

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第4期

Vol.39 No.4

2018

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

京津冀地区钢铁行业污染物排放清单及对PM_{2.5}影响 段文娇, 郎建全, 程水源, 贾佳, 王晓琦 (1445)

京津冀内陆平原地区PM_{2.5}浓度时空变化定量模拟 郝静, 孙成, 郭兴宇, 王卫, 刘方田, 党海燕 (1455)

成都市冬季相对湿度对颗粒物浓度和大气能见度的影响 刘凡, 谭钦文, 江霞, 蒋文举, 宋丹林 (1466)

华山地区PM_{2.5}中无机离子垂直分布特征 曹聪, 王格慧, 吴灿, 李建军, 刘浪, 李瑾, 余兴 (1473)

烟花爆竹集中燃放的大气细颗粒物(PM_{2.5})成分图谱 谢瑞加, 侯红霞, 陈永山 (1484)

长三角地区中小燃煤锅炉PM_{2.5}成分谱特征 徐健, 黄成, 李莉, 陈勇航, 楼晟荣, 乔利平, 王鸿宇 (1493)

民用燃煤排放分级颗粒物中重金属排放因子 严沁, 孔少飞, 刘海彪, 王伟, 吴剑, 郑明明, 郑淑容, 杨国威, 吴方琪 (1502)

冬、春季青岛大气气溶胶中乙二酸的分布特征及影响因素 张帅, 石金辉, 姚小红, 高会旺 (1512)

青岛大气降水中微量元素的浓度及溶解度 李茜, 石金辉, 李鹏志, 姚小红, 高会旺 (1520)

辽东湾大气中多环芳烃的含量组成及气粒分配 张玉凤, 宋永刚, 田金, 赵海勃, 杨爽, 吴金浩 (1527)

典型地区大气新型卤代阻燃剂污染特征、来源分析及人体暴露 李琦路, 杨孔, 李军, 张干 (1537)

苏州工业园区室内外颗粒物中多溴联苯醚污染特征及人体暴露水平 王俊霞, 顾海东, 张占恩, 钱飞跃 (1544)

上海市大气污染对感冒疾病相对危险度的影响 杨丝絮, 马玉霞, 周建丁, 周骥 (1552)

城镇化河流溶解性有机质的荧光特性与水质相关性:以宁波市北仑区芦江为例 曹昌丽, 梁梦琦, 何桂英, 纵亚男, 唐剑锋 (1560)

艾比湖区域景观格局与河流水质关系探讨 曹灿, 张飞, 阿依尼格·亚力坤, 朱世丹, 郭苗, 阿丽米热·塔力甫江, Kung Hsiangte (1568)

三峡澎溪河水华期间水体CH₄浓度及其通量变化特征初探 秦宇, 张渝阳, 李哲, 马健荣 (1578)

漓江段地表水体旱季硝酸盐动态变化特征及其来源 苗迎, 章程, 肖琼, 赵海娟, 李成习 (1589)

柳江流域饮用水源地重金属污染与健康风险评价 张清华, 韦永著, 曹建华, 于爽 (1598)

黄柏河流域梯级水库沉积物磷形态特征及磷释放通量分析 刘佳, 雷丹, 李琼, 王亮, 张平, 肖尚斌 (1608)

白洋淀典型持久性有机污染物污染特征与风险评估 高秋生, 焦立新, 杨柳, 田自强, 杨苏文, 安月霞, 贾海斌, 崔志丹 (1616)

典型有机氯农药在珠三角地区多介质环境中的归趋模拟 高梓闻, 徐月, 亦如瀚 (1628)

河道水旁路处理中试工艺中PPCPs的去除效果及机制 李力, 朱楦, 白瑶, 赵健, 曹之淇, 郭泓利, 李凌云, 左剑勇 (1637)

茶普生在氯消毒过程中的去除、转化与风险评价 樊鑫鑫, 杜尔登, 李佳琦, 赵顺利, 王聿琳, 彭明国 (1645)

真空紫外/氯处理饮用水典型致嗅物质 孙昕, 张焱, 史路肖, 陈笑涵, 唐晓 (1654)

热活化过硫酸盐降解三氯生 蒋梦迪, 张清越, 季跃飞, 陆隽鹤 (1661)

水体模拟颗粒物对四环素的吸附特性及基本规律 徐龙凤, 魏群山, 吕强, 唐立朋, 刘亚男, 柳建设 (1668)

海水优化ANAMMOX包埋固定化及其处理含海水污水的脱氮性能 单晓静, 于德爽, 李津, 陈光辉, 冯莉, 吕廷廷, 邵青 (1677)

外源甜菜碱投加增强高盐废水厌氧氨氧化脱氮性能 于德爽, 吴国栋, 李津, 周同, 王晓静 (1688)

硝化污泥富集及其强化高氨氮冲击的中试研究 盛晓琳, 崔灿灿, 王家德, 刘锐, 徐峰, 陈吕军 (1697)

分段进水对改良A²/O-BAF双污泥系统反硝化除磷脱氮的影响 南彦斌, 彭永臻, 曾立云, 赵智超, 刘宏, 李慧, 陈永志 (1704)

不同温度下应用比值控制实现连续流好氧颗粒污泥短程硝化 梁东博, 卞伟, 阚睿哲, 王文啸, 赵青, 孙艺齐, 李军 (1713)

智能化曝气控制A/O工艺活性污泥特性演化对内源反硝化脱氮的作用机制 徐旻昀, 胡湛波, 张穗生, 李昊航 (1720)

温度对一体式厌氧流化床膜生物反应器运行效能及微生物群落结构的影响 李玥, 胡奇, 高大文 (1731)

污泥臭氧原位减量工艺中抗生素的去除 汪鲁, 黄伟伟, 李彦刚, 强志民 (1739)

零价铁对污泥厌氧消化过程中四环素抗性基因水平转移的作用影响 杨帆, 徐雯丽, 钱雅洁, 刘振鸿, 薛罡, 高品 (1748)

环境因子对全自养脱氮颗粒污泥功能菌协同效应的影响 陈希, 钱飞跃, 王建芳, 高军军, 沈耀良, 贾珣 (1756)

后置固相反硝化滤池工艺沿程微生物特性 张千, 吉芳英, 徐璇 (1763)

复合菌株YH01+YH02强化SBR好氧反硝化脱氮及菌群结构分析 陈海升, 曹刚, 张迪, 黄郑郑, 莫测辉 (1773)

氮磷失衡下膨胀污泥性能及膨胀菌群落结构变化 贺雪濛, 丁丽丽, 张璐璐, 顾卓江, 任洪强 (1782)

1株铜绿假单胞菌对苊的降解特性及代谢途径 李想, 张雪英, 周俊, 宋军, 王建刚, 雍晓雨, 贾红华 (1794)

铜尾矿库坝面土壤微生物群落动态的驱动因子 李磊, 景炬辉, 刘晋仙, 柴宝峰 (1804)

垦殖对桂林会仙喀斯特湿地土壤养分与微生物活性的影响 黄科朝, 沈育伊, 徐广平, 黄玉清, 张德楠, 孙英杰, 李艳琼, 何文, 周龙武 (1813)

黄土丘陵区退耕还林还草对土壤细菌群落结构的影响 陈孟立, 曾全超, 黄懿梅, 倪银霞 (1824)

河岸带表层土壤的铁氨氧化(Feammox)脱氮机制的探究 丁帮环, 李正魁, 朱鸿杰, 陈湜, 覃云斌, 杨建华, 胡优优 (1833)

藏猪扰动作用下的高寒草甸土壤退化特征及微生物群落结构变化 展鹏飞, 肖德荣, 闫鹏飞, 刘振亚, 马金成, 陈志明, 格茸, 田伟, 王行 (1840)

深圳湾典型红树植物根表铁膜及其重金属富集特征 沈小雪, 李瑞利, 柴民伟, 邱国玉 (1851)

香港周边海域野生鱼体内DDTs和PCBs的含量分布和食用风险评估 苏杨, 鲍恋君, 曾永平 (1861)

偏远高山湿地土壤中PAHs污染特征:以神农架大九湖为例 胡天鹏, 邢新丽, 柯艳萍, 毛瑶, 黎荧, 郑煌, 喻月, 张家泉, 祁士华 (1872)

西南地区典型森林水库土壤和沉积物汞的迁移转化特征 孙涛, 马明, 王永敏, 安思危, 王定勇 (1880)

广西西江流域土壤镉含量特征及风险评估 宋波, 杨子杰, 张云霞, 王佛鹏, 周浪, 李黎, 钟雪梅 (1888)

长期施肥对旱地红壤及作物中砷累积的影响 张蓉, 余光辉, 李亚青 (1901)

三元土壤调理剂对田间水稻镉累积转运的影响 辜娇峰, 周航, 贾润语, 王倩倩, 李虹呈, 张平, 彭佩钦, 廖柏寒 (1910)

稻田土壤性质与水稻镉含量的定量关系 王梦梦, 何梦媛, 苏德纯 (1918)

钙基膨润土辅助对堆肥及土壤Cu、Zn形态转化和白菜吸收的影响 赵军超, 王权, 任秀娜, 李荣华, Mukesh Kumar Awasthi, Altaf Hussain Lahori, 张增强 (1926)

外源碳和氮输入对降水变化下土壤呼吸的短期影响 贺玉龙, 齐玉春, 彭琴, 董云社, 郭树芳, 闫钟清, 李兆林, 王丽芹 (1934)

模拟降水量减少对大豆-冬小麦轮作农田土壤呼吸的影响 王朝辉, 陈书涛, 孙鹭, 胡正华 (1943)

紫色土丘陵区农田源头沟渠一氧化氮排放的季节差异及影响因素 田琳琳, 任光前, 朱波 (1952)

季节非对称升温对喀斯特土壤CO₂释放的影响 唐国勇, 张春华, 刘方炎, 李昆, 马艳 (1962)

《环境科学》征订启事 (1472) 《环境科学》征稿简则 (1511) 信息 (1755, 1839, 1925)

苏州工业园区室内外颗粒物中多溴联苯醚污染特征及人体暴露水平

王俊霞^{1,2}, 顾海东², 张占恩^{1,2}, 钱飞跃¹

(1. 苏州科技大学环境科学与工程学院, 苏州 215009; 2. 苏州科技大学江苏省环境科学与工程重点实验室, 苏州 215009)

摘要: 利用大流量主动采样技术在苏州市工业园区工厂车间、办公室、住宅区和风景区, 采集 PM₁₀ 样品, GC-MS 测定 PM₁₀ 中 8 种 PBDEs 的含量. 室内 PM₁₀ 中 PBDEs 总浓度范围为 9.22~64.15 pg·m⁻³ (均值为 20.93 pg·m⁻³), 室外样品中 PBDEs 总浓度范围为 1.06~8.44 pg·m⁻³ (均值为 5.11 pg·m⁻³), 室内含量显著高于室外含量. PM₁₀ 中 ∑₈ PBDEs 平均浓度从高到低顺序依次为工业车间、办公室、住宅区和室外大气, 与其他地区室内外颗粒物含量相比, 苏州室内外大气颗粒物中 PBDEs 都处于较低水平. 室内外大气中 BDE-209 是最主要化合物 (平均占总 PBDEs 的 63%), 其次为 BDE-99 和 BDE-47. 车间员工、办公室员工和儿童的 PBDEs 日呼吸摄入量分别为 3.75、2.78 和 2.60 pg·(kg·d)⁻¹, 这表明苏州居民呼吸暴露 PBDEs 的潜在健康危害并不明显.

关键词: 多溴联苯醚; 大气 PM₁₀; 苏州; 室内外; 呼吸暴露

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)04-1544-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.201708147

Contamination Characterization and Human Exposure Levels to Polybrominated Diphenyl Ethers in Indoor and Outdoor Air in Industrial Park of Suzhou City

WANG Jun-xia^{1,2}, GU Hai-dong², ZHANG Zhan-en^{1,2}, QIAN Fei-yue¹

(1. School of Environmental Science and Engineering, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou 215009, China; 2. Jiangsu Key Laboratory of Environmental Science and Engineering, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou 215009, China)

Abstract: Eight polybrominated diphenyl ether (PBDE) congeners in indoor and outdoor air particles were collected using higher-volume active sampling techniques from different functional areas, including an industrial workplace, office, domestic area, and scenic area in an industrial zone, in Suzhou city, and the samples were analyzed by GC-MS. The total concentration of PBDEs ranged from 9.22-64.15 pg·m⁻³ (average 20.93 pg·m⁻³), and 1.06-8.44 pg·m⁻³ (average 5.11 pg·m⁻³) in indoor and outdoor air, respectively. The results showed that the concentrations of PBDEs in indoor PM₁₀ was significantly higher than that in the outdoor PM₁₀. The average concentrations of PBDEs in the air of the different sampling areas were in the order: industrial workplace < office < dwelling indoor < outdoor air. Compared with the concentrations of PBDEs in the indoor and outdoor particulate matters from other regions, the concentrations of PBDEs in the indoor and outdoor atmospheric particles from Suzhou were at lower levels. BDE-209 was the most abundant (average 63% of the total PBDEs) in indoor and outdoor air, followed by BDE-99 and BDE-47. The estimated daily intake of PBDEs via inhalation was 3.75, 2.78, and 2.60 pg·(kg·d)⁻¹ by the workers in the workplace, workers in office, and toddlers, respectively. Results showed that inhalation exposure to PBDEs did not cause potential health risks in the local residents of Suzhou.

Key words: polybrominated diphenyl ethers; atmospheric PM₁₀; Suzhou; indoor and outdoor; inhalation exposure

多溴联苯醚 (polybrominated diphenyl ethers, PBDEs) 是一类普遍应用于电子电器、家具、家庭装潢和汽车等产品中的添加剂, 主要有五溴联苯醚 (penta-BDEs)、八溴联苯醚 (octa-BDEs) 和十溴联苯醚 (deca-BDEs) 3 种商业品. 由于其具有持久性、生物富集性以及对人体和生态健康的危害, 五溴和八溴联苯醚商业品已进入 POPs 斯德哥尔摩公约禁用清单^[1]. 城市 PBDEs 污染释放源如聚合物生产、制造、电子垃圾回收^[2]、废水处理厂^[3]、垃圾焚烧^[4] 和垃圾填埋场等地均易于释放

PBDEs 到大气, 还有一些使用过程释放, 包括移动源如柴油车辆和固定源如发电厂等, 也是城市不可忽视的来源.

室内环境是人体暴露半挥发性有机物 (SVOCs) 的重要场所. 然而国内针对室内环境中 PBDEs 的

收稿日期: 2017-08-18; 修订日期: 2017-09-14

基金项目: 江苏省高校自然科学重大项目 (15KJA610003); 江苏省自然科学基金项目 (BK20150284); 苏州科技计划项目 (SNG201612, SS201612)

作者简介: 王俊霞 (1983~), 女, 博士, 讲师, 主要研究方向为区域环境新型 POPs 监测分析技术, E-mail: wjx_7297@163.com

研究较多集中在含 PBDEs 典型污染源的地区(如电器、家具、塑料、纺织和建筑等生产制造地和电子垃圾拆解地),以及经济发达地区(如上海^[5]、北京^[6]、广州^[7]、深圳^[8]和杭州^[9]等)。由于在室内环境中 PBDEs 降解(微生物和光解)和其他消除(挥发和稀释)过程缓慢,结合在颗粒物上的 PBDEs 会在室内环境中更加持久^[10],尤其是粒径小于 10 μm 的细颗粒比粗颗粒吸收更多的有毒物质,并能通过呼吸沉积在肺部进入人体,引起呼吸系统和心血管疾病^[11]。人们待在室内的时间超过 80%,尤其成人和儿童每天在室内超过 10h,室内环境质量(工作场所和家庭)严重影响人体健康,车间内(如电子垃圾拆解厂)有时通风条件差和降解速率慢导致在室内高浓度的 PBDEs 富集^[12]。但不仅局限于工厂员工,附近居民也会由于间接暴露于污染物对人体健康造成危害。

苏州市工业园区位于苏州市东部,作为一个国家级经济技术开发区,人口密集,交通发达,集科技产业(如电子电器生产、精密加工和高科技等)、居住、旅游于一体。本文采用主动采样技术,选择

苏州工业园区工厂车间和办公室、居民区室内和室外大气,分析其中 PBDEs 污染水平和呼吸暴露水平,以期为苏州市大气 PBDEs 污染的源头控制技术提供数据支持。

1 材料与方法

1.1 采样区域和样品采集

根据工业园区行政规划区设计不同采样点,主要有中新合作区、娄葑、唯亭和斜塘 4 个区,在娄葑和唯亭存在较多的工业企业,如电器生产厂、精密仪器、金属制造、科技和电力等。阳澄湖景区,共设计 25 个采样点,见图 1。于 2016 年 1 月 22 日至 2016 年 2 月 27 日,总采集了 25 个大气样品,具体如下:苏州市工业园区家庭住宅室内样品 8 个(即为 B 类居住区)家庭住宅建筑和装修大多是 2008 年以前,住宅小区室外公共区域 2 个;苏州工业园区公司车间室内样品 3 个,办公场所室内样品 4 个,室外 4 个(即为 A 类工业区),均是在正常上班期间采样;风景区室外采集 1 个(即为 C 类风景区也是对照区),采样点详细信息见表 1。

表 1 大气采样点描述
Table 1 Description of the air sampling sites

采样编号	采样日期	采样地点	采样点描述	采样点分布	大气温度/ $^{\circ}\text{C}$
S-ID1	2016-01-22	A1 科技公司	办公区电脑、打印机等设备(室内)	唯亭	-3~4
S-OD2	2016-01-23	B1 公寓	小区公共区域(室外)	娄葑	-3~4
S-ID3	2016-01-24	A2 金属制品公司	金属生产设备(室内)	中新合作区	-8~1
S-ID4	2016-01-25	B2 小区	家庭住宅(室内)	娄葑	-4~2
S-ID5	2016-01-26	B3 小区	家庭住宅(室内)	中新合作区	-2~5
S-ID6	2016-01-27	B4 小区	家庭住宅(室内)	娄葑	4~6
S-OD7	2016-01-28	A3 燃气公司	室外	娄葑	6~7
S-OD8	2016-01-29	A4 工业坊	室外	唯亭	2~6
S-OD9	2016-01-30	A5 工业坊	室外	唯亭	0~6
S-OD10	2016-01-31	C 风景区	室外	阳澄湖	-2~5
S-ID13	2016-02-01	B5 小区	家庭住宅(室内)	中新合作区	-4~2
S-OD14	2016-02-02	B6 小区	小区公共区域(室外)	娄葑	-4~6
S-ID15	2016-02-11	B6 小区	家庭住宅(室内)	娄葑	3~8
S-ID16	2016-02-12	B7 小区	家庭住宅(室内)	斜塘	1~15
S-OD17	2016-02-15	A6 电力公司	室外	娄葑	-1~5
S-ID18	2016-02-16	A7 社区服务站	办公区电脑、打印机等设备(室内)	娄葑	1~10
S-ID20	2016-02-07	A8 电子公司	生产电子产品(室内)	唯亭	-2~5
S-ID21	2016-02-24	B7 小区	家庭住宅(室内)	斜塘	2~8
S-ID22	2016-02-06	B8 小区	家庭住宅(室内)	中新合作区	2~8
S-ID23	2016-02-06	A5 工业坊办公区	办公区电脑、打印机等设备(室内)	唯亭	2~8
S-ID24	2016-02-07	A9 线缆公司	生产线缆(室内)	唯亭	5~15
S-ID25	2016-02-27	A10 精密公司	办公区电脑、打印机等设备(室内)	中新合作区	5~15

大气颗粒相中 PBDEs 采样技术常用玻璃纤维滤膜的主动采样技术。利用带有 PM_{10} 切割器的大流量采样器(青岛崂应)收集在玻璃纤维滤膜(GF/A,

whatman), 流速 $0.2 \text{ m}^3 \cdot \text{min}^{-1}$, 采集 8 h 保证采集空气量约为 100 m^3 , 大气采样器放置距地面 1.5 m 处。玻璃纤维滤膜使用前, 450°C 烘烤 4 h 以除去有

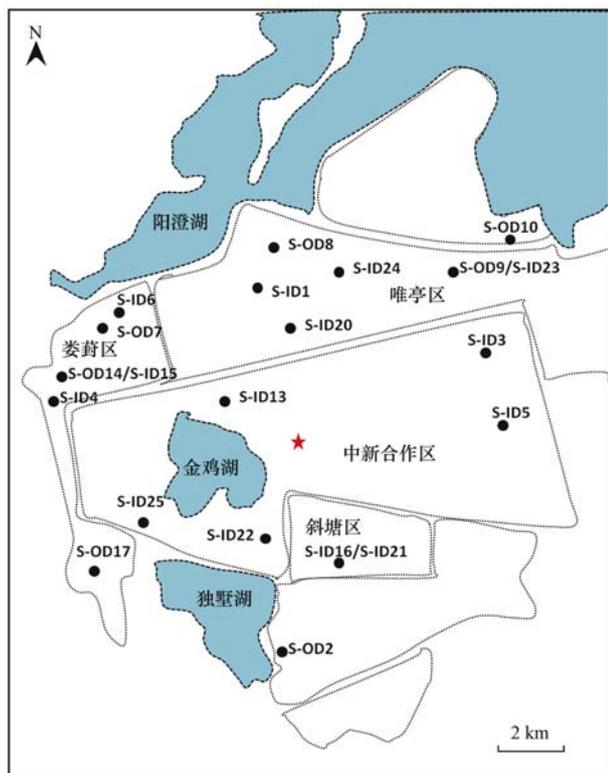


图1 采样点分布示意

Fig. 1 Distribution map of the sampling sites

机污染物。采样后,用镊子将玻璃纤维滤膜对折,铝箔包裹,密封在自封袋中,带回实验室。

1.2 样品前处理

大气颗粒物中 PBDEs 提取利用超声萃取和固相萃取柱净化技术。具体地,将滤膜加入已知量的回收率指示物 ^{13}C -PCB141 和 ^{13}C -PCB209,加入 20 mL 正己烷和二氯甲烷混合溶液(1:1,体积比)超声 20 min,重复萃取 3 次。合并提取液并氮吹至近干,1.0 mL 正己烷转换溶液,然后利用硅胶-氧化铝复合层析柱(玻璃柱内径 10 mm 长 30 cm,从下至上依次填充 6 cm 中性氧化铝,2 cm 中性硅胶,5 cm 碱性硅胶,2 cm 中性硅胶,8 cm 酸性硅胶,1 cm 无水硫酸钠)净化,缓慢上样,0.2 mL 正己烷洗涤试管 3 次,上样完成后用 70 mL 正己烷/二氯甲烷(1:1,体积比)混合液洗脱,收集洗脱液并氮吹至近干,50 μL 异辛烷重溶,过 0.45 μm 有机滤膜,加适量内标 ^{13}C -PCB208,待上机分析。

1.3 仪器分析

利用气相色谱质谱联用仪(安捷伦 GC7890-MS5973N)对目标物(BDE-28、-47、-100、-99、-154、-153、-183 和-209)进行检测,离子源为 EI 源。色谱条件:色谱柱为高温毛细管色谱柱 DB-5HT(柱长 15 m,内径 0.25 mm,液膜厚度 0.1 μm),升温程

序为初始温度为 100 $^{\circ}\text{C}$,保持 1 min,再以 30 $^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 速率升高到 220 $^{\circ}\text{C}$,保持 1 min,再以 8 $^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 速率升高到 300 $^{\circ}\text{C}$ 保持 5 min,不分流进样,高纯氮气为载气,流速为 1.2 $\text{mL}\cdot\text{min}^{-1}$,进样口和辅助温度均为 280 $^{\circ}\text{C}$ 。离子源和四级杆温度分别为 150 $^{\circ}\text{C}$ 和 230 $^{\circ}\text{C}$,选择离子监测(SIM)模式,EM 电压为 1450 V,电子能为 70 eV。BDE-28 选择 m/z 为 248.0、407.9; BDE-47 m/z 为 325.9、485.7; BDE-100 和-99 m/z 为 405.8、563.7; BDE-154 和-153 m/z 为 483.7、643.6; BDE-183 m/z 为 563.8、721.6; BDE-209 m/z 为 799.4 和 801.4。

1.4 质量控制与质量保证(QA/QC)

为了保证分析数据的准确度和可靠性,将进行采样空白、方法空白、加标样品、平行样实验。采样过程空白;进行大气采样过程中,带一个空白的玻璃纤维滤膜,与样品同样处理,以消除采样过程引入的污染。程序空白;未加样品与实际样品同样的处理,用来消除所用试剂、设备操作等污染。

样品加标实验:玻璃纤维膜上添加已知浓度的待测物,与实际样品同样处理,结果发现 8 种 PBDEs 的平均回收率 68% ~ 117%。为了保证仪器和方法的稳定性,每批样品中有 3 个平行样,获得较为合理的相对标准偏差(RSD)。大气采样流量平均 96 m^3 ,处理后最终定容到 50 μL ,PBDEs (BDE209 除外)的 LOQ 为 0.05 $\text{pg}\cdot\text{m}^{-3}$,BDE209 为 0.46 $\text{pg}\cdot\text{m}^{-3}$ 。

1.5 统计分析

数据分析采用 SPSS18.0 统计软件,所有数据均进行标准对数转换,利用单因素方差分析(ANOVA)室内外大气中 PBDEs 含量差异,利用 Tukey 多重比较方法,比较不同功能区大气中 PBDEs 的含量差异。显著水平 $P=0.05$ 。

2 结果与讨论

2.1 大气中 PBDEs 的污染水平和组成模式

苏州市工业园区室内外大气样品均检出了 PBDEs, \sum_7 PBDEs 被定义为 BDE-28、-47、-100、-99、-154、-153 和-183 含量之和, \sum_7 PBDEs 加上 BDE-209 为 \sum_8 PBDEs。苏州市室内和室外 PM_{10} 中 \sum_8 PBDEs 的含量分别为 9.22 ~ 64.15 $\text{pg}\cdot\text{m}^{-3}$ (均值为 20.93 $\text{pg}\cdot\text{m}^{-3}$) 和 1.06 ~ 8.44 $\text{pg}\cdot\text{m}^{-3}$ (均值为 5.11 $\text{pg}\cdot\text{m}^{-3}$)。室内 PM_{10} 中 BDE-

209 的含量范围为 $5.71 \sim 47.20 \text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$ (均值为 $14.49 \text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$), 见表 2; 室外 PM_{10} 中 BDE-209 的含量范围为 $0.77 \sim 4.48 \text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$ (均值为 $2.74 \text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$). 整体上室内大气中 $\sum_8 \text{PBDEs}$ 和 BDE-209 的含量均显著高于室外大气中含量 ($P <$

0.05). 这可能是室内环境中含有丰富的家具、装饰材料、电子电器等, 它们在被使用过程中, PBDEs 能从材料或产品释放到室内环境, 通风条件差和室内温度高都将造成室内环境中 PBDEs 污染更加严重.

表 2 苏州市室内外大气中 PBDEs 的含量¹⁾/ $\text{pg}\cdot\text{m}^{-3}$

Table 2 Concentrations of airborne PBDEs in indoor and outdoor air/ $\text{pg}\cdot\text{m}^{-3}$

化合物	车间	办公室	家庭住宅	苏州室内	室外
BDE-28	0.59 (0.37 ~ 0.75)	0.85 (0.64 ~ 1.14)	0.5 (ND ~ 1.01)	0.62 (ND ~ 1.14)	0.31 (ND ~ 0.37)
BDE-47	3.36 (1.92 ~ 5.63)	1.77 (1.52 ~ 2.23)	1.20 (ND ~ 1.44)	1.83 (ND ~ 5.63)	0.65 (0.04 ~ 1.32)
BDE-99	3.84 (2.31 ~ 6.36)	1.55 (1.12 ~ 1.90)	1.38 (0.94 ~ 1.72)	1.92 (0.94 ~ 6.36)	0.84 (0.18 ~ 1.51)
BDE-100	1.11 (ND ~ 1.47)	0.88 (0.46 ~ 1.41)	0.49 (ND ~ 0.85)	0.72 (ND ~ 1.47)	0.37 (ND ~ 0.46)
BDE-154	0.55 (ND ~ 0.55)	0.55 (ND ~ 0.55)	0.56 (ND ~ 0.2)	0.56 (ND ~ 0.92)	0.32 (ND ~ 0.55)
BDE-153	1.26 (1.20 ~ 1.35)	0.73 (ND ~ 0.81)	0.59 (ND ~ 1.00)	0.77 (ND ~ 1.35)	0.33 (ND ~ 0.64)
BDE-183	1.18 (1.09 ~ 1.27)	0.79 (0.56 ~ 0.94)	0.56 (ND ~ 1.02)	0.76 (ND ~ 1.27)	0.27 (ND ~ 0.42)
$\sum_7 \text{PBDEs}$	11.33 (7.0 ~ 16.95)	6.45 (5.35 ~ 7.55)	4.61 (3.5 ~ 5.71)	6.44 (3.5 ~ 16.95)	2.23 (0.29 ~ 3.96)
BDE-209	31.26 (12.37 ~ 47.20)	15.4 (13.33 ~ 17.25)	7.75 (5.71 ~ 10.25)	14.49 (5.71 ~ 47.20)	2.74 (0.77 ~ 4.48)
$\sum_8 \text{PBDEs}$	42.59 (19.37 ~ 64.15)	21.85 (19.78 ~ 24.33)	12.35 (9.22 ~ 15.96)	20.93 (9.22 ~ 64.15)	5.11 (1.06 ~ 8.44)

1) 表示均值, 括号内表示范围, ND 表示未检出, 下同

对于室内大气 PM_{10} , 苏州市工业园区工业区分区中 $\sum_7 \text{PBDEs}$ 的含量显著高于居住区 ($P < 0.05$), 但车间与办公区、办公区与居住区之间无显著差异 ($P > 0.05$), 车间 BDE209 含量显著高于办公室和居住区 ($P < 0.05$), 但办公室与居住区之间无显著差异 ($P > 0.05$). 一个典型的办公室通常包括建筑装饰品、办公家具及电子设备 (如计算机、显示器和打印机) 等, 而家庭或公寓也通常含有家庭用品、电子设备和家具. 办公室和家庭室内大气中 PBDEs 来源可能相一致. 对于室外大气, 工业区

室外中 $\sum_7 \text{PBDEs}$ 和 BDE-209 的含量与居住区室外均无显著差异 ($P = 0.06$ 和 0.107), 这说明工业区与居住区室外大气来源一致, 另外由于居住区室外大气样品数量少, 统计分析可能引起假阳性误差.

不同采样点大气中 PBDEs 含量存在较大差异, PBDEs 总含量在 S-ID20 电器生产车间和 S-ID24 电缆生产车间较高 (见图 2). PBDEs 作为一种溴代阻燃剂, 被广泛应用于电子电器产品, 在电器和电缆生产过程中高温塑型将会加速了 PBDEs 从产品或

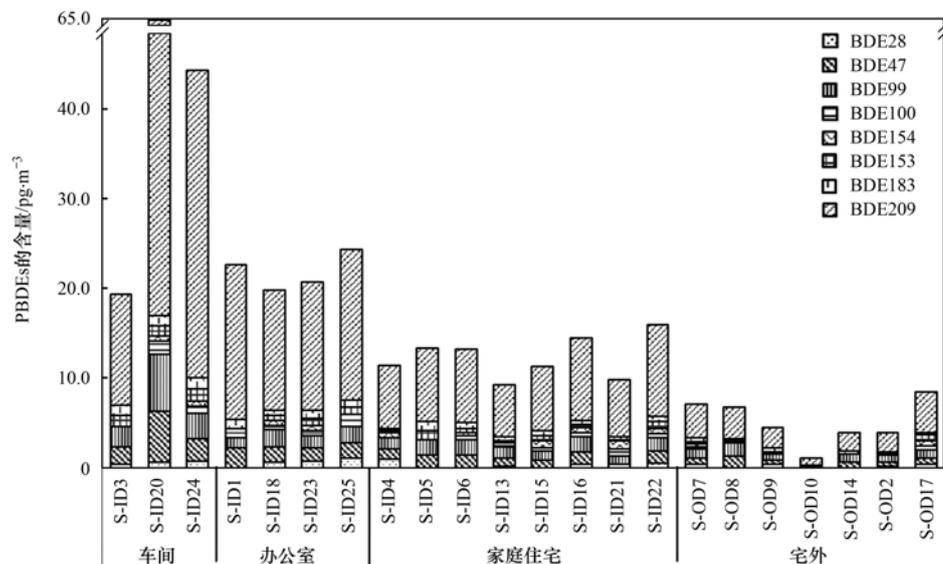


图 2 苏州市大气中 PBDEs 同系物的含量

Fig. 2 Concentration of PBDEs congeners in the atmosphere in Suzhou City

原材料中释放到室内环境,且车间通风情况差,高浓度的 PBDEs 在室内环境内富集.最低值发现在 S-OD10 阳澄湖风景区,主要从事传统的种植和养殖业,无明显 PBDEs 污染源,这说明苏州 PBDEs 污染趋势与城市化和工业化有关.

大气 PM_{10} 中 BDE-209 是主要成分,占总 PBDEs 的 50.86%~77.3% (均值为 63.1%).这与许多地区大气主要成分一致^[13].室内外 PM_{10} 中 BDE-209 占总 PBDEs 的质量分数分别为 66.5% 和 55.8%.一方面是 BDE-209 在我国并未禁止使用,另一方面由于 BDE209 较低的蒸气压 [25°C , $V_p \ll 1$ mm Hg 柱 (133 Pa)] 和较高的辛醇/水分配系数 ($\lg K_{ow} = 10.0$),较强的亲脂性,一旦从产品中挥发出来, BDE-209 容易吸附于具有较大比表面积和较高有机质含量的大气颗粒物的表面.

BDE-209 之后是 BDE-99 和 BDE-47 (如图 2),分别占总 PBDEs 的 12.1% 和 9.8%,车间室内大气中 PBDEs 受车间的半开放空间限制,可能通风系统是车间室内 PBDEs 向室外转移的主要途径.苏州室内 BDE-99 贡献率 (9.76%) 小于室外 (17.19%),这说明室外大气 PBDEs 主要受污染源影响,除了室内外空气的对流和交换,还有可能大气二次传输-释放和长距离转移.

不同地区室内外大气中 PBDEs 含量差异较大 (见表 3),主要由于不同的释放强度,测定 PBDEs 单体种类和数量、大气状态、采样方法和采样季节等不同.苏州室外大气中 PBDEs 平均含量明显低于西安、香港、希腊城市区和太原,与杭州室外大气相当,稍高于希腊北部背景值;苏州工业园区车间中 PBDEs 含量显著低于齐齐哈尔工业区,较高

表 3 各个城市或地区室内外大气颗粒物中 PBDEs 的含量/ $\text{pg}\cdot\text{m}^{-3}$

Table 3 PBDE concentrations in the atmospheric particulate matters from different cities and regions/ $\text{pg}\cdot\text{m}^{-3}$

样品类型	样品来源	时间	PBDE 单体 ¹⁾	\sum PBDEs ²⁾	文献
颗粒相	杭州办公室内	2011-06~2011-12	BDE28、 47 、 99 、153、183	39.76 (18.35~59.77)	[14]
气相+颗粒相	西安室外	2008-08~2009-07	BDE-17、28、47、66、85、99、100、153、154、138、183、 209	237.64 (37.43~884.24)	[15]
颗粒相	杭州家庭室内	2011-06~2011-12	BDE28、 47 、 99 、153、183	23.35 (10.98~35.59)	[9]
颗粒相	杭州室外	2011-06~2011-12	BDE28、 47 、 99 、153、183	5.63 (4.54~7.36)	[9]
TSP	广州家庭室内		BDE-3、7、15、17、28、49、71、 47 、66、 100 、119、 99 、85、126、154、153、138、156、184、183、191、197、196、207、206、 209	459 (117~1.14 $\times 10^3$)	[16]
$PM_{2.5}$	广州家庭室内	2010-04-12		239 (52.9~2.03 $\times 10^3$)	[16]
$PM_{2.5}$	香港家庭室内		BDE-3、7、15、17、28、49、71、 47 、66、 100 、119、 99 、85、126、154、153、138、156、184、183、191、197、196、207、206、209	43.8 (0.25~160)	[16]
$PM_{2.5}$	太原室外	2013-10~2014-07	BDE28、47、100、99、154、153、183、 209	10.9 (1.62~36.5)	[17]
气相+颗粒相	齐齐哈尔工业区-室外	2014-05	BDE-17、28、47、66、85、100、99、138、154、153、183、 209	53.6 (13.9~102)	[18]
$PM_{2.5}$	台湾室内	2013-05~2013-10	BDE-28、47、99、100、153、154、183、196、197、203、206、207、208、 209	116	[13]
$PM_{2.5}$	台湾室外			79	[13]
$PM_{2.5}$	中国东海室外	2011-11~2012-08	BDE-17、28、47、66、71、85、99、100、138、153、154、183、190、 209	13.1	[19]
TSP	希腊北部工业-室外			28.7	[20]
TSP	希腊北部交通-室外	2012~2013	BDE-15、17、28、49、 47 、66、100、 99 、154、153、183	19.5	[20]
TSP	希腊北部背景-室外			3.87	[20]
PM_{10}	上海办公室内	2012~2013.2	BDE-17、28、33、47、49、66、99、100、138、153、154、183、190、196、203、206、207、208、 209	110.7	[21]
TSP				148	
PM_{10}	苏州车间室内			42.59 (19.37~64.15)	
PM_{10}	苏州办公室内			21.85 (19.78~24.33)	
PM_{10}	苏州家庭室内	2016-01~02	BDE-28、 47 、100、 99 、154、153、 183 、 209	12.35 (9.22~15.96)	本研究
PM_{10}	苏州室外			5.11 (1.06~8.44)	

1) 黑体表示 PBDE 主要成分, 2) 括号外表示均值, 括号内表示范围

于希腊北部工业区; 苏州办公室室内 PBDEs 平均含量低于上海和杭州; 苏州家庭室内 PBDEs 平均含量远远低于广州、上海、香港和台湾等地, 这表明苏州室内外大气中 PBDE 含量在我国地区整体处于较低水平. 这可能由于本研究选择的 PBDEs 同系物数量少于已报道文献, 也可能与当地人口密度低有关^[22].

2.2 PBDEs 的初步来源

利用相关性分析大气中 PBDEs 之间相关关系 (见表 4), BDE-28、BDE-100、BDE-99 和 BDE-183 之间呈显著性相关, BDE-183 与 BDE-100、BDE-99 和 BDE-153 之间呈显著相关 ($P < 0.05$, 相关系数分别为 0.668、0.652 和 0.914), 可能他们的来源相似, 但 BDE-183 与 BDE-154 之间相关性不显著, 可能由于 BDE-154 检出率较低, 出现假阳性结果.

BDE-47 和 BDE-99 是五溴联苯醚商业品的主要成分, 探索 PBDEs 来源的另一种方法, 将样品中

BDE-47 和 BDE-99 比值与五溴联苯醚商业品中 BDE-47 和 BDE-99 之间比值进行比较. 在车间、办公室和家庭室内 PM_{10} 中 BDE-47/BDE-99 的平均比值分别为 0.86、1.23 和 0.83, 这与上海办公室内大气 (包括 TSP 和气相) 中比值 (0.85)^[21] 和已报道的五溴联苯醚商业品 Bromkal 70-5DE (0.96)、DE-71 (0.79)^[23] 非常接近, 这说明在采样点附近产品中可能混合用这两种五溴联苯醚商业品. 而办公室 BDE-47 含量较高, 可能来自高溴代联苯醚的降解. 室外 PM_{10} 中 BDE-47/BDE-99 的平均比值为 0.69, 低于希腊北部工业 (1.03)、交通 (1.11) 和背景点 (1.21) 冬季大气 (包括 TSP 和气相) 的 BDE-47/BDE-99 比值^[20], 这由于室温时大气中 20% 的 BDE-47、60% ~ 90% 的五溴-六溴联苯醚和 100% 的 BDE-209 分布在大气颗粒相^[24]. 另外 BDE-47 的释放系数大 BDE-99 好几倍, BDE-47 蒸气压低, 易于通过空气-表面交换二次释放到大气.

表 4 PBDEs 各个同系物的含量和 TOC 之间的相关系数¹⁾

Table 4 Correlation coefficient of the concentrations of individual PBDEs and TOC

	BDE-28	BDE-47	BDE-99	BDE-100	BDE-154	BDE-153	BDE-183	BDE-209	\sum_7 PBDEs
BDE-28	1								
BDE-47	0.303	1							
BDE-99	0.272	0.964 ^b	1						
BDE-100	0.628 ^a	0.752 ^b	0.617 ^a	1					
BDE-154	0.276	0.222	0.065	0.248	1				
BDE-153	0.238	0.633 ^b	0.633 ^b	0.528	0.250	1			
BDE-183	0.363	0.718 ^b	0.652 ^b	0.668 ^a	0.195	0.914 ^b	1		
BDE-209	0.426	0.941 ^b	0.908 ^b	0.701 ^b	0.208	0.734 ^b	0.751 ^b	1	
\sum_7 PBDEs	0.441	0.960 ^b	0.954 ^b	0.690 ^b	0.198	0.743 ^b	0.753 ^b	0.961 ^b	1
TOC	0.522 ^a	0.792 ^b	0.656 ^b	0.453	0.210	0.712 ^b	0.795 ^b	0.980 ^b	0.977 ^b

1) a 表示在 0.05 水平上显著, b 表示在 0.01 水平上显著

苏州大气颗粒物中 PBDEs 与 TOC 之间的相关系数见表 4, BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153 均呈现显著性相关 ($P < 0.05$), BDE-154 由于检出率较低, 与其他单体无显著相关, 这表明苏州大气颗粒物中这些 PBDE 单体来源一致, 可能主要来自五溴联苯醚商业品, TOC 与 BDE-209 和 \sum_7 PBDEs 之间呈显著相关, 大气中 TOC 将可能影响大气颗粒物中 PBDEs 的污染水平和分布.

2.3 人体呼吸暴露水平

尽管摄入当地食物是 PBDEs 主要暴露途径之一^[25], 但只要不食用当地食品就可以避免当地食物对人体的危害, 在生产车间和办公室, 从业工人通过大气颗粒物呼吸吸入暴露则不可避免. 根据文献^[26], 人体经呼吸道对污染物的日均吸入暴露量计算方法如下:

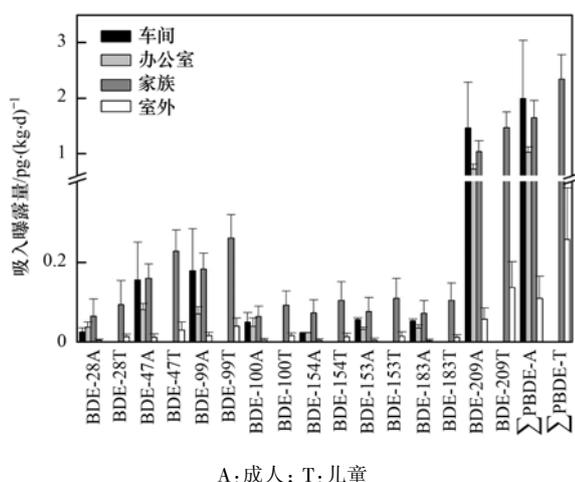
$$ADD = c \times IR \times EDF \times f_r / BW$$

式中, ADD 为呼吸暴露 PBDEs 单体的日均暴露量, $pg \cdot (kg \cdot d)^{-1}$; C 为大气中 PBDEs 的含量, $pg \cdot m^{-3}$; IR (inhalation rate) 为呼吸速率, $m^3 \cdot d^{-1}$, 成人和儿童 (3 ~ 6 岁) 的 IR 分别为 16.5 和 $5.6 m^3 \cdot d^{-1}$ ^[27]; EDF 为 (exposure duration fraction) 暴露频率系数, 即员工一天内在工作场所、家庭和室外中的暴露持续时间, 设定员工在工作场所、家庭和室外分别为 $24 h \times 23.8\%$ 、 $24 h \times 67.9\%$ 和 $24 h \times 8.3\%$ ^[28], 儿童在家庭和室外分别为 $24 h \times 79\%$ 和 $24 h \times 21\%$; f_r 为空气进入肺部的气体交换比 (取 0.75)^[29]; BW (body weight) 为体重, kg, 成人和儿童分别为 63 kg 和 17.5 kg^[27].

儿童和成人在不同功能区通过呼吸室内外大气的吸入暴露量见图 3, PBDEs 吸入暴露量最大值是

通过呼吸家庭室内大气的儿童,其吸入暴露量为 $2.34 \text{ pg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$, 约为成人的 1~2 倍, 最低值是通过呼吸室外大气的成人, 其暴露量为 $0.11 \text{ pg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$, 儿童在车间和办公室无暴露活动情景, 因此车间和办公室员工通过呼吸室内外大气日均暴露量分别为 $3.75 \text{ pg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $2.78 \text{ pg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$ (将工作场所、家庭和室外加和), 低于上海市办公场所呼吸暴露量 [$6.82 \text{ pg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$]^[21].

本研究儿童日均暴露量 [$2.60 \text{ pg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$] (将家庭和室外加和) 低于日本大阪呼吸暴露量 [$13.6 \text{ pg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$]^[30] 和西安市儿童呼吸暴露量 [$13.3 \text{ pg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$]^[15]. 这些结果表明苏州居民经呼吸暴露 PBDEs 的日均暴露量相对较低. PBDEs 经呼吸暴露途径的毒性和流行病数据有限, PBDEs 呼吸暴露的健康风险评估将面临严峻挑战. 比较呼吸暴露在其他暴露途径 (膳食暴露和灰尘摄入) 的贡献率, 尽管目前没有苏州地区膳食暴露和灰尘摄入的数据, 但南京市的饮食^[31] 和室内灰尘中 PBDEs 污染水平 ($310.821 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$)^[32] 均有报道. 假设苏州与南京的饮食方式和居民生活习惯相似, 成人的灰尘摄入率为 $20 \text{ mg} \cdot \text{d}^{-1}$, 苏州成人饮食日均暴露量为 $170 \text{ pg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$ 和灰尘摄入为 $0.077 \sim 2431.6 \text{ pg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$ [均值 $78.9 \text{ pg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$], 呼吸暴露占总暴露量的贡献率仅 1.1%, 但同时考虑经膳食和灰尘摄入等途径引起的人群健康问题, PBDEs 对苏州居民的潜在健康危害仍不容忽视.



A: 成人; T: 儿童

图 3 成人和儿童通过室内外大气呼吸暴露 PBDEs 的日均暴露量

Fig. 3 Estimated daily intake of PBDEs by adults and toddlers through indoor and outdoor air inhalation

3 结论

(1) 苏州室内 PM_{10} 中 $\sum_7 \text{PBDEs}$ 和 BDE-209 平均含量分别是 6.44 和 $14.49 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$; 室外 PM_{10} 中 $\sum_7 \text{PBDEs}$ 和 BDE-209 平均含量分别是 2.23 和 $2.74 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$; 室内 PM_{10} 中 PBDEs 含量高于室外; 不同功能区大气中 PBDEs 平均含量从高到低顺序依次为工业区车间 ($42.59 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$) > 办公室 ($21.85 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$) > 居住区 ($12.35 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$) > 室外 ($5.11 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$). 这主要由于电器和电缆生产车间热塑过程能引起高温, 会加速 PBDEs 从塑料中释放; 办公室含有较多的电脑、打印机等电子电器设备; 居住区主要是家具和装饰物、小型电器等; 室内 PBDEs 污染是室外大气中 PBDEs 来源之一.

(2) BDE-209 的含量远远高于其他单体, 占总 PBDEs 的 50.86%~77.3% (均值为 63.1%). 其次为 BDE-99、BDE-47 和 BDE-183. 苏州 PBDEs 污染以十溴联苯醚和五溴联苯醚为主.

(3) 当地车间员工、办公职工和儿童的呼吸暴露量分别为 3.75 、 2.78 和 $2.60 \text{ pg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$. 儿童在家庭室内和室外的呼吸暴露量均高于成人.

参考文献:

- [1] Stockholm Convention. All POPs listed in the Stockholm Convention [EB/OL]. <http://chm.pops.int/TheConvention/ThePOPs/ListingofPOPs/tabid/2509/Default.aspx>, 2015-10-10.
- [2] Guo J, Lin K F, Deng J J, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers in indoor air during waste TV recycling process [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2015, **283**: 439-446.
- [3] Martellini T, Jones K C, Sweetman A, *et al.* The contribution of waste water treatment plants to PBDEs in ambient air [J]. *Environmental Pollution*, 2012, **169**: 242-247.
- [4] Wyrzykowska-Ceradini B, Gullett B K, Tabor D, *et al.* Waste combustion as a source of ambient air polybrominated diphenylethers (PBDEs) [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(24): 4008-4014.
- [5] Zhu Y J, Sun D, Yang N E, *et al.* Temporal and spatial distributions of PBDEs in atmosphere at Shanghai rural regions, China [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2017, **24**(11): 10885-10892.
- [6] 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.
- [7] Ding N, Wang T, Chen S J, *et al.* Brominated flame retardants (BFRs) in indoor and outdoor air in a community in Guangzhou, a megacity of southern China [J]. *Environmental Pollution*, 2016, **212**: 457-463.

- [8] 李玲, 王春雷, 蒋友胜, 等. 深圳市大气中多溴联苯醚污染水平和特征及人体呼吸暴露分析[J]. 卫生研究, 2012, **41** (5): 776-782.
Li L, Wang C L, Jiang Y S, *et al.* levels and inhalation exposure analysis of polybrominated diphenyl ethers in atmosphere of Shenzhen [J]. Journal of Hygiene Research, 2012, **41** (5): 776-782.
- [9] 孙鑫, 陈颖, 王云华, 等. 杭州市家庭室内空气 PBDEs 的污染现状与特征[J]. 环境科学学报, 2013, **33** (2): 364-369.
Sun X, Chen Y, Wang Y H, *et al.* Pollution status and characteristics of PBDEs in indoor air in Hangzhou [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2013, **33** (2): 364-369.
- [10] Stapleton H M, Sjödin A, Jones R S, *et al.* Serum levels of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in foam recyclers and carpet installers working in the United States [J]. Environmental Science & Technology, 2008, **42** (9): 3453-3458.
- [11] Wang J, Hu Z M, Chen Y Y, *et al.* Contamination characteristics and possible sources of PM₁₀ and PM_{2.5} in different functional areas of Shanghai, China [J]. Atmospheric Environment, 2013, **68**: 221-229.
- [12] Mandalakis M, Atsarou V, Stephanou E G. Airborne PBDEs in specialized occupational settings, houses and outdoor urban areas in Greece [J]. Environmental Pollution, 2008, **155** (2): 375-382.
- [13] Chao H R, Que D E, Gou Y Y, *et al.* Indoor and outdoor concentrations of polybrominated diphenyl ethers on respirable particulate in central and Southern Taiwan [J]. Aerosol and Air Quality Research, 2016, **16** (12): 3187-3197.
- [14] 蒋欣慰, 孙鑫, 裴小强, 等. 杭州市办公场所室内空气中 PBDEs 的污染现状与特征[J]. 环境科学, 2014, **35** (1): 41-45.
Jiang X W, Sun X, Fei X Q, *et al.* Pollution status and characteristics of PBDEs in indoor air of Hangzhou [J]. Environmental Science, 2014, **35** (1): 41-45.
- [15] 周变红, 张承中, 蒋君丽, 等. 西安市大气中多溴联苯醚的季节变化特征及人体暴露评估[J]. 中国环境科学, 2012, **32** (9): 1591-1596.
Zhou B H, Zhang C Z, Jiang J L, *et al.* Seasonal variations and human exposure assessment of polybrominated diphenyl ethers in air of Xi'an [J]. China Environmental Science, 2012, **32** (9): 1591-1596.
- [16] 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.
- [17] 郭志明, 刘頔, 申铠君, 等. 太原市 PM_{2.5} 中溴代阻燃剂的污染特征及人体暴露水平[J]. 生态毒理学报, 2016, **11** (2): 325-329.
Guo Z M, Liu D, Shen K J, *et al.* Brominated flame retardants in PM_{2.5} in the urban of Taiyuan: characteristics of pollution and human exposure [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2016, **11** (2): 325-329.
- [18] 孟博, 刘丽艳, 马万里, 等. 齐齐哈尔工业区春季大气中 PBDEs 的污染及气粒分配[J]. 哈尔滨工业大学学报, 2016, **48** (2): 63-67.
Meng B, Liu L Y, Ma W L, *et al.* Atmospheric occurrence and gas-particle partitioning of PBDEs in an industrial area of Qiqihar in spring [J]. Journal of Harbin Institute of Technology, 2016, **48** (2): 63-67.
- [19] Li Y Y, Lin T, Wang F W, *et al.* Seasonal variation of polybrominated diphenyl ethers in PM_{2.5} aerosols over the East China Sea [J]. Chemosphere, 2015, **119**: 675-681.
- [20] Besis A, Voutsas D, Samara C. Atmospheric occurrence and gas-particle partitioning of PBDEs at industrial, urban and suburban sites of Thessaloniki, northern Greece: implications for human health [J]. Environmental Pollution, 2016, **215**: 113-124.
- [21] Li Y, Chen L, Ngoc D M, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in PM_{2.5}, PM₁₀, TSP and gas phase in office environment in Shanghai, China: occurrence and human exposure [J]. PLoS One, 2015, **10** (3): e119144.
- [22] Venier M, Hites R A. Flame retardants in the atmosphere near the Great Lakes [J]. Environmental Science & Technology, 2008, **42** (13): 4745-4751.
- [23] La Guardia 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 & Technology, 2006, **40** (20): 6247-6254.
- [24] Shoeib M, Harner T, Ikononou M, *et al.* Indoor and outdoor air concentrations and phase partitioning of perfluoroalkyl sulfonamides and polybrominated diphenyl ethers [J]. Environmental Science & Technology, 2004, **38** (5): 1313-1320.
- [25] Ni H G, Ding C, Lu S Y, *et al.* Food as a main route of adult exposure to PBDEs in Shenzhen, China [J]. Science of the Total Environment, 2012, **437**: 10-14.
- [26] United States Environmental Protection Agency (USEPA). Supplemental guidance for inhalation risk assessment. or Part F of volume I of risk assessment guidance for superfund, human health evaluation manual [EB/OL]. https://www.epa.gov/sites/production/files/2015-09/documents/part_f_memo_012809_supp.pdf, 2009-01-28.
- [27] 段小丽. 暴露参数的研究方法及其在环境健康风险评估中的应用[M]. 北京: 科学出版社, 2012.
Duan X L. Research methods of exposure factors and its application in environmental health risk assessment [M]. Beijing: Science Press, 2012.
- [28] Currado G M, Harrad S. Comparison of polychlorinated biphenyl concentrations in indoor and outdoor air and the potential significance of inhalation as a human exposure pathway [J]. Environmental Science & Technology, 1998, **32** (20): 3043-3047.
- [29] He W, Qin N, He Q S, *et al.* Atmospheric PBDEs at rural and urban sites in central China from 2010 to 2013: residual levels, potential sources and human exposure [J]. Environmental Pollution, 2014, **192**: 232-243.
- [30] Kakimoto K, Nagayoshi H, Takagi S, *et al.* Inhalation and dietary exposure to Dechlorane Plus and polybrominated diphenyl ethers in Osaka, Japan [J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2014, **99**: 69-73.
- [31] Su G Y, Liu X H, Gao Z S, *et al.* Dietary intake of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and polychlorinated biphenyls (PCBs) from fish and meat by residents of Nanjing, China [J]. Environment International, 2012, **42**: 138-143.
- [32] 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.

CONTENTS

Air Pollutant Emission Inventory from Iron and Steel Industry in the Beijing-Tianjin-Hebei Region and Its Impact on PM _{2.5}	DUAN Wen-jiao, LANG Jian-lei, CHENG Shui-yuan, <i>et al.</i> (1445)
Simulation of the Spatio-temporally Resolved PM _{2.5} Aerosol Mass Concentration over the Inland Plain of the Beijing-Tianjin-Hebei Region	HAO Jing, SUN Cheng, GUO Xing-yu, <i>et al.</i> (1455)
Effect of Relative Humidity on Particulate Matter Concentration and Visibility During Winter in Chengdu	LIU Fan, TAN Qin-wen, JIANG Xia, <i>et al.</i> (1466)
Vertical Distributional Characteristics of Inorganic Ions of PM _{2.5} at Mt. Huashan, Inland China	CAO Cong, WANG Ge-hui, WU Can, <i>et al.</i> (1473)
Analysis of the Composition of Atmospheric Fine Particles (PM _{2.5}) Produced by Burning Fireworks	XIE Rui-jia, HOU Hong-xia, CHEN Yong-shan (1484)
Chemical Composition Characteristics of PM _{2.5} Emitted by Medium and Small Capacity Coal-fired Boilers in the Yangtze River Delta Region	XU Jian, HUANG Cheng, LI Li, <i>et al.</i> (1493)
Emission Factors of Heavy Metals in Size-resolved Particles Emitted from Residential Coal Combustion	YAN Qin, KONG Shao-fei, LIU Hai-biao, <i>et al.</i> (1502)
Distribution of Oxalate in Atmospheric Aerosols and the Related Influencing Factors in Qingdao, During Winter and Spring	ZHANG Shuai, SHI Jin-hui, YAO Xiao-hong, <i>et al.</i> (1512)
Concentrations and Solubility of Trace Elements in Atmospheric Precipitation in Qingdao	LI Qian, SHI Jin-hui, LI Peng-zhi, <i>et al.</i> (1520)
Occurrence and Gas-particle Partitioning of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Air of Liaodong Bay	ZHANG Yu-feng, SONG Yong-gang, TIAN Jin, <i>et al.</i> (1527)
Analysis of Sources, Pollution Characteristics, and Human Exposure to Atmospheric New Halogenated Flame Retardants in Selected Areas	LI Qi-lu, YANG Kong, LI Jun, <i>et al.</i> (1537)
Contamination Characterization and Human Exposure Levels to Polybrominated Diphenyl Ethers in Indoor and Outdoor Air in Industrial Park of Suzhou City	WANG Jun-xia, GU Hai-dong, ZHANG Zhan-en, <i>et al.</i> (1544)
Effect of Air Pollution on the Cold Disease in Shanghai	YANG Si-xu, MA Yu-xia, ZHOU Jian-ding, <i>et al.</i> (1552)
Fluorescent Dissolved Organic Matter and Its Correlation with Water Quality in a Urban River; A Case Study of the Lujiang River in Beilun, Ningbo	CAO Chang-li, LIANG Meng-qi, HE Gui-ying, <i>et al.</i> (1560)
Relationship Between Landscape Pattern and Water Quality in the Ebinur Lake Region	CAO Can, ZHANG Fei, Ayinigeer·Yalikun, <i>et al.</i> (1568)
CH ₄ Fluxes During the Algal Bloom in the Pengxi River	QIN Yu, ZHANG Yu-yang, LI Zhe, <i>et al.</i> (1578)
Dynamic Variations and Sources of Nitrate During Dry Season in the Lijiang River	MIAO Ying, ZHANG Cheng, XIAO Qiong, <i>et al.</i> (1589)
Heavy Metal Pollution of the Drinking Water Sources in the Lujiang River Basin, and Related Health Risk Assessments	ZHANG Qing-hua, WEI Yong-zhu, CAO Jian-hua, <i>et al.</i> (1598)
Characteristics of Phosphorus Fractions and Phosphate Diffusion Fluxes of Sediments in Cascade Reservoirs of the Huangbai River	LIU Jia, LEI Dan, LI Qiong, <i>et al.</i> (1608)
Occurrence and Ecological Risk Assessment of Typical Persistent Organic Pollutants in Baiyangdian Lake	GAO Qiu-sheng, JIAO Li-xin, YANG Liu, <i>et al.</i> (1616)
Simulating the Fate of Typical Organochlorine Pesticides in the Multimedia Environment of the Pearl River Delta	GAO Zi-wen, XU Yue, YI Ru-han (1628)
Mechanisms and Efficiencies of Removal of PPCPs by Pilot River Water Bypass Treatment Process	LI Li, ZHU Bing, BAI Yao, <i>et al.</i> (1637)
Chlorination of Naproxen; Removal, Transformation and Risk Assessment	FAN Xin-xin, DU Er-deng, LI Jia-qi, <i>et al.</i> (1645)
Removing Typical Odorants in Drinking Water by Vacuum Ultraviolet Combined with Chlorine	SUN Xin, ZHANG Yi, SHI Lu-xiao, <i>et al.</i> (1654)
Degradation of Triclosan by Heat Activated Persulfate Oxidation	JIANG Meng-di, ZHANG Qing-yue, JI Yue-fei, <i>et al.</i> (1661)
Adsorption of Tetracycline on Simulated Suspended Particles in Water	XU Long-feng, WEI Qun-shan, LÜ Qiang, <i>et al.</i> (1668)
Characteristics and Performance of Embedded ANAMMOX Bacteria in Treating Saline Wastewater	SHAN Xiao-jing, YU De-shuang, LI Jin, <i>et al.</i> (1677)
Enhanced Nitrogen Removal of ANAMMOX Treating Saline Wastewater With Betaine Addition	YU De-shuang, WU Guo-dong, LI Jin, <i>et al.</i> (1688)
Pilot-scale Experiment on Enrichment of Nitrifying Activated Sludge and Its Application in Enhancing a Wastewater Biological Treatment System Against Ammonia Shocking Loads	SHENG Xiao-lin, CUI Can-can, WANG Jia-de, <i>et al.</i> (1697)
Effect of Step Feed on Denitrifying Phosphorus and Nitrate Removal in a Modification of the Two Sludge A ² /O-BAF System	NAN Yan-bin, PENG Yong-zhen, ZENG Li-yun, <i>et al.</i> (1704)
Achieving Partial Nitrification in a Continuous-flow Aerobic Granular Sludge Reactor at Different Temperatures Through Ratio Control	LIANG Dong-bo, BIAN Wei, KAN Rui-zhe, <i>et al.</i> (1713)
Mechanism of Action of Activated Sludge Properties in Nitrogen Removal by Endogenous Denitrification Through an Intelligent Aeration-controlled A/O Process	XU Min-yang, HU Zhan-bo, ZHANG Sui-sheng, <i>et al.</i> (1720)
Effect of Temperature on the Performance and Microbial Community Structure in an Integrated Anaerobic Fluidized-bed Membrane Bioreactor Treating Benzothiazole Wastewater	LI Yue, HU Qi, GAO Da-wen (1731)
Removal of Antibiotics During In-situ Sludge Ozone-reduction Process	WANG Lu, BEN Wei-wei, LI Yan-gang, <i>et al.</i> (1739)
Effect of Zero Valent Iron on the Horizontal Gene Transfer of Tetracycline Resistance Genes During Anaerobic Sludge Digestion Process	YANG Fan, XU Wen-li, QIAN Ya-jie, <i>et al.</i> (1748)
Effects of Environmental Factors on the Synergy of Functional Bacteria in Completely Autotrophic Granular Sludge	CHEN Xi, QIAN Fei-yue, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (1756)
Microbiological Characteristics of a Post Solid-Phase Denitrification Biofilter Process	ZHANG Qian, JI Fang-ying, XU Xuan (1763)
Aerobic Denitrification and Microbial Community Shift in SBR Bioaugmented with Strains YH01 and YH02	CHEN Hai-sheng, CAO Gang, ZHANG Di, <i>et al.</i> (1773)
Performance, Sludge Characteristics, and the Microbial Community Dynamics of Bulking Sludge Under Different Nitrogen and Phosphorus Imbalances	HE Xue-meng, DING Li-li, ZHANG Lu-lu, <i>et al.</i> (1782)
Degradation Characteristics and Metabolic Pathway of a Pyrene-Degrading <i>Pseudomonas aeruginosa</i> Strain	LI Xiang, ZHANG Xue-ying, ZHOU Jun, <i>et al.</i> (1794)
Driving Factors of the Dynamics of Microbial Community in a Dam of Copper Mine Tailings	LI Cui, JING Ju-hui, LIU Jin-xian, <i>et al.</i> (1804)
Effects of Reclamation on Soil Nutrients and Microbial Activities in the Huixian Karst Wetland in Guilin	HUANG Ke-chao, SHEN Yu-yi, XU Guang-ping, <i>et al.</i> (1813)
Effects of the Farmland-to-Forest/Grassland Conversion Program on the Soil Bacterial Community in the Loess Hilly Region	CHEN Meng-li, ZENG Quan-chao, HUANG Yi-mei, <i>et al.</i> (1824)
Insight into the Mechanism of Feamnox in the Surface Soils of a Riparian Zone	DING Bang-jing, LI Zheng-kui, ZHU Hong-jie, <i>et al.</i> (1833)
Soil Degradation-Associated Microbial Community Structure Changes in an Alpine Meadow Under Tibetan Pig Herding	ZHAN Peng-fei, XIAO De-rong, YAN Peng-fei, <i>et al.</i> (1840)
Characteristics of Iron Plaque and Its Heavy Metal Enrichment in Typical Mangrove Plants in Shenzhen Bay, China	SHEN Xiao-xue, LI Rui-li, CHAI Min-wei, <i>et al.</i> (1851)
Spatial Distribution of DDTs and PCBs in Wild Fish from Hong Kong Coastal Areas and Potential Human Health Risk Assessment	SU Yang, BAO Lian-jun, ZENG Eddy Y (1861)
Pollution Characteristics of PAHs in Soil from a Remote Mountain Wetland-Dajuhu Lake, Shengongjia	HU Tian-peng, XING Xin-li, KE Yan-ping, <i>et al.</i> (1872)
Migration and Transformation of Mercury in Unsubmerged Soil and Sediment at One Typical Forest Reservoir in Southwest China	SUN Tao, MA Ming, WANG Yong-min, <i>et al.</i> (1880)
Accumulation of Cd and Its Risks in the Soils of the Xijiang River Drainage Basin in Guangxi	SONG Bo, YANG Zi-jie, ZHANG Yun-xia, <i>et al.</i> (1888)
Effects of Long-term Fertilization Regimes on As Accumulation in Upland Red Earth and the Crops Growing on It	ZHANG Rong, YU Guang-hui, LI Ya-qing (1901)
Effects of a Tribasic Amendment on Cadmium and Arsenic Accumulation and Translocation in Rice in a Field Experiment	GU Jiao-feng, ZHOU Hang, JIA Run-yu, <i>et al.</i> (1910)
Quantitative Relationship Between Paddy Soil Properties and Cadmium Content in Rice Grains	WANG Meng-meng, HE Meng-yuan, SU De-chun (1918)
Effect of Ca-bentonite on Cu and Zn Forms in Compost and Soil, and Their Absorption by Chinese Cabbage	ZHAO Jun-chao, WANG Quan, REN Xiu-na, <i>et al.</i> (1926)
Effects of Short-term Exogenous Nitrogen and Carbon Input on Soil Respiration Under Changing Precipitation Pattern	HE Yun-long, QI Yu-chun, PENG Qin, <i>et al.</i> (1934)
Effects of Simulated Precipitation Reduction on Soil Respiration in a Soybean-Winter Wheat Rotation Cropland	WANG Zhao-hui, CHEN Shu-tao, SUN Lu, <i>et al.</i> (1943)
Seasonal Variation in Nitric Oxide Emission from an Agricultural Headwater Ditch in the Hilly Purple Soil Area and the Factors Influencing Emission	TIAN Lin-lin, REN Guang-qian, ZHU Bo (1952)
Effects of Seasonal Asymmetric Warming on Soil CO ₂ Release in Karst Region	TANG Guo-yong, ZHANG Chun-hua, LIU Fang-yan, <i>et al.</i> (1962)