内外环境保护形势及其研究进展[J]. 土壤学报, 2009, 46(6): 1146-1154.

Zhao Q G, Luo Y M, Teng Y, *et al.* Development of the current domestic and international environmental protection and its research progress[J]. Acta Pedologica Sinica, 2009, 46(6): 1146-1154.

[7] Lorber M. Exposure of Americans to polybrominated diphenyl ethers [J]. Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology, 2008, 18(1): 2-19.

[8] Fischer D, Hooper K, Athanasiadou M, *et al.* Children show highest levels of polybrominated diphenyl ethers in a California family of four; a case study [J]. Environmental Health

- Perspectives, 2006, **114**(10): 1581-1584.
- [9] Lunder S, Hovander L, Athanassiadis I, *et al.* Significantly higher polybrominated diphenyl ether levels in young U. S. children than in their mothers[J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(13): 5256-5262.
- [10] Johnson P I, Stapleton H M, Sjödin A, *et al.* Relationships between polybrominated diphenyl ether concentrations in house dust and serum [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(14): 5627-5632.
- [11] 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.
- [12] Watkins D J, McClean M D, Fraser A J, *et al.* Exposure to PBDEs in the Office Environment: evaluating the relationships between dust, handwipes, and serum[J]. *Environmental Health Perspectives*, 2011, **119**(9): 1247-1252.
- [13] Stapleton H M, Eagle S, Sjödin A, *et al.* Serum PBDEs in a North Carolina toddler cohort: associations with handwipes, house dust, and socioeconomic variables [J]. *Environmental Health Perspectives*, 2012, **120**(7): 1049-1054.
- [14] Ma J, Kannan K, Cheng J P, *et al.* Concentrations, profiles, and estimated human exposures for polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and dibenzofurans from electronic waste recycling facilities and a chemical industrial complex in Eastern China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, **42**(22): 8252-8259.
- [15] Kang Y, Wang H S, Cheung K C, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in indoor dust and human hair[J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(14): 2386-2393.
- [16] 王成, 高媛, 张海军, 等. 辽东湾海域短链氯化石蜡的生物累积特征[J]. *环境化学*, 2011, **30**(1): 44-49.
Wang C, Gao Y, Zhang H J, *et al.* Bioaccumulation characteristics of short-chain chlorinated paraffins in Liaodong Bay, northeast China[J]. *Environmental Chemistry*, 2011, **30**(1): 44-49.
- [17] 金军, 王英, 刘伟志, 等. 莱州湾地区土壤及底泥中多溴联苯醚水平及其分布[J]. *环境科学学报*, 2008, **28**(7): 1463-1468.
Jin J, Wang Y, Liu W Z, *et al.* Level and distribution of polybrominated diphenyl ethers in soil from Laizhou Bay [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2008, **28**(7): 1463-1468.
- [18] 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.
- [19] Vorkamp K, Thomsen M, Frederiksen M, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in the indoor environment and associations with prenatal exposure [J]. *Environment International*, 2011, **37**(1): 1-10.
- [20] D'Hollander W, Roosens L, Covaci A, *et al.* Brominated flame retardants and perfluorinated compounds in indoor dust from homes and offices in Flanders, Belgium [J]. *Chemosphere*, 2010, **81**(4): 478-487.
- [21] Suzuki G, Nose K, Takigami H, *et al.* PBDEs and PBDD/Fs in house and office dust from Japan [J]. *Organohalogen Compounds*, 2006, **68**: 1843-1846.
- [22] Batterman S, Godwin C, Chernyak S, *et al.* Brominated flame retardants in offices in Michigan, U. S. A. [J]. *Environment International*, 2010, **36**(6): 548-556.
- [23] Thuresson K, Björklund J A, de Wit C A. Tri-decabrominated diphenyl ethers and hexabromocyclododecane in indoor air and dust from Stockholm microenvironments 1: levels and profiles [J]. *Science of the Total Environment*, 2011, **414**: 713-721.
- [24] Harrad S, Abdallah M A E, Oluseyi T. Polybrominated diphenyl ethers and polychlorinated biphenyls in dust from cars, homes, and offices in Lagos, Nigeria [J]. *Chemosphere*, 2016, **146**: 346-353.
- [25] Toms L M L, Bartkow M E, Symons R, *et al.* Assessment of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in samples collected from indoor environments in South East Queensland, Australia [J]. *Chemosphere*, 2009, **76**(2): 173-178.
- [26] Li K, Fu S. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in house dust in Beijing, China [J]. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 2013, **91**(4): 382-385.
- [27] Li C, Zhao Z, Lei B, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers in the air and comparison of the daily intake and uptake through inhalation by Shanghai residents with those through other matrices and routes [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2015, **22**(3): 1750-1759.
- [28] Yu Y X, Pang Y P, Li C, *et al.* Concentrations and seasonal variations of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in in-and out-house dust and human daily intake via dust ingestion corrected with bioaccessibility of PBDEs [J]. *Environment International*, 2012, **42**: 124-131.
- [29] 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.
Huang Y M, Chen L G, Xu Z C, *et al.* Preliminary study of PBDE levels in house dust and human exposure to PBDEs via dust ingestion[J]. *Environmental Science*, 2010, **31**(1): 168-172.
- [30] 杜红燕, 朱琳, 陈中智, 等. 十溴联苯醚的毒理学效应研究进展[J]. *毒理学杂志*, 2008, **22**(1): 50-52.
Du H Y, Zhu L, Chen Z Z, *et al.* Research progress of toxicological effects of Deca-BDE [J]. *Journal of Toxicology*, 2008, **22**(1): 50-52.
- [31] Stoker T E, Cooper R L, Lambright C S, *et al.* In vivo and in vitro anti-androgenic effects of DE-71, a commercial polybrominated diphenyl ether (PBDE) mixture [J]. *Toxicology and Applied Pharmacology*, 2005, **207**(1): 78-88.
- [32] Frederiksen M, Vorkamp K, Mathiesen L, *et al.* Placental transfer of the polybrominated diphenyl ethers BDE-47, BDE-99 and BDE-209 in a human placenta perfusion system: an experimental study [J]. *Environmental Health: A Global Access Science Source*, 2010, **9**: 32.
- [33] Hertz-Picciotto I, Bergman Å, Fängström B, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers in relation to autism and developmental delay: a case-control study [J]. *Environmental Health: A Global Access Science Source*, 2011, **10**: 1.
- [34] Leung A O W, Chan J K Y, Xing G H, *et al.* Body burdens of polybrominated diphenyl ethers in childbearing-aged women at an intensive electronic-waste recycling site in China [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2010, **17**(7): 1300-1313.

CONTENTS

Air Pollutant Emission Inventory and Impact of Typical Industries on PM _{2.5} in Chengde	CHEN Guo-lei, ZHOU Ying, CHENG Shui-yuan, <i>et al.</i> (4069)
Pollution Characteristics and Emission Coefficient of Volatile Organic Compounds from Woodwork-making Industry in Zhejiang Province	YAO Yi, WANG Zhe-ming, HE Zhi-qiao, <i>et al.</i> (4080)
Emission Inventory of Anthropogenic VOCs and Its Contribution to Ozone Formation in Shanxi Province	YAN Yu-long, PENG Lin (4086)
Characteristics and Source Apportionment of VOCs of High Pollution Process at Chemical Industrial Area in Winter of China	GAO Song, CUI Hu-xiong, FU Qing-yan, <i>et al.</i> (4094)
Study and Application of Test Method for VOCs Emission Factor of Refueling in Service Station	HUANG Yu-hu, CHANG Yao-qing, REN Bi-qi, <i>et al.</i> (4103)
NH ₃ Emission Characteristics in Landfill Sites in Beijing	CUI Tong, LI Jin-xiang, YANG Yan-yan, <i>et al.</i> (4110)
Inventory and Characteristics of Anthropogenic Ammonia Emission in Xi'an	SU Hang, YAN Dong-jie, HUANG Xue-min, <i>et al.</i> (4117)
Pollution Characteristics of Non-methane Hydrocarbons During Winter and Summer in Foshan City	ZHOU Xue-ming, XIANG Ping, DUAN Jing-chun, <i>et al.</i> (4124)
Water-soluble Inorganic Ions in the Road Ambient Atmospheric Particles of Tianjin	ZHAO Meng-xue, WU Lin, FANG Xiao-zhen, <i>et al.</i> (4133)
Characteristics of Nitrogen Deposition in Daiyun Mountain National Nature Reserve	YUAN Lei, LI Wen-zhou, CHEN Wen-wei, <i>et al.</i> (4142)
Microbial Activity in Bioaerosols in Winter at the Coastal Region of Qingdao	MENG Xiang-bin, LI Meng-zhe, LI Hong-tao, <i>et al.</i> (4147)
Molecular and Carbon Isotopic Compositions of <i>n</i> -Alkanoic Acids in Smoke from Maize Straw Combustion	LIU Gang, SUN Li-na, XU Hui, <i>et al.</i> (4156)
Gas Transfer Velocity of CH ₄ at Extremely Low Wind Speeds	ZHANG Cheng, LÜ Xin-biao, LONG Li, <i>et al.</i> (4162)
Spectral Characteristics of Chromophoric Dissolved Organic Matter (DOM) from a Typical Reservoir Lake from Inland of Three Gorges Reservoir Areas: In the View of Riparian Ecosystem Analysis	CHEN Xue-shuang, JIANG Tao, LU Song, <i>et al.</i> (4168)
Characteristics and Pollution Source Analysis of Nutrients in Tributary Outlets of Xitaoxi Watershed	CHEN Shi-wen, YUAN Xu-yin, JIN Jing, <i>et al.</i> (4179)
Analysis of Driving Factors on the Nitrogen Decrease in the Early Stage of the Thermal Stratification in Main Area of Zhoucun Reservoir	ZHANG Chun-hua, HUANG Ting-lin, FANG Kai-kai, <i>et al.</i> (4187)
Characteristics of Organic Phosphorus Fractions in the Sediments of the Black Water Aggregation in Lake Taihu	DONG Dan-ping, ZHANG Ting-xi, ZHANG Ding-yu, <i>et al.</i> (4194)
Impacts of Multiple Disturbance on Migration and Transformation of Endogenous Phosphorus in Lake	CAI Shun-zhi, LI Da-peng, WANG Ren, <i>et al.</i> (4203)
Change of Soil Nitrogen Leaching with Summer Maize Growing Periods Under Plastic Film Mulched Cultivation in Danjiangkou Reservoir Area, China	WANG Wei, YU Xing-xiu, HAN Qiang, <i>et al.</i> (4212)
Nutrients Recovery on the Growth of Nitrogen and Phosphorus Starved <i>Microcystis aeruginosa</i>	YUE Dong-mei, LI Jie, XIAO Lin (4220)
Inactivation Efficiency and Mechanism of Three Dominant Fungal Spores in Drinking Groundwater by Chlorine	WEN Gang, ZHU Hong, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> (4228)
Effect of Water Treatment Process on the Bacterial Multidrug Resistance in Drinking Water	MA Xiao-lin, LU Yang, WANG Yu, <i>et al.</i> (4235)
Characteristics of Disinfection By-products and Genotoxicity During Drinking Water Disinfection with Potassium Monopersulfate Compound Powder	AO Xiu-wei, LI Hao-jie, LIU Wen-jun, <i>et al.</i> (4241)
Heterogeneous Activation of Peroxymonosulfate with Three-dimensional Ordered Mesoporous Co ₃ O ₄ for the Degradation of Rhodamine B	FENG Shan-fang, DENG Si-ping, DU Jia-wen, <i>et al.</i> (4247)
Enhanced Mitigation of Membrane Fouling by Regulations on Floc Morphology in Electrocoagulation	ZHAO Kai, YANG Chun-feng, SUN Jing-qiu, <i>et al.</i> (4255)
Effect of Initial pH on Nitrogen Removal Performance and N ₂ O Emission of a Sequencing Batch CANON Reactor	FU Kun-ming, WANG Hui-fang, SU Xue-ying, <i>et al.</i> (4261)
Operational Characteristics of the Simultaneous Nitrogen and Phosphorus Removal and Removal of Phthalate Esters by Three-dimensional Biofilm-electrode Coupled with Iron/Sulfur Reactor	ZHANG Ya, HAO Rui-xia, XU Peng-cheng, <i>et al.</i> (4268)
Phosphorus Removal Mechanism of Sulfur/Sponge Iron Composite Fillers Based on Denitrification	FAN Jun-hui, HAO Rui-xia, LI Meng, <i>et al.</i> (4275)
Optimization of Denitrifying Phosphorus Removal Performance Based on ABR-MBR Combined Process	CHENG Chao-yang, ZHAO Shi-hui, LÜ Liang, <i>et al.</i> (4282)
Effect of Moderate and Room Temperature on Nitrogen Removal in PN-ANAMMOX Process	YUAN Yan, ZHU Liang (4289)
Influence of Biological Activated Carbon on Simultaneous Nitrification and Denitrification in Inflow with Different C/N Ratios	CUI Yan-ni, QIU Xin, ZHANG Qing-rong, <i>et al.</i> (4296)
Biotransformation of Nitrate to Nitrogen Gas Driven by ANAMMOX Microbes via Zero-valent Iron Under Anaerobic Conditions	ZHOU Jian, WANYAN De-qing, HUANG Yong, <i>et al.</i> (4302)
A Comparative Study on Performance of an Intermittent Aeration SBR and a Traditional SBR for Treatment of Digested Piggery Wastewater	DONG Bao-gang, SONG Xiao-yan, LIU Rui, <i>et al.</i> (4309)
Biological Pre-treatment of Surplus Sludge Using the Protease-secreting Bacteria	HE Pin-jing, WANG Ying, HU Jie, <i>et al.</i> (4317)
Transfer and Fate of Polybrominated Diphenyl Ethers in an Electrical Equipment Dismantling Area Using a Multimedia Fugacity Model	XUE Nan-dong, CHEN Xuan-yu, YANG Bing, <i>et al.</i> (4326)
Distribution Characteristics of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Environmental Media in Nanning City	MIAO Ying, KONG Xiang-sheng (4333)
PBDEs Levels in House Dust and Human Exposure to PBDEs via Dust Ingestion in Hangzhou	JIN Man-tong, TENG Dan-dan, ZHENG Yan-xia, <i>et al.</i> (4341)
Evaluating Biochar-Water Sorption Coefficients of Pharmaceutically Active Compounds by Using a Linear Free Energy Relationship	WANG Jia-yi, BI Er-ping (4349)
Characteristics of Bacterial Communities in Surface-flow Constructed Wetlands	WEI Jia-ming, CUI Li-juan, LI Wei, <i>et al.</i> (4357)
Community Structure and Activity Analysis of the Nitrifiers in Raw Sewage of Wastewater Treatment Plants	YU Li-fang, DU Qian-qian, FU Xue-tao, <i>et al.</i> (4366)
Effects of Fertilization on Soil Microbial Abundance and Community Structure at DNA and cDNA Levels in Paddy Soils	WANG Cong, WU Ne, HOU Hai-jun, <i>et al.</i> (4372)
Effects of Bisphenol A on Characteristics of Paddy Soil Microbial Community Under Different Cultural Conditions	LIU Chang, HUANG Ya-dan, ZHANG Ying, <i>et al.</i> (4380)
Identification of a Facultative Bacterium Strain with the Ability to Methylate Mercury Under Both Aerobic and Anaerobic Conditions	TAO Lan-lan, XIANG Yu-ping, WANG Ding-yong, <i>et al.</i> (4389)
Distribution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes in Vegetable Soils in Beijing	ZHANG Lan-he, WANG Jia-jia, HA Xue-jiao, <i>et al.</i> (4395)
Distribution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes in Sika Deer Farm	HUANG Fu-yi, AN Xin-li, CHEN Qing-lin, <i>et al.</i> (4402)
Comparison of Toxic Effect of Siliceous Mineral Dusts on Lung Epithelial A549 Cells	HUO Ting-ting, DONG Fa-qin, DENG Jian-jun, <i>et al.</i> (4410)
Effect of Adding Compound Adsorbent on Phenanthrene and Cr(VI) Absorption by Lou Soil	LI Wen-bin, MENG Zhao-fu, WU Qiong, <i>et al.</i> (4419)
Effect of Biochar on Adsorption Behavior of Nonylphenol onto Loess Soil in Northwest China	ZHANG Zhen-guo, JIANG Yu-feng, MU Zhong-feng, <i>et al.</i> (4428)
Soil Respiration in Response to Different Ridge/Furrow Ratios and Its Relationship with Soil Moisture and Temperature Under Ridge-Furrow Planting Patterns	WANG Chang-jiang, SHI Cheng-xiao, FENG Fan, <i>et al.</i> (4437)
Effects of Straw in Combination with Reducing Fertilization Rate on Soil Nutrients and Enzyme Activity in the Paddy-Vegetable Rotation Soils	HUANG Rong, GAO Ming, WAN Yi-lin, <i>et al.</i> (4446)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 赵进才

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
赵进才 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11月15日 第37卷 第11期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 37 No. 11 Nov. 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	赵进才	Editor-in -Chief		ZHAO Jin-cai
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. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易集团有限公司 (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