

DOI:10.7524/j.issn.0254-6108.2021020202

鲍茜, 郑姚颖, 沈大航, 等. 十溴二苯乙烷的污染现状及环境行为研究进展[J]. 环境化学, 2022, 41(6): 1905-1919.

BAO Qian, ZHENG Yaoying, SHEN Dahang, et al. Research progress on the pollution status and environmental behaviors of decabromodiphenyl ethane[J]. Environmental Chemistry, 2022, 41 (6): 1905-1919.

十溴二苯乙烷的污染现状及环境行为研究进展*

鲍 茜 郑姚颖 沈大航 叶庆富 王 伟**

(浙江大学原子核农业科学研究所, 农业农村部 and 浙江省核农学重点实验室, 杭州, 310058)

摘 要 新型溴系阻燃剂十溴二苯乙烷(decabromodiphenyl ethane, DBDPE)是十溴联苯醚(decabromodiphenyl ether, BDE-209)的主要替代品, 使用量和产量逐年上升, 其环境安全性问题备受重视. 本文在论述DBDPE基本理化性质及环境污染现状的基础上, 系统总结了目前有关DBDPE在不同环境介质中的行为与归趋研究进展(如环境迁移、代谢与降解、动植物吸收富集等), 并从风险熵法和危害指数法两个方面对有关DBDPE风险评估的研究进行了综述. 最后, 指出了当前研究存在的不足并对今后的研究方向作出展望. 本文将有助于系统认识DBDPE的环境效应, 为后续DBDPE环境行为研究及环境污染监管提供参考依据.

关键词 十溴二苯乙烷, 环境污染, 环境行为, 风险评估.

Research progress on the pollution status and environmental behaviors of decabromodiphenyl ethane

BAO Qian ZHENG Yaoying SHEN Dahang YE Qingfu WANG Wei**

(Institute of Nuclear Agricultural Sciences, Key Laboratory of Nuclear Agricultural Sciences of Ministry of Agriculture of PRC and Zhejiang Province, Zhejiang University, Hangzhou, 310058, China)

Abstract Decabromodiphenyl ethane (DBDPE), a novel brominated flame retardant, is a primary substitute for decabromodiphenyl ether (BDE-209). The use and production of DBDPE are increasing year by year, and its environmental safety has received extensive attention. This paper summarized the physicochemical properties and pollution status of DBDPE in the environment and reviewed the main research progress on the behaviors and fate of DBDPE in the environment (such as environmental transportation, metabolism, degradation, absorption, and bioaccumulation in plants and animals). It also summarized the research progress on DBDPE risk assessment basing on the risk quotient method and hazard index method. The existing problems and future research prospects were also discussed. The review will help better understand the environmental impacts of DBDPE and guide the subsequent study on its environmental behaviors and pollution supervision.

Keywords decabromodiphenyl ethane, environmental pollution, environmental behaviors, risk assessment.

十溴二苯乙烷(decabromodiphenyl ethane, DBDPE)属于新型溴系阻燃剂(new brominated flame retardants, NBRFRs)的一种, 于1990年初开始作为十溴联苯醚(decabromodiphenyl ether, BDE-209)的替

2021年2月2日收稿(Received: February 2, 2021).

* 国家自然科学基金(22076162)资助.

Supported by the National Natural Science Foundation of China (22076162).

** 通信联系人 Corresponding author, Tel: 0571-87072695, E-mail: wei_wang@zju.edu.cn

代品在商业上得到广泛应用^[1]. DBDPE 具有热稳定性好、抗紫外线能力强、渗出率低等优点,在高聚物合成材料、塑料、纤维、树脂、橡胶、建材等材料中都有所应用^[2-3]. 作为添加型阻燃剂, DBDPE 以物理分散状态与基材共混,两者间没有化学键相连^[4]. 因此,在生产、使用和废物处置等环节, DBDPE 都容易从产品中释放进入环境^[5].

近年来,随着 BDE-209 的逐步淘汰, DBDPE 的生产和使用量逐年上升,其在大气、粉尘、土壤、沉积物、水体等环境介质中的检出浓度亦呈不断攀升的趋势. 中国是溴系阻燃剂生产和使用大国,2006 年至 2016 年 DBDPE 生产总量约 23 万吨,污染形势较国外更为严峻^[6]. 中国部分城市粉尘中 DBDPE 检出浓度已超过所有多溴联苯醚(poly brominated diphenyl ethers, PBDEs)的总和^[7],杭州郊区土壤中 DBDPE 是检出浓度最高的新型溴系阻燃剂^[8]. 现有研究表明, DBDPE 在生物体内也已广泛存在. 如广东某电子垃圾回收站周边池塘鲤鱼肌肉组织中 DBDPE 的检出浓度为 440—1000 ng·g⁻¹(脂重)^[9],青蛙体内的检出浓度为 15.1—149 ng·g⁻¹(脂重)^[10]. 浙江温岭电子拆解工人头发和血清中 DBDPE 的平均检出浓度分别为 82.5 ng·g⁻¹(干重)和 125.2 ng·g⁻¹(脂重)^[11]. 北京母乳样本中 DBDPE 检出率达 100%,浓度为 0.422—28.6 ng·g⁻¹(脂重)^[12].

DBDPE 具有持久性、生物积累性、毒性以及长距离迁移能力^[4],因而对人类健康和生态环境存在潜在危害,由 DBDPE 引起的环境污染问题已经引起人们的高度重视. 本文从污染现状、环境行为及风险评估 3 个方面对近年来有关 DBDPE 的研究进行了综述,为 DBDPE 的环境监管、DBDPE 在环境和生物介质中的迁移转化和定向积累等行为与归趋研究提供相关资料,对科学评价 DBDPE 生态环境安全性具有重要意义.

1 DBDPE 的理化性质及生产使用情况(Physicochemical properties, production and use of DBDPE)

1.1 DBDPE 的化学结构和物理化学性质

DBDPE 和 BDE-209 结构相似,都含有两个苯环, DBDPE 的两个苯环间通过碳链相连,而 BDE-209 的两个苯环间通过醚键相连. 与 BDE-209 相比, DBDPE 两个苯环间的碳链使其构象柔性和疏水性更强^[13]. 由于分子内不含氧原子, DBDPE 在热解过程中产生的多溴代二苯并二噁英(PBDDs)及多溴代二苯并呋喃(PBDFs)等高毒性化合物的浓度将远低于分子内含氧原子的溴系阻燃剂^[14].

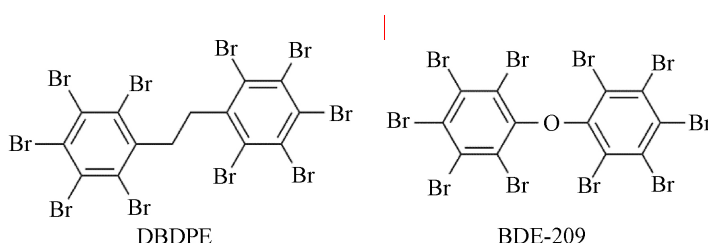


表 1 列出了 DBDPE 一些重要的物理化学性质: 相对分子质量、蒸汽压、正辛醇/水分配系数(K_{OW})、正辛醇/空气分配系数(K_{OA})等. DBDPE 的这些性质会对其环境行为及转化归趋产生重要影响. 例如, DBDPE 的低蒸汽压和高 K_{OA} 值使得其难以挥发到空气中,而易吸附于空气中的颗粒表面. DBDPE 的低溶解度和高 K_{OW} 值使得其在进入水生环境后主要在沉积物中积累. DBDPE 的高 K_{OC} 值则使其容易吸附于土壤有机碳.

1.2 生产和使用情况

作为 BDE-209 的替代品, DBDPE 已在世界范围内大量生产和使用. DBDPE 在 2006 年的全球产量为 4540—22700 吨,2012 年则为 22700—45400 吨^[5]. 中国是 DBDPE 的生产大国,2006 年的年产量为 12000 吨,2016 年增加到 31000 吨^[6,17]. 且自 2012 年以来,我国 DBDPE 的年产量(25000 吨)就已经超过 BDE-209,占中国溴系阻燃剂总产量的四分之一^[18-19]. 在日本, DBDPE 的年消费量在 1993—2014 年间逐年增加,并自 1997 年起超过 BDE-209^[20]. 2000—2016 年间,北美共从中国的电气与电子设备中进口了超过 19500 吨 DBDPE^[6]. 而随着各国对 BDE-209 禁令的出台以及 2017 年 BDE-209 被列入《斯德哥尔摩公约》的持久性有机污染物清单,作为其替代品的 DBDPE 今后的需求和生产量将极有可能进一步增加^[21].

表 1 DBDPE 的物理化学性质

Table 1 Physicochemical properties of DBDPE

参数 Parameter	数值 Value	参考文献 Reference
分子式	C ₁₄ H ₄ Br ₁₀	[13]
相对分子质量	971.22	[5]
熔点/°C	345—350	[5]
沸点/°C	675±50	[13]
分解温度/°C	>320	[13]
蒸汽压/Pa (25 °C)	6.00×10 ⁻¹⁵	[15]
溶解度/(mg·L ⁻¹)(25 °C)	2.10×10 ⁻⁷	[15]
辛醇-水分配系数(lg K _{OW})	11.1	[15]
辛醇-空气分配系数(lg K _{OA})(25 °C)	19.22	[15]
有机碳-水分配系数(lg K _{OC})	7.00	[16]

2 DBDPE 的污染现状(Environmental pollution status of DBDPE)

目前, DBDPE 广泛存在于大气、粉尘、土壤、水体、沉积物、污水污泥等环境介质中, 并且浓度呈不断攀升的趋势. 表 2 总结了不同环境介质、不同地区、不同采样时间 DBDPE 的检出浓度.

表 2 DBDPE 在不同环境介质中的浓度

Table 2 Concentration of DBDPE in different environmental media

环境介质 Environmental media	采样点 Sampling site	中位数和/或浓度范围 Median and/or concentration range	采样时间 Sampling time	参考文献 Reference
大气	爱尔兰垃圾填埋场	<0.9—2 pg·m ⁻³	2018.11—2019.1	[22]
	瑞典斯德哥尔摩(室外)	0.15 (<0.12—0.33) pg·m ⁻³	2012	[23]
	瑞典斯德哥尔摩(室内)	<90—250 pg·m ⁻³	2012	[23]
	印度比哈尔邦(室内)	273 (116—15358) pg·m ⁻³	2015.8—2015.10	[26]
	中国广东广州工业园区	414 (57.6—2472) pg·m ⁻³	2015—2016	[25]
	巴基斯坦卡拉奇 电子垃圾回收站	67.5 (8.5—99.5) ng·m ⁻³	2014.8	[28]
	中国山东DBDPE生产厂	213 (12.7—435) μg·m ⁻³	2016	[27]
粉尘	英国伯明翰家庭	41 (<1.2—2300) ng·g ⁻¹	2015.2—2015.5	[33]
	英国伯明翰办公室	440 (<1.2—17000) ng·g ⁻¹	2015.2—2015.5	[33]
	澳大利亚墨尔本家庭	1600 (ND—9000) ng·g ⁻¹	2016.9	[60]
	澳大利亚墨尔本办公室	1900 (ND—10000) ng·g ⁻¹	2016.9	[60]
	澳大利亚墨尔本汽车	1900 (ND—3900) ng·g ⁻¹	2016.9	[60]
	中国广州家庭	4600 (153—96410) ng·g ⁻¹	2015.9—2016.7	[61]
	中国广东广州城市(室内)	727 (241—4420) ng·g ⁻¹	2013.9—2014.3	[31]
	中国广东清远农村(室内)	665 (211—1900) ng·g ⁻¹	2013.9—2014.3	[31]
	中国广东清远电子垃圾 回收站车间	2720 (669—15000) ng·g ⁻¹	2013.9—2014.3	[31]
中国浙江、广东电子垃圾拆解场地	140—170000 ng·g ⁻¹	2013.7—2013.12	[32]	
土壤	巴西垃圾填埋场	2664 (ND—5910) ng·g ⁻¹	2015	[62]
	中国山东寿光DBDPE生产厂周边	610 (12—9000) ng·g ⁻¹ (干重)	2014.8	[41]
	澳大利亚墨尔本电子垃圾回收站周边	<45 (ND—37000) ng·g ⁻¹ (干重)	2017.11	[34]
	中国广东贵屿电子垃圾回收站周边 (非根际土壤)	15.35 (7.33—134) ng·g ⁻¹ (干重)	2012.12	[63]

续表 2

环境介质 Environmental media	采样点 Sampling site	中位数和/或浓度范围 Median and/or concentration range	采样时间 Sampling time	参考文献 Reference
土壤	中国广东贵屿电子垃圾回收站周边 (根际土壤)	33.1 (10.1—348) ng·g ⁻¹ (干重)	2012.12	[63]
	巴西垃圾填埋场	1.7 (ND—83) ng·g ⁻¹ (干重)	2015	[62]
	中国山东寿光农田	12—344 ng·g ⁻¹ (干重)	2008.5	[43]
	中国青藏高原	<LOQ—1450 pg·g ⁻¹ (干重)	2012.5	[44]
沉积物	中国广东广州红树林湿地	14.9 (3.7—26) ng·g ⁻¹ (干重)	2015.11	[54]
	中国广东珠海红树林湿地	9.33 (5.16—21.5) ng·g ⁻¹ (干重)	2015.11	[54]
	中国广东深圳红树林湿地	10.5 (7.7—14.41) ng·g ⁻¹ (干重)	2015.11	[54]
	南非瓦尔河	176.06 (59—350) ng·g ⁻¹ (干重)	2017.10—2017.12	[50]
	中国珠江三角洲地区	1.520—1714 ng·g ⁻¹ (干重)	2013	[52]
	中国大鹏湾	122.1 (4.37—276.4) ng·g ⁻¹ (干重)	2013	[52]
	中国黄海海湾	0.16—39.7 ng·g ⁻¹ (干重)	2014	[53]
欧洲水产养殖场底泥	<0.01—2.41 ng·g ⁻¹ (干重)	2016	[64]	
水体	中国广东东江(颗粒相)	48 (37—110) ng·g ⁻¹	2010.5	[47]
	中国广东东江(溶解相)	13 (13—38) pg·L ⁻¹	2010.5	[47]
	中国渤海海水(溶解相)	ND—91.44 pg·L ⁻¹	2016—2017	[48]
	爱尔兰垃圾填埋场地下水	9.35 (1.3—630) ng·L ⁻¹	2018.11—2019.1	[22]
污水污泥	中国哈尔滨污水处理厂污水(入口)	<LOQ—86.13 ng·L ⁻¹	2012—2013	[55]
	中国哈尔滨污水处理厂污水(出口)	<LOQ—17 ng·L ⁻¹	2012—2013	[55]
	中国哈尔滨污水处理厂(好氧污泥)	50.8—911 ng·g ⁻¹ (干重)	2012—2013	[55]
	中国哈尔滨污水处理厂(脱水污泥)	57.6—577 ng·g ⁻¹ (干重)	2012—2013	[55]
	西班牙加泰罗尼亚污水处理厂污泥	62.5 (ND—257) ng·g ⁻¹ (干重)	2009	[58]
	中国广州污水处理厂污泥	4090 (675.4—27438.6) ng·g ⁻¹ (干重)	2013—2014	[59]
	韩国生活污水处理厂污泥	<LOQ—89.2 ng·g ⁻¹ (干重)	2011.7—2011.10	[57]
	韩国生活-工业混合污水处理厂污泥	<LOQ—108 ng·g ⁻¹ (干重)	2011.7—2011.10	[57]
	韩国工业污水处理厂污泥	<LOQ—3100 ng·g ⁻¹ (干重)	2011.7—2011.10	[57]
澳大利亚污水处理厂生物固体	600 (ND—1100) ng·g ⁻¹ (干重)	2017.9—2018.4	[60]	

注: ND—未检出; LOQ—定量限。 Note: ND—not detectable; LOQ—limit of quantitation.

2.1 大气

DBDPE 具有低蒸汽压(25 °C 下为 6.00×10^{-15} Pa)和高 K_{OA} 值(25 °C 下 $\lg K_{OA}$ 为 19.22), 因此不易挥发到空气中, 在大气中的检出浓度一般较低。例如, DBDPE 在爱尔兰垃圾填埋场空气中的检出浓度为 $<0.9—2$ pg·m⁻³, 在瑞典斯德哥尔摩室外空气中的检出浓度则为 $<0.12—0.33$ pg·m⁻³[22–23]。Venier 等[24] 检测到加拿大、美国室内空气中的 DBDPE 浓度中值分别为 9.2 pg·m⁻³ 和 42 pg·m⁻³, 在捷克共和国室内空气中则未检测到 DBDPE。但由于不同国家和地区的 DBDPE 生产和使用情况不同, 其在空气中的检出浓度也有所差别。在印度比哈尔邦的室内建筑和中国广州的工业园区中, DBDPE 的检出浓度中值分别为 273 pg·m⁻³ 和 414 pg·m⁻³[25–26]。在巴基斯坦的电子垃圾回收站中 DBDPE 的检出浓度中值达 67.5 ng·m⁻³, 在中国山东的 DBDPE 生产厂中则高达 213 μg·m⁻³[27–28]。Li 等[29] 在 2014 年检测了我国 9 个城市大气中 DBDPE 的浓度, 发现在汽车制造业发达的广州以及电视和有线电视顶盒制造业发达的绵阳, DBDPE 的检出浓度要远于其他城市。

2.2 粉尘

与 BDE-209 类似, DBDPE 可能会由于产品磨损或风化进入大气环境, 主要吸附于粉尘[30]。He 等[31] 发现中国广东城市室内环境中 DBDPE 的检出浓度与农村无显著差异, 但低于广东清远电子垃圾回收

站车间中的 DBDPE 含量。在广东、浙江的 4 个电子垃圾拆解场车间地板上, DBDPE 的平均浓度达 39000—63000 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ ^[32]。在办公室粉尘中, DBDPE 含量通常要高于家庭, 这可能是由于办公室内含 DBDPE 的电子电器产品更多^[33-34]。DBDPE 在汽车中的检出浓度也较高, 在巴西的检出浓度中值为 1360 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$, 在爱尔兰则为 7700 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ ^[35-36]。这可能是由于车内通风受限和温度升高增加了 DBDPE 的释放^[37]。而在不同的室内物品上, DBDPE 的浓度也各不相同。Zheng 等^[38]发现 DBDPE 在家庭和办公室的空调过滤器及电脑桌面上的浓度要比地板和床上更高。Niu 等^[39]检测出家庭地板上 DBDPE 的浓度中值为 185.4 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$, 高于桌子、椅子等家具上的 DBDPE 浓度 (71.43 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$)。此外, BDE-209/DBDPE 的比值变化似乎反映了近年来 DBDPE 替代 BDE-209 程度的增加。比如, 在 2006—2010 年, 比利时室内粉尘中 BDE-209/DBDPE 的比值为 2.5, 到 2016—2017 年则变化为 1.05^[40]。

2.3 土壤

DBDPE 进入土壤环境的主要途径: 一是随着污水处理厂的生物固体(含 DBDPE)以有机肥料的形式施用于土壤, 二是粉尘中的 DBDPE 经大气沉降降落于土壤。DBDPE 在其生产厂和电子垃圾回收站周边土壤中有较高的检出浓度。如在中国山东寿光的 DBDPE 生产厂附近, 其检出浓度中值为 610 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (干重)^[41]; 在澳大利亚墨尔本一个电子垃圾回收站附近, DBDPE 的最高检出浓度为 37000 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (干重)^[34]。Lin 等^[42]对华北地区 5 个省份(北京、天津、河北、山东、山西)土壤中 DBDPE 的含量进行检测, 结果发现山东(中国 DBDPE 主要生产地区)和天津(电子垃圾回收活动频繁地区)的土壤中 DBDPE 检出浓度最高。此外, 在农业土壤、森林土壤甚至青藏高原地区的土壤中, DBDPE 也有所检出^[43-45]。

2.4 地表及地下水

DBDPE 是强疏水性化合物($\lg K_{\text{OW}}=11.1$), 因此在进入水体环境后容易在沉积物中累积, 在水环境介质中的检出频率和浓度相对较低。在北美五大湖中, DBDPE 的检出浓度为 0.25—10.8 $\text{pg}\cdot\text{L}^{-1}$ ^[46]。在中国渤海和东江中, DBDPE 则分别以 ND(未检出)—91.44 $\text{pg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 13—38 $\text{pg}\cdot\text{L}^{-1}$ 的浓度检出^[47-48]。

DBDPE 具有较高的 K_{OC} 值($\lg K_{\text{OC}}=7.00$), 据此可推测其容易吸附于土壤有机碳, 而不易淋溶进入地下水。Gottschall 等^[49]将含有 DBDPE 的生物固体施用于土壤后, 在地下水环境中未检测到 DBDPE。然而, 2018—2019 年采样自爱尔兰垃圾填埋场的地下水样品中, DBDPE 首次被检出, 检出频率为 100%, 浓度为 1.3—630 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 甚至超过了 BDE-209 的检出浓度(5.8—26 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$)^[22]。这表明 DBDPE 的地下水污染风险仍不可忽视。

2.5 水体沉积物

近年来, DBDPE 在沉积物中的检出浓度已经高于 BDE-209^[50-53]。在南非瓦尔河流域的沉积物样品中, DBDPE 的检出浓度为 59—350 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (干重), DBDPE/BDE-209 的比值高达 7.3^[50]。在中国珠江三角洲地区, DBDPE 的检出浓度最高值达 1714 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (干重), 大多数沉积物样品中 DBDPE/BDE-209 的比值大于 1^[52]。我国南方红树林沉积物中有机碳含量丰富, 是 DBDPE 积累的重要场所。如在中国广州、珠海、深圳的红树林沉积物中, DBDPE 的检出浓度为 3.70—26.0 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (干重)^[54]。此外, 由于污水处理厂污水排放等人类活动, 在一些封闭/半封闭海湾的沉积物中, DBDPE 也有所检出^[53]。

2.6 污水污泥

污水处理厂是有机污染物运输和转化的重要场所^[55]。在污水处理厂中, 有机污染物会发生一系列转化并被污泥吸附和积累^[37]。在西班牙加泰罗尼亚州 17 个污水处理厂的污泥中, DBDPE 的检出浓度中值为 62.5 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (干重)^[56]。Lee 等^[57]根据污水的来源, 将韩国 41 个污水处理厂分为了 3 类——生活污水处理厂、生活-工业混合污水处理厂和工业污水处理厂, 平均检出浓度分别为 20.0、29.3、594 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (干重)。而在中国的污水处理厂中, DBDPE 的检出浓度更高。如在中国哈尔滨污水处理厂污泥中, DBDPE 的检出浓度中值为 255.8 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (干重)^[58]。在中国广州的 5 个污水处理厂中, 则报道了迄今为止 DBDPE 检出最高浓度为 680—27400 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (干重), 是其他报道的 10—100 倍^[59]。

3 DBDPE 的环境行为(Environmental behaviors of DBDPE)

DBDPE 生产厂以及电子垃圾回收站是环境中 DBDPE 的重要释放源, 而正在使用中的电子电器产品(以 DBDPE 作为阻燃剂)是室内环境中 DBDPE 的主要来源。此外, 含 DBDPE 产品的运输、固体垃

圾填埋、污水处理等环节都可能释放 DBDPE. 进入环境中的 DBDPE 经大气迁移、大气沉降、吸附、淋溶等过程可实现在各环境介质中的再分配. 如图 1 所示是环境中 DBDPE 的具体来源和迁移示意图.

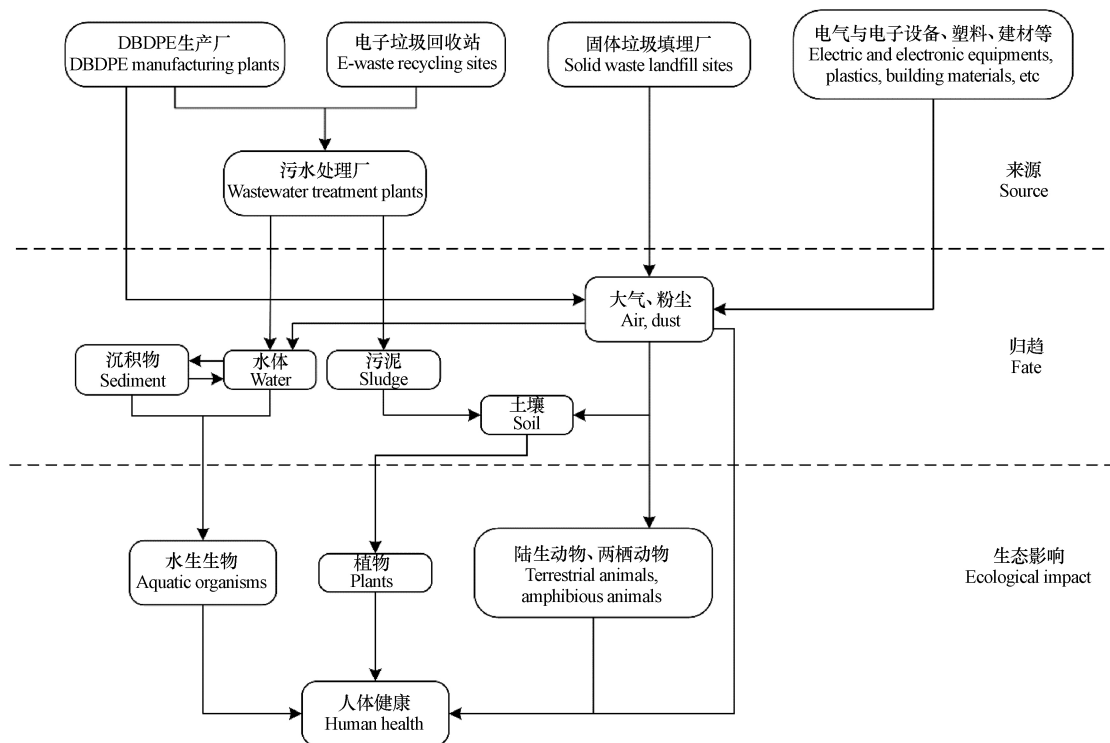


图 1 环境中 DBDPE 的来源与迁移转化

Fig.1 Source and migration of DBDPE in various environments

3.1 迁移

DBDPE 在环境中的迁移行为具体表现为, 存在于大气环境中的 DBDPE 可以通过长距离大气迁移转移至其他地区, 也可以通过大气沉降迁移至表层土壤和水体环境. 存在于土壤环境中的 DBDPE 可以通过地表径流汇入江河. 污水处理厂的污水可能会被重新排放进入地表径流, 而其产生的生物固体则可能作为有机肥料进入土壤环境. 目前, 关于 DBDPE 在环境介质中迁移行为的研究主要集中在 DBDPE 的长距离大气迁移和大气沉降两个方面, 下文就这两部分展开讨论.

有机污染物的蒸汽压和 K_{OA} 值是预测它们在大气环境中行为的重要物理化学参数. 在 25 °C 下, 具有低蒸汽压 (6.00×10^{-15} Pa) 和高 K_{OA} 值 ($\lg K_{OA} = 19.22$) 的 DBDPE 较难挥发到空气中, 而容易吸附于空气中的颗粒表面, 被认为不容易进行长距离迁移^[65]. 然而, 近年来, 在人为干扰较少的南极、北极、青藏高原等地区都以较高频率检测出了 DBDPE^[44,66-67], 表明 DBDPE 能够进行长距离大气迁移. 究其原因, 可能是由于 DBDPE 可以在干燥和高风速条件下与空气中的颗粒一起进行长距离迁移^[15,44].

存在于空气颗粒物中的 DBDPE 经由大气沉降会降落至地表土壤和水面, 从而对土壤和水体环境等造成进一步污染. Hao 等^[67] 和 Yadav 等^[68] 分别对北极地区和尼泊尔的 DBDPE 土壤-大气交换情况进行了研究, 均发现其从土壤到大气的逸度远低于平衡值, 表明了从大气到土壤发生了 DBDPE 的大气沉降和净运输. 在莱州湾地区(中国最大的溴系阻燃剂生产基地)的小清河河水中, 大气沉降是除工业点源和污水处理厂外 DBDPE 的主要污染来源^[69]. Liu 等^[48] 认为, 渤海海水中 DBDPE 的高浓度 ($ND-622 \text{ pg} \cdot \text{L}^{-1}$) 主要可归因于大气沉降, 而非来自河流输入. 他们对春、夏、冬的 3 个季节 DBDPE 的干湿沉降通量进行了估算, 得到的总沉降通量分别为 15.824、29.388、63.175 kg, 其中 DBDPE 在夏季的高湿沉降通量 (24.774 kg) 和冬季的高干沉降通量 (40.966 kg) 分别受到夏季雨水冲刷和冬季季风的影响^[48].

3.2 DBDPE 在生物体内的吸收、转运与富集

3.2.1 DBDPE 在动物体内的吸收、富集及体内分布

动物主要通过呼吸道吸入、消化道摄入、皮肤和黏膜接触吸收这 3 种途径吸收环境中的有机污染

物. 进入生物体后, DBDPE 随后运输到各组织和器官中. 在动物的不同组织和器官中, DBDPE 的浓度会有所差别. 比如, DBDPE 在董鸡的肌肉、肝脏、肾脏中的浓度分别为 9.6—16.3、13.7—54.6、24.5—124 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (脂重)^[70]; 在田螺腹足中的最高浓度为 1.2 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 在内脏中则为 5.2 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ^[71]. 究其原因, 一方面, 不同组织器官的脂肪含量不同, 富集 DBDPE 的能力可能存在差异. 另一方面, 在动物的不同生理过程中, DBDPE 可能会随脂肪发生被动扩散和转运, 使 DBDPE 在各组织中重新分配^[72].

DBDPE 的生物富集程度可以用生物富集因子 (bioaccumulation factor, BAF)、生物放大因子 (biomagnification factor, BMF) 和营养级放大因子 (trophic magnification factor, TMF) 等来衡量. BAF 可以表示为 DBDPE 在生物脂质中的浓度与其在环境溶解相中的浓度之比. 当 $\text{BAF} > 5000$ ($\lg \text{BAF} > 3.7$) 时, 即可认定化合物具有生物富集能力^[73]. DBDPE 在中国东江 3 种鱼类(鲮鱼、罗非鱼、清道夫)体内的 BAF 介于 6.1 到 7.1 之间, 甚至表现出了比 BDE-209 更强的生物富集能力, 猜测可能与其不易在生物体内脱溴降解的特性有关^[47]. BMF 可以表示为 DBDPE 在捕食者脂质中的浓度与其在被捕食者脂质中的浓度之比, 大于 1 意味着 DBDPE 沿食物链发生了生物放大^[74]. 通常认为 BMF 在化合物 $\lg K_{\text{OW}}$ 约等于 7 时达到最大, 总体呈现抛物状变化^[75]. 考虑到 DBDPE 的高度疏水性, 其生物放大效应可能受到抑制. 比如, Wu 等^[76] 在草腹链蛇/青蛙捕食关系中所测得 DBDPE 的 BMF 小于 1; 华南某电子垃圾回收站附近的普通翠鸟及其猎物(叉尾斗鱼、大肚鱼、马口鱼)所表现出的 BMF 为 0.10—0.77^[75]. 但也有报道发现, DBDPE 在加拿大温尼伯湖^[74] 和中国南方红树林^[77] 的食物网中存在生物放大. 除了不同生物的食物资源、对 DBDPE 的代谢能力不同等因素以外, 营养级差异也可能是造成 DBDPE 在不同生物体内放大潜力不同的原因之一. TMF 的计算基于各生物体的营养级和 DBDPE 对数浓度之间的关系, 大于 1 意味着在食物链中发生了营养级放大^[78]. 在中国广东珠江口红树林生物群落中, DBDPE 浓度与营养级之间并没有显著相关性, 这可能是由于 DBDPE 在水生生物中的低检出率和低生物可利用性降低了其营养传递能力^[78]. 而在太湖水生生态系统中, DBDPE 表现出沿营养级稀释的特征 ($\text{TMF} = 0.37$), 且营养级越高, 生物代谢能力越弱, 越不利于营养级稀释^[79].

3.2.2 DBDPE 在植物体内的吸收、转运与富集

植物吸收富集有机污染物的主要途径有两种: 一是植物根部可以从土壤中主动或被动吸收有机污染物, 随后通过木质部转移至其地上部分; 二是大气中的有机污染物可以通过大气扩散、大气沉降等途径降落至植物叶片^[8,80]. 目前, DBDPE 在树叶叶片^[81-82]、松针^[83]、树皮^[84-85]、蔬菜^[86-87] 中都有所检出.

根部生物富集因子 (root bioaccumulation factor, RCF) 是衡量植物根部吸收富集有机污染物能力的重要参数. 目前计算所得 DBDPE 的 RCF 大多小于 1, 生物可利用性较低^[87-89]. 有关研究认为 DBDPE 作为新型溴系阻燃剂, 使用时间短于 PBDEs, 与土壤有机碳之间还未表现出紧密结合, 因此 DBDPE 更易于被植物吸收, 生物可利用性可能会高于 PBDEs^[75,77]. 植物根部吸收富集 DBDPE 后, 可以通过木质部将其运输到植物的地上部分(茎、叶、果实等)^[8,72]. 但由于 DBDPE 的高度疏水性, 其在植物体内的转运能力较弱^[88-89]. 而对于植物叶片中 DBDPE 的积累, 除了来自于根部的运输外, 绝大部分可能来自于大气沉降. 因此, 具有较大叶片的玉米和水稻, 叶片中积累的 DBDPE 浓度要高于植物的茎^[80,88].

植物吸收富集 DBDPE 的过程和能力可能会受到以下因素的影响. DBDPE 环境容量、植物种类、环境条件(包括温度、湿度、光照等)、土壤理化性质以及植物生理学^[90]. 此外, Fan 等^[80] 发现处于不同生长阶段的作物累积 DBDPE 的潜力有所不同, 例如处于生殖生长期的花生中 DBDPE 的含量要远高于营养生长期. Sun 等^[8] 比较了大棚蔬菜和普通蔬菜中 DBDPE 的含量差异, 发现大棚蔬菜中 DBDPE 含量高于普通蔬菜. 这可能是由于大棚蔬菜的生长周期长于普通蔬菜, 而 DBDPE 在蔬菜的整个生长周期中都在不断积累.

最近的一项研究报道了 DBDPE 在植物中吸收转运的微观机制^[91]. 实验结果表明, 植物脂含量更高的植物体具有更强的 DBDPE 吸收和转运能力; DBDPE 与不同植物载脂蛋白间的结合位点和方式存在差异; DBDPE 与植物载脂蛋白结合能力的强弱顺序和植物的 RCF 大小顺序相一致.

3.3 代谢与降解

3.3.1 光解

有研究认为 DBDPE 比 BDE-209 具有更强的抗紫外线辐射能力, 在自然光暴露的 224 d 内, 被掺入

高抗冲聚苯乙烯(HIPS)中的 DBDPE 没有明显变化,而 BDE-209 的光解半衰期为 51 d^[92]. 然而, Wang 等^[17]在以正己烷为反应介质时,发现 DBDPE 在自然光下的降解速率与 BDE-209 相近,两者的光解半衰期分别为 16.6 min 和 18.1 min.

DBDPE 的光解反应速率与其反应介质密切相关. Wang 等^[17]研究了 DBDPE 在不同反应介质中的光解行为,其光解半衰期($t_{1/2}$)顺序为:四氢呋喃($t_{1/2}=6.0$ min) $<$ 正己烷($t_{1/2}=16.6$ min) $<$ 腐殖质/水(30 min $<t_{1/2}<60$ min) $<$ 硅胶($t_{1/2}=75.9$ min) $<$ 甲醇/水($t_{1/2}>240$ min). 这可能主要与不同反应介质的供氢能力强弱有关. 在此需要指出的是,甲醇的键离解焓为 402.0 kJ·mol⁻¹,供氢能力较强,其他研究中 DBDPE 在甲醇溶液中的半衰期要明显小于此研究^[93-94]. 除反应介质外,紫外线波长、辐射强度和温度等也会影响 DBDPE 的光解速率. Nadjia 等^[95]发现在紫外灯照射下, DBDPE 在四氢呋喃中的光解半衰期仅为 1.89 min. DBDPE 在 UVA、UVB、UVC 以及自然光下具有不同的半衰期,光解速率顺序为: UVC $>$ UVB $>$ 自然光 $>$ UVA; 在 UVB 光照下, DBDPE 在 14 °C 时的半衰期是 20 °C 时的 1.82 倍^[95]. 而在研究吸附于硅胶上的 DBDPE 光解行为时, Li 等^[96]发现 pH 以及 DBDPE 浓度也会影响其降解速率.

目前,也有部分研究人员对 DBDPE 光解机理及产物进行了研究. 如图 2 所示为 DBDPE 在有机溶剂中的光解途径及产物. Wang 等^[17]认为, DBDPE 光解是个逐步脱溴的过程,在 70 min 光照时间内,鉴定出 DBDPE 的光解产物有 3 种 nona-BDPEs、2 种 octa-BDPEs 以及 2 种 hepta-BDPEs. Ling 等^[94]则预测随着光照时间的延长, DBDPE 会进一步脱溴. Klimm 等^[97]报道了 DBDPE 光解过程中形成了以 Br₈OxyTPs 为主的多溴代含氧转化产物,并推测它们可能是平面的三环化合物. 在以硅胶为反应介质的模拟太阳光照射实验中,由于硅胶在光照下容易产生·OH, DBDPE 光解产物除了 nona-BDPEs、octa-BDPEs 等脱溴产物外,还有 OH-nona-BDPEs、OH-penta-BDPEs 等羟基化产物^[96].

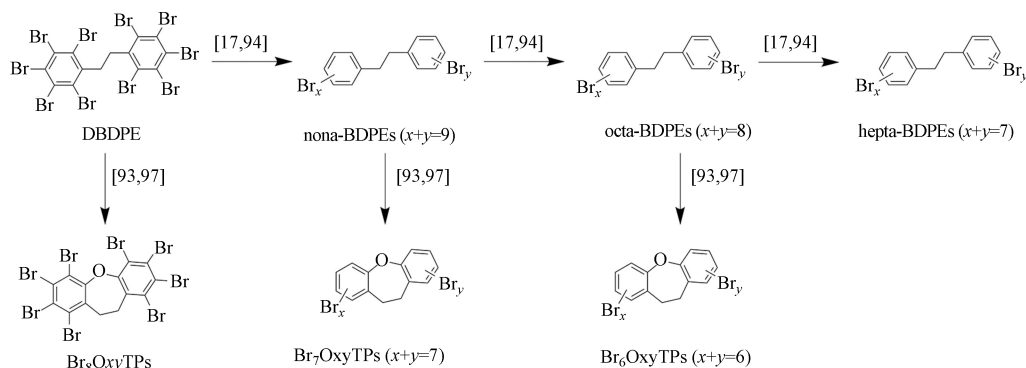


图 2 DBDPE 在有机溶剂中的光解途径及产物^[17,93-94,97]

Fig.2 Photolysis pathway and products of DBDPE in organic solvents^[17,93-94,97]

3.3.2 热解

在较高温度下(高于 320 °C), DBDPE 可能会发生热分解^[5]. 相关研究表明,在仪器分析过程中, DBDPE 可能会因热分解生成脱溴产物,其热解速率与 BDE-209 相近,但对热的敏感性更低一些^[1,47]. Liu 等^[14]研究了含 DBDPE 的电子废塑料的热化学分解过程. 在热解反应初期, DBDPE 会生成脱溴产物,而随着反应温度的升高,脱溴产物会进一步分解生成溴化单芳香族化合物(图 3).

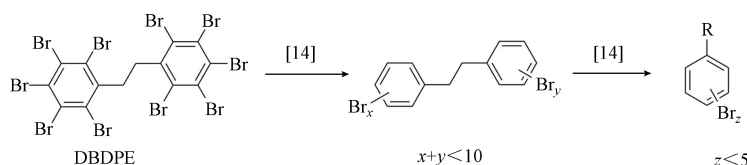


图 3 电子废塑料中 DBDPE 的热解^[14]

Fig.3 Thermal degradation of DBDPE in electronic waste plastics^[14]

3.3.3 化学降解

在实验室中,也有研究人员开展了有关 DBDPE 化学降解的研究. 陈静^[98]研究了 DBDPE 在高锰酸

钾/硫酸体系中的去除效果,发现反应 8 min 后能够有效去除 99.7% 的 DBDPE. 此研究一共分析鉴定出了 28 种 DBDPE 降解产物,并提出了 DBDPE 乙基的 C—C 键直接氧化和乙基碳与相邻碳之间的 C—C 键断裂两种可能的降解途径. Grause 等^[99]发现 DBDPE 在 150—190 °C 的氢氧化钠/乙二醇溶液中会发生脱溴反应,并检测到了含有菲和其他芳环结构的低溴代化合物.

3.3.4 生物降解

相关研究表明, DBDPE 在生物体内能够发生生物降解,其代谢产物可能并非简单的低溴代化合物^[100-101]. Wang 等^[101]给雄性大鼠口服含 100 mg·kg⁻¹(体重)DBDPE 的玉米油 90 d 后,在其体内至少观察到 7 种未知化合物,推测其中的两种化合物可能是 MeSO₂-nona-BDPE 和 EtSO₂-nona-BDPE(图 4). 通过与 DBDPE 光解产物的对比,认为脱溴加氢不是 DBDPE 在大鼠体内的主要代谢途径. 在北极海洋动物体外肝微粒体实验中,44%—74% 的 DBDPE 被降解^[100]. 对代谢产物进行研究发现,只能检测到两种酚类代谢物,未发现由于生物代谢而产生 DBDPE 低溴化产物的直接证据. 然而,将田螺在含 50 mg·kg⁻¹ DBDPE 的沉积物中培养 28 d 后,发现了 nona-BDPEs、octa-BDPEs、hepta-BDPEs 等脱溴产物的存在(图 4),表明 DBDPE 在田螺体内存在逐步脱溴的代谢过程^[71].

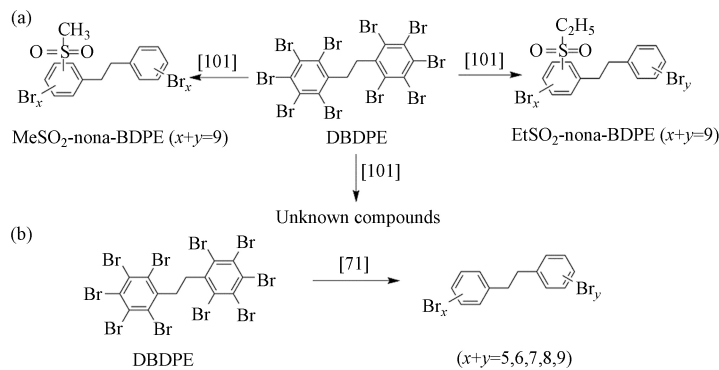


图 4 DBDPE 的生物降解^[71,101]

(a) 大鼠肝脏; (b) 田螺

Fig.4 Biodegradation of DBDPE^[71,101]

(a) in the liver of rats; (b) in mudsnails

4 风险评估(Risk assessment)

4.1 生态风险评估

风险熵(risk quotient, RQ)是评估有机污染物生态风险的常用表征方法之一,其含义为所测得的有机污染物环境浓度(measured environmental concentration, MEC)与预测的无效应浓度(predicted no effect concentration, PNEC)的比值^[102]. 根据 Hernando 等^[103]提出的 RQ 分类法划定生态风险等级: 0.01≤RQ<0.1 表示低风险; 0.1≤RQ<1 表示中等风险; RQ≥1 表示高风险. 在多溴联苯醚的沉积物生态风险评估中,常采用源于水生生物毒理学研究结果的《联邦沉积物质量指南》(FSeQGs), 给出的 tri-BDE、tetra-BDE、penta-BDE、hexa-BDE、octa-BDE 和 deca-BDE 的 PNEC 值分别为 44、39、0.4、440、5600、19 ng·g⁻¹(干重)^[104]. 然而,对于 DBDPE 而言,目前尚无可用的 PNEC 值. Wu 等^[105]和 Chokwe 等^[50]以 100000 ng·g⁻¹(干重)作为 PNEC,保守地评估 DBDPE 对于大多数底栖生物的生态风险. 结果表明,尽管 DBDPE 的检出浓度远高于 BDE-209,但计算所得的 RQ<0.01. 然而,把 100000 ng·g⁻¹(干重)用作 DBDPE 的 PNEC 值是有待商榷的,有必要进行进一步的毒理学研究,获得更为可靠的 PNEC 值,以更准确地评估 DBDPE 的生态风险.

4.2 人体暴露与健康风险评估

人体可通过土壤或灰尘摄入、皮肤接触吸收、呼吸吸入、饮食摄入等途径暴露于 DBDPE^[106-107]. 采用危害指数(hazard quotient, HQ)来评估人体暴露于 DBDPE 的健康风险,其含义为每日估计摄入量(estimated daily intake, EDI)与相应参考剂量(reference dose, RfD)的比值. 若 HQ≤1,表明该化合物尚无可见的风险;若 HQ>1,表明该化合物可能会对人體造成不利影响^[108]. 对于 DBDPE 而言, Ali 等^[109]建

议的 RfD 值为 $333333 \text{ ng}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}\cdot\text{bw}$ 。表 3 总结了部分文献所报道的 EDI 值。从表 3 可以看出,不同地区不同环境中 DBDPE 的 EDI 值差别较大,但均明显低于 RfD 值,即 HQ 远小于 1。在 DBDPE 污染较为严重的地区(如 DBDPE 生产厂和电子垃圾回收站),计算所得的 EDI 值明显更高。儿童较成人有着更高的 DBDPE 暴露风险,这可能是由于儿童的体重较低,并且儿童更有可能通过手-足接触等途径误食 DBDPE^[42]。但值得注意的是,在当前研究中通过饮食摄入的人体暴露风险评估未考虑生物放大效应,且大多数研究未同时评估多种暴露途径的风险以得到总 EDI 值。

表 3 不同文献中的 DBDPE 每日估计摄入量(EDI)

Table 3 Estimated daily intake (EDI) of DBDPE in different references

暴露途径 Exposure route	样品信息 Sample information	暴露人群 Exposed population	EDI/ ($\text{ng}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}\cdot\text{bw}$)	参考文献 Reference
灰尘摄入	广东,某高校17个大学宿舍室内灰尘	成人	0.58 ^a , 1.46 ^b	[110]
	广东,城市室内灰尘($n=28$)	儿童	3.73 ^a , 29.4 ^b	[31]
	广东,城市室内灰尘($n=28$)	成人	0.33 ^a , 1.62 ^b	[31]
	广东,电子垃圾回收站车间灰尘($n=20$)	儿童	15.5 ^a , 169 ^b	[31]
	广东,电子垃圾回收站车间灰尘($n=20$)	成人	1.35 ^a , 9.27 ^b	[31]
	广东,农村室内灰尘($n=30$)	儿童	2.71 ^a , 22.9 ^b	[31]
	广东,农村室内灰尘($n=30$)	成人	0.24 ^a , 1.26 ^b	[31]
	比利时、意大利和西班牙的室内灰尘($n=65$)	儿童	0.404 ^a , 3.19 ^b	[40]
	比利时、意大利和西班牙的室内灰尘($n=65$)	成人	0.0207 ^a , 0.246 ^b	[40]
	上海,室内地面灰尘($n=22$)	从婴儿至成人	0.13—1.04 ^a	[39]
上海,室内桌椅等家具上灰尘($n=22$)	从婴儿至成人	0.05—0.40 ^a	[39]	
土壤摄入	华北,DBDPE生产厂周边土壤	成人	1.15 ^b	[42]
	华北,DBDPE生产厂周边土壤	儿童	26.9 ^b	[42]
呼吸吸入	印度,城市建筑室内空气	儿童	0.534 ^a , 8.546 ^b	[26]
	印度,郊区建筑室内空气	儿童	0.199 ^a , 0.638 ^b	[26]
	印度,城市建筑室内空气	成人	0.140 ^a , 2.234 ^b	[26]
	印度,郊区建筑室内空气	成人	0.0519 ^a , 0.167 ^b	[26]
	山东,20个DBDPE生产厂车间空气	成人	11500 ^a , 27500 ^b	[27]
	华北,DBDPE生产厂周围空气	儿童	0.82 ^b	[111]
	华北,DBDPE生产厂周围空气	成人	0.2 ^b	[111]
皮肤接触吸收	比利时、意大利和西班牙的室内灰尘($n=65$)	儿童	4.14×10^{-4a} , 1.64×10^{-3b}	[40]
	比利时、意大利和西班牙的室内灰尘($n=65$)	成人	2.39×10^{-5a} , 9.44×10^{-5b}	[40]
	北京,30个成人的手掌、手背及前臂表面擦拭样品	成人	$7.0 \text{ ng}\cdot\text{d}^{-1a}$, $80.4 \text{ ng}\cdot\text{d}^{-1b}$	[112]
饮食摄入	北京,20位母亲3 d重复饮食样品	母亲	23.5 ^a , 506 ^b	[12]
	北京,母乳($n=20$)	婴儿(母乳喂养)	33.6 ^a , 114 ^b	[12]
	浙江,某农场温室蔬菜(番茄、黄瓜)	NA	586—807 $\text{ng}\cdot\text{d}^{-1a}$	[8]
	浙江,某农场非温室蔬菜(番茄、黄瓜)	NA	51—185 $\text{ng}\cdot\text{d}^{-1a}$	[8]

注: NA—无资料; a. 平均暴露量; b. 日最高暴露量。

Note: NA—not available; a. daily average intake; b. daily high intake.

5 总结与展望(Conclusion and future prospects)

随着全球范围内 PBDEs 等传统溴系阻燃剂的限制使用, DBDPE 作为 BDE-209 的主要替代品,使用量和产量逐年上升,在生态环境中的污染水平亦不断攀升。DBDPE 易从产品中溢出进入大气和粉尘,经由大气迁移、大气沉降、吸附、淋溶等过程在各环境介质中重新分配。环境中的 DBDPE 可通过呼吸道、消化道、皮肤等途径进入动物体,经由根部或叶片进入植物体,并在生物体内发生富集放大,

其生态风险和健康风险不容忽视。

现针对 DBDPE 研究现状及存在问题, 做出以下展望: (1) 现有研究表明, DBDPE 在电子垃圾回收站和 DBDPE 生产厂周边的检出浓度远高于其他地区. 因此, 今后应当更为重视 DBDPE 在这两类场所附近的环境监管. (2) 今后应当加强对 DBDPE 污染时空特征及演变规律的研究, 为 DBDPE 环境监管和防治提供支持. (3) 目前关于 DBDPE 生物富集放大效应的研究主要集中于鱼类和鸟类, 今后应当扩大所研究的生物类型, 增加研究生物放大效应的食物链长度. (4) 深入研究 DBDPE 在环境及生物介质中的代谢降解机理, 积极寻找 DBDPE 环境去除途径, 如可开展 DBDPE 降解菌种筛选和鉴定相关研究. (5) 重视 DBDPE 代谢和降解产物对环境的影响, 开展有关 DBDPE 代谢和降解产物的环境行为、毒性效应等方面的研究. (6) 尽快建立并不断完善 DBDPE 的风险评估体系, 并利用各种系统的评价方法来评价其生态环境和人体健康风险。

参考文献 (References)

- [1] KIERKEGAARD A, SELLSTRÖM U, MCLACHLAN M S. Environmental analysis of higher brominated diphenyl ethers and decabromodiphenyl ethane [J]. *Journal of Chromatography A*, 2009, 1216(3): 364-375.
- [2] 张月, 张崇海, 朱玉鹏, 等. 十溴二苯乙烷的环境分布及其毒性效应研究进展 [J]. *环境与职业医学*, 2020, 37(1): 87-93.
ZHANG Y, ZHANG C H, ZHU Y P, et al. Research progress on environmental distribution and toxicity effects of decabromodiphenyl ethane [J]. *Journal of Environmental & Occupational Medicine*, 2020, 37(1): 87-93(in Chinese).
- [3] WEMKEN N, DRAGE D S, CELLARIUS C, et al. Emerging and legacy brominated flame retardants in the breast milk of first time Irish mothers suggest positive response to restrictions on use of HBCDD and Penta- and Octa-BDE formulations [J]. *Environmental Research*, 2020, 180: 108805.
- [4] 王森, 张兆祥. 环境介质中十溴二苯乙烷和1, 2-双(2, 4, 6-三溴苯氧基)乙烷分布特征的研究进展 [J]. *同济大学学报(自然科学版)*, 2020, 48(3): 407-417,455.
WANG S, ZHANG Z X. Research progress on distribution characteristics of DBDPE and BTBPE in environment [J]. *Journal of Tongji University (Natural Science)*, 2020, 48(3): 407-417,455(in Chinese).
- [5] 金美青, 陈紫涵, 陈雯, 等. 十溴二苯乙烷在环境中的分布及毒理学研究进展 [J]. *环境化学*, 2016, 35(12): 2482-2490.
JIN M Q, CHEN Z H, CHEN W, et al. Environmental behavior and toxicology of decabromodiphenyl ethane - a review [J]. *Environmental Chemistry*, 2016, 35(12): 2482-2490(in Chinese).
- [6] SHEN K H, LI L, LIU J Z, et al. Stocks, flows and emissions of DBDPE in China and its international distribution through products and waste [J]. *Environmental Pollution*, 2019, 250: 79-86.
- [7] ZHENG X B, XU F C, CHEN K H, et al. Flame retardants and organochlorines in indoor dust from several e-waste recycling sites in South China: Composition variations and implications for human exposure [J]. *Environment International*, 2015, 78: 1-7.
- [8] SUN J Q, WU Y H, JIANG P, et al. Concentration, uptake and human dietary intake of novel brominated flame retardants in greenhouse and conventional vegetables [J]. *Environment International*, 2019, 123: 436-443.
- [9] LIU Y, LUO X J, HUANG L Q, et al. Halogenated organic pollutants in aquatic, amphibious, and terrestrial organisms from an e-waste site: Habitat-dependent accumulation and maternal transfer in watersnake [J]. *Environmental Pollution*, 2018, 241: 1063-1070.
- [10] 陶林. 替代型卤系阻燃剂的生物蓄积及营养级放大特征[D]. 北京: 中国科学院大学, 2019.
TAO L. Bioaccumulation characteristics and trophic magnification of alternative halogenated flame retardants[D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences, 2019 (in Chinese).
- [11] LIANG S, XU F, TANG W B, et al. Brominated flame retardants in the hair and serum samples from an e-waste recycling area in southeastern China: The possibility of using hair for biomonitoring [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, 23(15): 14889-14897.
- [12] WANG J D, LI J, SHI Z X. Dietary exposure assessment of a nursing mother-infant cohort to legacy and novel brominated flame retardants: Results of a 3-day duplicate diet study in Beijing, China [J]. *Chemosphere*, 2020, 254: 126843.
- [13] COVACI A, HARRAD S, ABDALLAH M A E, et al. Novel brominated flame retardants: A review of their analysis, environmental fate and behaviour [J]. *Environment International*, 2011, 37(2): 532-556.
- [14] LIU W J, TIAN K, JIANG H, et al. Lab-scale thermal analysis of electronic waste plastics [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2016, 310: 217-225.
- [15] AL-OMRAN L S. Physicochemical properties and environmental levels of legacy and novel brominated flame retardants[C]//*Flame Retardants*. IntechOpen, 2018: 19-37.
- [16] EFSA PANEL ON CONTAMINANTS IN THE FOOD CHAIN. Scientific opinion on emerging and novel brominated flame retardants (BFRs) in food [J]. *EFSA Journal*, 2012, 10(10): 2908.
- [17] WANG J, CHEN S J, NIE X, et al. Photolytic degradation of decabromodiphenyl ethane (DBDPE) [J]. *Chemosphere*, 2012, 89(7): 844-849.

- [18] ZHANG W, WANG P, ZHU Y, et al. Brominated flame retardants in atmospheric fine particles in the Beijing-Tianjin-Hebei region, China: Spatial and temporal distribution and human exposure assessment [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2019, 171: 181-189.
- [19] WANG X C, LING S Y, GUAN K L, et al. Bioconcentration, biotransformation, and thyroid endocrine disruption of decabromodiphenyl ethane (Dbdpe), a novel brominated flame retardant, in zebrafish larvae [J]. *Environmental Science & Technology*, 2019, 53(14): 8437-8446.
- [20] ANH H Q, TOMIOKA K, TUE N M, et al. PBDEs and novel brominated flame retardants in road dust from northern Vietnam: Levels, congener profiles, emission sources and implications for human exposure [J]. *Chemosphere*, 2018, 197: 389-398.
- [21] ZUIDERVEEN E A R, SLOOTWEG J C, DE BOER J. Novel brominated flame retardants - A review of their occurrence in indoor air, dust, consumer goods and food [J]. *Chemosphere*, 2020, 255: 126816.
- [22] HARRAD S, DRAGE D S, SHARKEY M, et al. Perfluoroalkyl substances and brominated flame retardants in landfill-related air, soil, and groundwater from Ireland [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 705: 135834.
- [23] NEWTON S, SELLSTRÖM U, DE WIT C A. Emerging flame retardants, PBDEs, and HBCDDs in indoor and outdoor media in Stockholm, Sweden [J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, 49(5): 2912-2920.
- [24] VENIER M, AUDY O, VOJTA Š, et al. Brominated flame retardants in the indoor environment - Comparative study of indoor contamination from three countries [J]. *Environment International*, 2016, 94: 150-160.
- [25] 王涛, 陶林, 曾源, 等. 工业园及电子垃圾区大气中的溴代阻燃剂(BFRs) [J]. *中国环境科学*, 2019, 39(9): 3691-3700.
WANG T, TAO L, ZENG Y, et al. Brominated flame retardants (BFRs) in the atmosphere of urban and e-waste recycling regions in South China: Concentrations, distributions, compositions, and emission [J]. *China Environmental Science*, 2019, 39(9): 3691-3700 (in Chinese).
- [26] YADAV I C, DEVI N L, KUMAR A, et al. Airborne brominated, chlorinated and organophosphate ester flame retardants inside the buildings of the Indian state of Bihar: Exploration of source and human exposure [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2020, 191: 110212.
- [27] WANG D J, CHEN T, FU Z J, et al. Occupational exposure to polybrominated diphenyl ethers or decabromodiphenyl ethane during chemical manufacturing: Occurrence and health risk assessment [J]. *Chemosphere*, 2019, 231: 385-392.
- [28] IQBAL M, SYED J H, BREIVIK K, et al. E-waste driven pollution in Pakistan: The first evidence of environmental and human exposure to flame retardants (FRs) in Karachi city [J]. *Environmental Science & Technology*, 2017, 51(23): 13895-13905.
- [29] LI Q L, YANG K, LI K C, et al. New halogenated flame retardants in the atmosphere of nine urban areas in China: Pollution characteristics, source analysis and variation trends [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 224: 679-688.
- [30] PENG C F, TAN H L, GUO Y, et al. Emerging and legacy flame retardants in indoor dust from East China [J]. *Chemosphere*, 2017, 186: 635-643.
- [31] HE C T, ZHENG X B, YAN X, et al. Organic contaminants and heavy metals in indoor dust from e-waste recycling, rural, and urban areas in South China: Spatial characteristics and implications for human exposure [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2017, 140: 109-115.
- [32] TAO F, ABDALLAH M A E, HARRAD S. Emerging and legacy flame retardants in UK indoor air and dust: Evidence for replacement of PBDEs by emerging flame retardants? [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(23): 13052-13061.
- [33] SUN J Q, XU Y, ZHOU H B, et al. Levels, occurrence and human exposure to novel brominated flame retardants (NBFRs) and Dechlorane Plus (DP) in dust from different indoor environments in Hangzhou, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 631/632: 1212-1220.
- [34] MCGRATH T J, MORRISON P D, BALL A S, et al. Spatial distribution of novel and legacy brominated flame retardants in soils surrounding two Australian electronic waste recycling facilities [J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, 52(15): 8194-8204.
- [35] WEMKEN N, DRAGE D S, ABDALLAH M A E, et al. Concentrations of brominated flame retardants in indoor air and dust from Ireland reveal elevated exposure to decabromodiphenyl ethane [J]. *Environmental Science & Technology*, 2019, 53(16): 9826-9836.
- [36] CRISTALE J, ARAGÃO BELÉ T G, LACORTE S, et al. Occurrence and human exposure to brominated and organophosphorus flame retardants via indoor dust in a Brazilian city [J]. *Environmental Pollution*, 2018, 237: 695-703.
- [37] XIONG P, YAN X T, ZHU Q Q, et al. A review of environmental occurrence, fate, and toxicity of novel brominated flame retardants [J]. *Environmental Science & Technology*, 2019, 53(23): 13551-13569.
- [38] ZHENG X B, QIAO L, COVACI A, et al. Brominated and phosphate flame retardants (FRs) in indoor dust from different microenvironments: Implications for human exposure via dust ingestion and dermal contact [J]. *Chemosphere*, 2017, 184: 185-191.
- [39] NIU D, QIU Y L, DU X Y, et al. Novel brominated flame retardants in house dust from Shanghai, China: Levels, temporal variation, and human exposure [J]. *Environmental Sciences Europe*, 2019, 31(1): 1-12.
- [40] DE LA TORRE A, NAVARRO I, SANZ P, et al. Organophosphate compounds, polybrominated diphenyl ethers and novel brominated flame retardants in European indoor house dust: Use, evidence for replacements and assessment of human exposure [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, 382: 121009.
- [41] LI W L, LIU L Y, ZHANG Z F, et al. Brominated flame retardants in the surrounding soil of two manufacturing plants in China: Occurrence, composition profiles and spatial distribution [J]. *Environmental Pollution*, 2016, 213: 1-7.

- [42] LIN Y, MA J, QIU X H, et al. Levels, spatial distribution, and exposure risks of decabromodiphenylethane in soils of North China [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2015, 22(17): 13319-13327.
- [43] ZHU Z C, CHEN S J, ZHENG J, et al. Occurrence of brominated flame retardants (BFRs), organochlorine pesticides (OCPs), and polychlorinated biphenyls (PCBs) in agricultural soils in a BFR-manufacturing region of North China [J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 481: 47-54.
- [44] LIU X, BING H J, CHEN Y Z, et al. Brominated flame retardants and dechlorane plus on a remote high mountain of the eastern Tibetan Plateau: Implications for regional sources and environmental behaviors [J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 2018, 40(5): 1887-1897.
- [45] ZHENG Q, NIZZETTO L, LI J, et al. Spatial distribution of old and emerging flame retardants in Chinese forest soils: Sources, trends and processes [J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, 49(5): 2904-2911.
- [46] VENIER M, DOVE A, ROMANAK K, et al. Flame retardants and legacy chemicals in Great Lakes' water [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, 48(16): 9563-9572.
- [47] HE M J, LUO X J, CHEN M Y, et al. Bioaccumulation of polybrominated diphenyl ethers and decabromodiphenyl ethane in fish from a river system in a highly industrialized area, South China [J]. *Science of the Total Environment*, 2012, 419: 109-115.
- [48] LIU L, ZHEN X M, WANG X M, et al. Legacy and novel halogenated flame retardants in seawater and atmosphere of the Bohai Sea: Spatial trends, seasonal variations, and influencing factors [J]. *Water Research*, 2020, 184: 116117.
- [49] GOTTSCHALL N, TOPP E, EDWARDS M, et al. Brominated flame retardants and perfluoroalkyl acids in groundwater, tile drainage, soil, and crop grain following a high application of municipal biosolids to a field [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 574: 1345-1359.
- [50] CHOKWE T B, MAGUBANE M N, ABAFE O A, et al. Levels, distributions, and ecological risk assessments of polybrominated diphenyl ethers and alternative flame retardants in river sediments from Vaal River, South Africa [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2019, 26(7): 7156-7163.
- [51] LI Y N, ZHEN X M, LIU L, et al. Halogenated flame retardants in the sediments of the Chinese Yellow Sea and East China Sea [J]. *Chemosphere*, 2019, 234: 365-372.
- [52] ZHU B Q, LAM J C W, LAM P K S. Halogenated flame retardants (HFRs) in surface sediment from the Pearl River Delta region and Mirs Bay, South China [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2018, 129(2): 899-904.
- [53] ZHEN X M, TANG J H, XIE Z Y, et al. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and alternative brominated flame retardants (aBFRs) in sediments from four bays of the Yellow Sea, North China [J]. *Environmental Pollution*, 2016, 213: 386-394.
- [54] HU Y X, PEI N C, SUN Y X, et al. Halogenated flame retardants in mangrove sediments from the Pearl River Estuary, South China: Comparison with historical data and correlation with microbial community [J]. *Chemosphere*, 2019, 227: 315-322.
- [55] LI B, SUN S J, HUO C Y, et al. Occurrence and fate of PBDEs and novel brominated flame retardants in a wastewater treatment plant in Harbin, China [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, 23(19): 19246-19256.
- [56] LI B, WANG K, MA L X, et al. Deca-BDE and alternative halogenated flame retardants in a wastewater treatment plant in Harbin (2009—2016): Occurrence, temporal trends, seasonal variation, and fate [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 625: 1156-1163.
- [57] LEE S, SONG G J, KANNAN K, et al. Occurrence of PBDEs and other alternative brominated flame retardants in sludge from wastewater treatment plants in Korea [J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 470/471: 1422-1429.
- [58] GORGA M, MARTÍNEZ E, GINEBRED A, et al. Determination of PBDEs, HBB, PBEB, DBDPE, HBCD, TBBPA and related compounds in sewage sludge from Catalonia (Spain) [J]. *Science of the Total Environment*, 2013, 444: 51-59.
- [59] WU Q H, LI H Y, KUO D T F, et al. Occurrence of PBDEs and alternative halogenated flame retardants in sewage sludge from the industrial city of Guangzhou, China [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 220(Part A): 63-71.
- [60] MCGRATH T J, MORRISON P D, BALL A S, et al. Concentrations of legacy and novel brominated flame retardants in indoor dust in Melbourne, Australia: An assessment of human exposure [J]. *Environment International*, 2018, 113: 191-201.
- [61] TANG S Q, TAN H L, LIU X T, et al. Legacy and alternative flame retardants in house dust and hand wipes from South China [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 656: 1-8.
- [62] CRISTALE J, ARAGÃO BELÉ T G, LACORTE S, et al. Occurrence of flame retardants in landfills: A case study in Brazil [J]. *Environmental Research*, 2019, 168: 420-427.
- [63] WANG S R, WANG Y, SONG M K, et al. Distributions and compositions of old and emerging flame retardants in the rhizosphere and non-rhizosphere soil in an e-waste contaminated area of South China [J]. *Environmental Pollution*, 2016, 208: 619-625.
- [64] AZNAR-ALEMANY Ò, AMINOT Y, VILÀ-CANO J, et al. Halogenated and organophosphorus flame retardants in European aquaculture samples [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 612: 492-500.
- [65] 张丽, 李雪花, 孙慧超, 等. 有机污染物正辛醇/空气分配系数研究进展 [J]. *环境科学研究*, 2004, 17(4): 77-80.
ZHANG L, LI X H, SUN H C, et al. Progress on the study of the octanol-air partition coefficient [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2004, 17(4): 77-80 (in Chinese).
- [66] ZHAO J, WANG P, WANG C, et al. Novel brominated flame retardants in West Antarctic atmosphere (2011—2018): Temporal trends, sources and chiral signature [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 720: 137557.

- [67] HAO Y F, MENG W Y, LI Y M, et al. Concentrations and distribution of novel brominated flame retardants in the atmosphere and soil of Ny-Ålesund and London Island, Svalbard, Arctic [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2020, 97: 180-185.
- [68] YADAV I C, DEVI N L, LI J, et al. Environmental concentration and atmospheric deposition of halogenated flame retardants in soil from Nepal: Source apportionment and soil-air partitioning [J]. *Environmental Pollution*, 2018, 233: 642-654.
- [69] ZHEN X M, TANG J H, LIU L, et al. From headwaters to estuary: Distribution and fate of halogenated flame retardants (HFRs) in a river basin near the largest HFR manufacturing base in China [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 621: 1370-1377.
- [70] SHI T, CHEN S J, LUO X J, et al. Occurrence of brominated flame retardants other than polybrominated diphenyl ethers in environmental and biota samples from southern China [J]. *Chemosphere*, 2009, 74(7): 910-916.
- [71] WANG Y W, LING S Y, LU C, et al. Exploring the environmental fate of novel brominated flame retardants in a sediment-water-mudsnail system: Enrichment, removal, metabolism and structural damage [J]. *Environmental Pollution*, 2020, 265: 114924.
- [72] 郑晓波. 卤代有机污染物在鸡中的富集、子代传递和胚胎发育中的迁移转化及体外代谢[D]. 北京: 中国科学院大学, 2015.
- ZHENG X B. Organohalogenated pollutants in bioaccumulation, maternal transfer, and embryo development processes of chicken and in vitro metabolism[D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences, 2015 (in Chinese).
- [73] KELLY B C, IKONOMOU M G, BLAIR J D, et al. Food web-specific biomagnification of persistent organic pollutants [J]. *Science*, 2007, 317(5835): 236-239.
- [74] LAW K, HALLDORSON T, DANELL R, et al. Bioaccumulation and trophic transfer of some brominated flame retardants in a Lake Winnipeg (Canada) food web [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2006, 25(8): 2177-2186.
- [75] MO L, WU J P, LUO X J, et al. Bioaccumulation of polybrominated diphenyl ethers, decabromodiphenyl ethane, and 1, 2-bis (2, 4, 6-tribromophenoxy) ethane flame retardants in kingfishers (*Alcedo atthis*) from an electronic waste-recycling site in South China [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2012, 31(9): 2153-2158.
- [76] WU J P, WU S K, TAO L, et al. Bioaccumulation characteristics of PBDEs and alternative brominated flame retardants in a wild frog-eating snake [J]. *Environmental Pollution*, 2020, 258: 113661.
- [77] TAO L, ZHANG Y, WU J P, et al. Biomagnification of PBDEs and alternative brominated flame retardants in a predatory fish: Using fatty acid signature as a primer [J]. *Environment International*, 2019, 127: 226-232.
- [78] SUN Y X, ZHANG Z W, XU X R, et al. Bioaccumulation and biomagnification of halogenated organic pollutants in mangrove biota from the Pearl River Estuary, South China [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2015, 99(1-2): 150-156.
- [79] ZHENG G M, WAN Y, SHI S N, et al. Trophodynamics of emerging brominated flame retardants in the aquatic food web of Lake Taihu: Relationship with organism metabolism across trophic levels [J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, 52(8): 4632-4640.
- [80] FAN Y, CHEN S J, LI Q Q, et al. Uptake of halogenated organic compounds (HOCs) into peanut and corn during the whole life cycle grown in an agricultural field [J]. *Environmental Pollution*, 2020, 263: 114400.
- [81] DREYER A, NEUGEBAUER F, RÜDEL H, et al. Halogenated flame retardants in tree samples applied as bioindicators for atmospheric pollution [J]. *Chemosphere*, 2018, 208: 233-240.
- [82] TIAN M, CHEN S J, WANG J, et al. Plant uptake of atmospheric brominated flame retardants at an e-waste site in southern China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, 46(5): 2708-2714.
- [83] ZHU H K, SUN H W, YAO Y M, et al. Legacy and alternative brominated flame retardants in outdoor dust and pine needles in mainland China: Spatial trends, dust-plant partitioning and human exposure [J]. *Environmental Pollution*, 2018, 243: 758-765.
- [84] QIU X H, HITES R A. Dechlorane plus and other flame retardants in tree bark from the northeastern United States [J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, 42(1): 31-36.
- [85] SALAMOVA A, HITES R A. Brominated and chlorinated flame retardants in tree bark from around the globe [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(1): 349-354.
- [86] LI P, WU H, LI Q X, et al. Brominated flame retardants in food and environmental samples from a production area in China: Concentrations and human exposure assessment [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2015, 187(11): 1-11.
- [87] WANG S R, WANG Y, LUO C L, et al. Plant selective uptake of halogenated flame retardants at an e-waste recycling site in southern China [J]. *Environmental Pollution*, 2016, 214: 705-712.
- [88] ZHANG Y, LUO X J, MO L, et al. Bioaccumulation and translocation of polyhalogenated compounds in rice (*Oryza sativa* L.) planted in paddy soil collected from an electronic waste recycling site, South China [J]. *Chemosphere*, 2015, 137: 25-32.
- [89] HU Y X, SUN Y X, PEI N C, et al. Polybrominated diphenyl ethers and alternative halogenated flame retardants in mangrove plants from Futian National Nature Reserve of Shenzhen city, South China [J]. *Environmental Pollution*, 2020, 260: 114087.
- [90] ZHANG A P, LUO W X, SUN J Q, et al. Distribution and uptake pathways of organochlorine pesticides in greenhouse and conventional vegetables [J]. *Science of the Total Environment*, 2015, 505: 1142-1147.
- [91] 李浩楠, 黄红林, 吕丽丽, 等. 土壤中十溴二苯乙烷(DBDPE)的植物吸收传输特征及微观机制研究 [J]. *环境科学学报*, 2020, 40(5): 1848-1857.
- LI H N, HUANG H L, LYU L L, et al. Plant uptake and translocation of DBDPE in soil and the micro-mechanisms [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2020, 40(5): 1848-1857 (in Chinese).

- [92] KAJIWARA N, NOMA Y, TAKIGAMI H. Photolysis studies of technical decabromodiphenyl ether (DecaBDE) and ethane (DeBDethane) in plastics under natural sunlight [J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, 42(12): 4404-4409.
- [93] ZHOU D M, ZHENG X S, LIU X T, et al. Photodegradation of 1, 3, 5-Tris-(2, 3-dibromopropyl)-1, 3, 5-triazine-2, 4, 6-trione and decabromodiphenyl ethane flame retardants: Kinetics, main products, and environmental implications [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, 398: 122983.
- [94] LING S Y, HUANG K, TARIQ M, et al. Photodegradation of novel brominated flame retardants (NBFRs) in a liquid system: Kinetics and photoproducts [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, 362(1): 938-946.
- [95] NADJIA L, ABDELKADER E, ULRICH M, et al. Spectroscopic behavior of saytex 8010 under UV-visible light and comparative thermal study with some flame bromine retardant [J]. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, 2014, 275: 96-102.
- [96] LI C G, ZUO J L, LIANG S J, et al. Photodegradation of decabromodiphenyl ethane (DBDPE) adsorbed on silica gel in aqueous solution: Kinetics, products, and theoretical calculations [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, 375: 121918.
- [97] KLIMM A, BRENNER D, LOK B, et al. Photolytic transformation products of decabromodiphenyl ethane (DBDPE) [J]. *Environmental Science & Technology*, 2019, 53(11): 6302-6309.
- [98] 陈静. 高锰酸钾和高铁酸钾氧化降解四种卤代有机物的反应机理研究[D]. 南京: 南京大学, 2018.
CHEN J. Study on mechanisms of four halogenated organic compounds during $\text{KMnO}_4/\text{K}_2\text{FeO}_4$ oxidation process[D]. Nanjing: Nanjing University, 2018 (in Chinese).
- [99] GRAUSE G, FONSECA J D, TANAKA H, et al. A novel process for the removal of bromine from styrene polymers containing brominated flame retardant [J]. *Polymer Degradation and Stability*, 2015, 112: 86-93.
- [100] MCKINNEY M A, DIETZ R, SONNE C, et al. Comparative hepatic microsomal biotransformation of selected PBDEs, including decabromodiphenyl ether, and decabromodiphenyl ethane flame retardants in Arctic marine-feeding mammals [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2011, 30(7): 1506-1514.
- [101] WANG F X, WANG J, DAI J Y, et al. Comparative tissue distribution, biotransformation and associated biological effects by decabromodiphenyl ethane and decabrominated diphenyl ether in male rats after a 90-day oral exposure study [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, 44(14): 5655-5660.
- [102] 张晓娇, 柏杨巍, 张远, 等. 辽河流域地表水中典型抗生素污染特征及生态风险评估 [J]. *环境科学*, 2017, 38(11): 4553-4561.
ZHANG X J, BAI Y W, ZHANG Y, et al. Occurrence, distribution, and ecological risk of antibiotics in surface water in the Liaohe River basin, China [J]. *Environmental Science*, 2017, 38(11): 4553-4561 (in Chinese).
- [103] HERNANDO M D, MEZCUA M, FERNÁNDEZ-ALBA A R, et al. Environmental risk assessment of pharmaceutical residues in wastewater effluents, surface waters and sediments [J]. *Talanta*, 2006, 69(2): 334-342.
- [104] ENVIRONMENT CANADA. Canadian Environmental Protection Act, 1999. Federal environmental quality guidelines: Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs)[R]. Environment Canada, Gatineau, 2013.
- [105] WU Q H, LIU X C, LIANG C Z, et al. Historical trends and ecological risks of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and alternative halogenated flame retardants (AHFRs) in a mangrove in South China [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 599-600: 181-187.
- [106] 李文龙. 亚洲五国土壤和大气中溴代阻燃剂的时空分布和健康风险[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2016.
LI W L. Spatiotemporal variations and human health risks of brominated flame retardants in soils and air of five Asian countries[D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2016 (in Chinese).
- [107] 管玉峰, 涂秀云, 吴宏海, 等. 广东家庭室内飞尘十溴二苯乙烷和十溴联苯醚的含量及其人体暴露评估 [J]. *华南师范大学学报(自然科学版)*, 2012, 44(3): 86-90.
GUAN Y F, TU X Y, WU H H, et al. Occurrence and human exposure of decabromodiphenyl ethane (DBDPE) and decabromodiphenyl ether (BDE209) in domestic indoor dust from Guangdong Province, China [J]. *Journal of South China Normal University (Natural Science Edition)*, 2012, 44(3): 86-90 (in Chinese).
- [108] 苏冠勇. 多溴联苯醚及其衍生物的环境调查、致毒机制及其基于芳烃受体活性的健康风险评估研究[D]. 南京: 南京大学, 2013.
SU G Y. Environmental occurrence, toxicity mechanism and AhR-induced risk assessment of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and their analogues[D]. Nanjing: Nanjing University, 2013 (in Chinese).
- [109] ALI N, DIRTU A C, VAN DEN EEDE N, et al. Occurrence of alternative flame retardants in indoor dust from New Zealand: Indoor sources and human exposure assessment [J]. *Chemosphere*, 2012, 88(11): 1276-1282.
- [110] 茹淑玲, 贾慧凝, 李鑫, 等. 室内环境中通过灰尘摄入和手-口接触带来的阻燃剂人体暴露风险 [J]. *环境化学*, 2019, 38(10): 2247-2255.
RU S L, JIA H N, LI X, et al. Human exposure to flame retardants via dust ingestion and hand-to-mouth contact in indoor environment [J]. *Environmental Chemistry*, 2019, 38(10): 2247-2255 (in Chinese).
- [111] ZHAO Y F, MA J, QIU X H, et al. Gridded field observations of polybrominated diphenyl ethers and decabromodiphenyl ethane in the atmosphere of North China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(15): 8123-8129.
- [112] LIU X T, YU G, CAO Z G, et al. Estimation of human exposure to halogenated flame retardants through dermal adsorption by skin wipe [J]. *Chemosphere*, 2017, 168: 272-278.