

DOI: 10.7524/AJE.1673-5897.20220331002

董贤宝, 杨晨, 张若晗, 等. 卧室灰尘中 895 种半挥发性有机物的存在水平及健康风险[J]. 生态毒理学报, 2023, 18(1): 101-113

Dong X B, Yang C, Zhang R H, et al. Occurrence and health risk of 895 semi-volatile organic compounds in dust from bedroom [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2023, 18(1): 101-113 (in Chinese)

卧室灰尘中 895 种半挥发性有机物的存在水平及健康风险

董贤宝, 杨晨, 张若晗, 王琰, 谢晴, 陈景文, 李雪花*

大连理工大学环境学院, 工业生态与环境工程教育部重点实验室, 大连 116024

收稿日期: 2022-03-31 录用日期: 2022-05-20

摘要: 人的一生约有 1/3 的时间在睡眠中度过, 睡眠期间暴露于卧室中的半挥发性有机物(SVOCs)可能对人体健康造成不利影响。灰尘是室内 SVOCs 重要的汇, 关于卧室灰尘中 SVOCs 的复合污染水平及健康风险尚不明确。因此, 本研究采集了 19 个我国家庭卧室中的沉降灰尘, 利用气相色谱质谱仪对 895 种 SVOCs 进行高通量筛查, 并根据美国环境保护局提出的健康风险评估方法, 考虑摄入、吸入和皮肤吸收 3 种暴露途径, 评价了灰尘中 SVOCs 对幼儿和成人的健康风险。本研究在室内灰尘中共检出了 85 种 SVOCs, 包括 20 种正构烷烃、12 种多环芳烃、6 种邻苯二甲酸酯、8 种有机磷酸酯、7 种醇、6 种取代苯、9 种酚、9 种农药、4 种酯、2 种脂肪酸和 2 种其他类, 总浓度范围为 $92 \sim 1.4 \times 10^3 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ (中值: $4.3 \times 10^2 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)。在 85 种检出物中, 邻苯二甲酸酯被识别为灰尘中最主要的污染物, 对总浓度的平均贡献达到了 $(40.9 \pm 11.7)\%$ 。健康风险评估结果表明, 灰尘中的 SVOCs 不会对成人造成非致癌风险, 但 4 种 SVOCs (苯乙烯化苯酚、邻苯二甲酸二(2-乙基己基)酯、肉豆蔻酸和硬脂醇)会通过灰尘摄入途径给幼儿带来低风险。此外, 2 种多环芳烃(荧蒹和芘)的致癌风险超出可接受水平(10^{-6})。本研究通过高通量筛查方法, 阐明了室内灰尘中 SVOCs 的复合污染现状, 为室内环境中 SVOCs 风险的预防和管理提供了基础数据。

关键词: 室内灰尘; 半挥发性有机物; 高通量筛查; 人体暴露; 健康风险

文章编号: 1673-5897(2023)1-101-13 中图分类号: X171.5 文献标识码: A

Occurrence and Health Risk of 895 Semi-volatile Organic Compounds in Dust from Bedroom

Dong Xianbao, Yang Chen, Zhang Ruohan, Wang Yan, Xie Qing, Chen Jingwen, Li Xuehua*

Key Laboratory of Industrial Ecology and Environmental Engineering (MOE), School of Environmental Science and Technology, Dalian University of Technology, Dalian 116024, China

Received 31 March 2022 accepted 20 May 2022

Abstract: People spend about one third of life time on sleeping, and exposure to semi-volatile organic compounds (SVOCs) in bedroom during the sleep may cause adverse health effects in humans. Dust is an important sink of indoor SVOCs, while levels of the SVOCs and corresponding health risks in the indoor dust are still unclear. Therefore, a comprehensive screening of the SVOCs is necessary to identify the dominant pollutants in indoor environment. In this study, settled dust samples were collected in bedrooms from 19 Chinese homes to investigate the oc-

基金项目: 大连市科技创新基金项目(2020JJ26SN061); 国家自然科学基金资助项目(22176023); 国家高层次人才特殊支持计划青年拔尖人才项目

第一作者: 董贤宝(1997—), 男, 硕士研究生, 研究方向为环境暴露与健康风险评价, E-mail: DongXB@mail.dlut.edu.cn

* 通信作者 (Corresponding author), E-mail: lixuehua@dlut.edu.cn

currence, potential sources and health risks of the indoor SVOCs. Gas chromatography-mass spectrometry was used for high-throughput screening of 895 SVOCs in the indoor dust samples. Based on the health risk assessment method proposed by the United States Environmental Protection Agency, the health risks of the SVOCs with detection frequencies >10% to infants and adults were assessed, considering ingestion, inhalation and dermal absorption from dust. A total of 85 SVOCs were detected in the indoor dust samples, including 20 *n*-alkanes, 12 polycyclic aromatic hydrocarbons, 6 phthalates, 8 organophosphate esters, 7 alcohols, 6 substituted benzenes, 9 phenols, 9 pesticides, 4 esters, 2 fatty acids and 2 others, with the total concentrations ranging from $92 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ to $1.4\times 10^3 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ (median value: $4.3\times 10^2 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$). Among the 85 SVOCs, the phthalates were found to be the most abundant SVOCs in the dust, with the mean contribution of $(40.9\pm 11.7)\%$ to the total SVOCs concentrations. Bis(2-ethylhexyl) phthalate (DEHP) was the predominant phthalate, accounting for $(63.1\pm 14.5)\%$ of the total phthalate concentrations. The results of the health risk assessment indicated that the hazard index (HI) of SVOCs in the dust were negligible for adults. However, 4 SVOCs, including styrenated phenol ($\text{HI}=7.2\times 10^{-2}$), DEHP ($\text{HI}=3.8\times 10^{-2}$), myristic acid ($\text{HI}=2.2\times 10^{-2}$) and stearyl alcohol ($\text{HI}=1.1\times 10^{-2}$), were found to pose low non-carcinogenic risks to infants via dust ingestion. In addition, the carcinogenic risks (CR) of fluoranthene (3.7×10^{-6}) and pyrene (2.8×10^{-6}) were found to exceed the acceptable risk level of 10^{-6} . The present study clarified the current pollution status of the SVOCs in indoor dust based on high-throughput screening method, and provided basic data for prevention and management of SVOCs risk in the indoor environment.

Keywords: indoor dust; semi-volatile organic compounds; high-throughput screening; human exposure; health risk

在我国,人们每天约 80% ~ 90% 的时间在室内环境中度过^[1],室内空气质量对于人群健康具有重要影响。据世界卫生组织(WHO)报告,全球每年有约 400 万人因室内空气污染导致的疾病而过早死亡^[2]。而人的一生中约有 1/3 的时间在睡眠中度过,卧室是我们常处的室内环境之一,暴露于卧室中的空气污染物严重威胁人体健康。

过去的几十年里,包括家具、电子产品、建筑材料和日用品在内的消费品大量涌入到室内环境中,这些消费品往往含有大量添加剂,如阻燃剂、增塑剂、润滑剂、杀虫剂和香料等^[3]。多数添加剂是半挥发性有机物(SVOCs),接触它们可能会对人体健康造成不利影响。例如,邻苯二甲酸酯(PAEs)会导致生殖问题、呼吸道症状、儿童肥胖和神经发育障碍^[4-5];多环芳烃(PAHs)会导致心血管疾病、癌症以及 DNA 和脂质的氧化损伤^[6-8];室内灰尘中的有机磷酸酯(OPEs)被发现与哮喘和过敏性鼻炎的患病率上升显著相关^[9]。

SVOCs 会随着时间从消费品中释放到室内环境中,在空气、灰尘和物体表面重新分配,而灰尘是室内 SVOCs 重要的汇^[3]。Zhang 等^[7]在广州市的室内灰尘中检出 16 种 PAHs,菲和蔡被发现是灰尘中主要的 PAHs。Zhu 等^[10]调查了从我国 6 个地理区域收集的室内灰尘中的 9 种 PAEs,发现邻苯二甲酸

二(2-乙基己基)酯浓度水平最高。Hu 等^[11]在广州不同室内环境的灰尘中检出 8 种 OPEs 和 7 种有机磷酸二酯,磷酸三(2-氯异丙基)酯和磷酸三(2-氯乙基)酯是主要污染物。Arnold 等^[12]在美国和葡萄牙的养老机构收集的灰尘中分析了 120 种 SVOCs,发现 OPEs、PAHs 和溴化阻燃剂含量最多。现有研究多集中关注灰尘中有限几类的 SVOCs,关于 SVOCs 的复合污染水平以及相应健康风险尚不明确。

本研究从 19 个家庭卧室中采集沉降灰尘样品,使用气相色谱质谱仪(GC-MS)高通量筛查室内灰尘中 895 种 SVOCs 的存在水平,甄别主要污染物。比较本研究与前人研究中室内 SVOCs 的检出浓度,分析其潜在来源。根据美国环境保护局(US EPA)开发的健康风险评价模型,评价了灰尘中 SVOCs 对成人和幼儿的非致癌和致癌风险,为保护室内人群健康提供基础数据。

1 材料与方法 (Materials and methods)

1.1 样品采集

2021 年 8 月和 9 月,招募志愿者,在我国 13 个省市的 19 户志愿者家庭卧室中采集了灰尘样品。通过问卷调查获得采样家庭的相关信息,调查显示:16 户家庭处于交通不繁忙地带;8 个卧室每天的通风时间为 13 ~ 24 h,3 个卧室通风时间为 7 ~ 12 h,其余卧室通风时间不足 6 h;所有卧室采样期间均未

使用空气净化器;13个卧室铺设瓷砖,6个卧室铺设木质地板。

在卧室地板上,使用预先用甲醇清洗过的毛刷采集了19个沉降灰尘样品,将样品用锡箔包裹并密封在聚乙烯袋中,在 $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 下储存至提取和分析。

1.2 样品前处理及分析

取0.1 g灰尘放入玻璃离心管中,加入7种氘代回收率替代物(2,4-二氯苯酚- d_3 、茛- d_{10} 、硝基苯- d_5 、蒎- d_{10} 、对三联苯- d_{14} 、茈- d_{10} ,购自日本 Shimadzu;磷酸三苯酯- d_{15} ,购自德国 Dr. Ehrenstorfer),加入8 mL二氯甲烷(美国 Sigma,色谱纯),超声20 min(昆山市超声仪器有限公司,KQ-300E型超声波清洗器)。提取液以 $4\,000\text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ 离心15 min(湖南湘仪实验室仪器开发有限公司,湘仪 TDZ5-WS),上清液转移到另一个离心管中。再次加入8 mL二氯甲烷,按照相同步骤重复提取一次。合并所得溶液,使用硫酸钠干燥柱(美国 Agilent, Bond Elut JR-Sodium sulf, 1.4 g)进行过滤。过滤液使用氮气缓慢浓缩至1 mL,加入4 mL正己烷(美国 Sigma,色谱纯),摇匀后继续浓缩至0.5 mL,加入6种氘代物质(1,4-二氯苯- d_4 、萘- d_8 、茛- d_{10} 、菲- d_{10} 、荧蒎- d_{10} 和蒎- d_{12} ,购自德国 Dr. Ehrenstorfer)和六甲基苯(购自德国 Dr. Ehrenstorfer)作为内标,将溶液通过尼龙膜(天津津腾, nylon 66, $0.22\text{ }\mu\text{m}$)过滤至棕色小瓶,待仪器分析。

本研究对灰尘中895种SVOCs进行高通量筛查。使用GC-MS(美国 Agilent, 6890N-5975)在全扫描模式(EI源)下分析灰尘样品中的SVOCs,结合自动识别与定量系统(AIQS)数据库^[13]对886种SVOCs进行靶标筛查。该数据库中含有403种农药、78种PAHs、63种多氯联苯、54取代苯酚、50种酯、34种取代苯胺、26种脂肪酸、26种正构烷烃、20种取代硝基苯、17种醇、17种药物及个人护理品、16种取代联苯、15种氯苯、14种醚、13种PAEs、9种OPEs、6种酰胺和34种其他SVOCs的信息。分析时,使用HP-5MS毛细管柱($30\text{ m}\times 0.25\text{ mm}\times 0.25\text{ }\mu\text{m}$)分离目标物,采用不分流进样,进样体积为2 μL 。具体的仪器条件参考Li等^[14]的研究。

此外,使用GC-MS(日本 Shimadzu, QP2020)在选择离子模式(EI源)下分析了室内灰尘中的9种OPEs(磷酸三苯酯(TPHP)、磷酸三(2-氯异丙基)酯(TCIPP)、磷酸三(2-氯乙基)酯(TCEP)、磷酸三甲苯酯(TCP)、磷酸三(丁氧基乙基)酯(TBOEP)、磷酸三辛酯(TEHP)、磷酸三(1,3-二氯异丙基)酯(TDCIPP)、磷酸

三丁酯(TBP)、2-乙基己基二苯基磷酸酯(EHDPP),标准品购自德国 Dr. Ehrenstorfer)。使用SH-RXI-5silMS毛细管柱($30\text{ m}\times 0.25\text{ mm}\times 0.25\text{ }\mu\text{m}$)分离目标物。升温程序为:初始温度 $60\text{ }^{\circ}\text{C}$,保持1 min,以 $12\text{ }^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 升温至 $312\text{ }^{\circ}\text{C}$,保持10 min。采用不分流进样,进样体积为1 μL 。

1.3 质量保证和质量控制

AIQS数据库是由门上希和夫教授等^[13]开发,数据库中包含886种目标物的标准品的保留时间、校准曲线和质谱信息。使用该数据库,可以在不使用标准品的情况下自动识别实际样品中的目标物,前提条件是要保证测样时GC-MS性能与用于构建数据库的仪器性能相当。该数据库已成功应用于定量分析地下水^[14]和大气颗粒物^[15]等样品中的SVOCs。

为确保从AIQS数据库获得的目标物定性和定量结果的可靠性,需要确认本研究使用的Agilent GC-MS仪器性能。在实际样品测量前,使用性能检查标准液(NAGINATA Criteria sample mix II, 购自日本林纯药工业株式会社)评价仪器进样口衬管和色谱柱的惰性以及仪器响应情况^[13]。该标准液中,含有24种正构烷烃($\text{C}_{10}\sim\text{C}_{33}$),用于保留时间定性;16种物质(表1)用于评价仪器性能;6种氘代物(与样品前处理所加氘代内标相同)用作内标。评价结果(表1)显示:16种化合物的保留时间漂移(偏离数据库设定的保留时间)范围为 $-0.77\sim 1.10\text{ s}$;14种物质的仪器响应为 $0.66\sim 1.26$ (相对于内标的理想响应为1)。这些结果表明,使用GC-MS结合AIQS数据库对886种SVOCs进行靶标分析,能够产生可靠的定性和定量结果。

为评估实验室分析过程中的潜在污染,本研究分析了3个空白样品(仅添加溶剂和内标)。在空白样品中检出23种SVOCs,有13种为正构烷烃($\text{C}_{12}\sim\text{C}_{24}$)。23种SVOCs的平均检出质量为 $0.14\sim 9.7\text{ }\mu\text{g}$,标准偏差为 $0.0026\sim 0.80\text{ }\mu\text{g}$ 。如果样品中的目标物浓度是空白中平均浓度的2倍,则通过减去空白平均浓度来报告浓度。否则,目标物将被视为未检出。

在4个灰尘样品中加入回收率替代物,以检查方法回收率。2,4-二氯苯酚- d_3 的回收率为 $(88.6\pm 6.1)\%$,茛- d_{10} 的回收率为 $(79.8\pm 5.2)\%$,硝基苯- d_5 的回收率为 $(68.9\pm 7.1)\%$,蒎- d_{10} 的回收率为 $(79.3\pm 5.9)\%$,对三联苯- d_{14} 的回收率为 $(88.4\pm 6.2)\%$,茈- d_{10} 的回收率为 $(70.6\pm 4.8)\%$,磷酸三苯酯- d_{15} 的回收

率为(97.7±9.9)%。回收率不用于校正目标物的检出浓度。

1.4 人体暴露和健康风险评价

不同环境介质中的 SVOCs 会通过不同的暴露途径进入人体并导致健康风险。室内灰尘中的 SVOCs 可以通过经口摄入、呼吸吸入和皮肤吸收这 3 种途径进入人体。因此,本研究在暴露评价中分别计算了成人和幼儿(0~2 岁,在卧室睡眠时间长)的经口摄入(CDI_{ing})、呼吸吸入(CDI_{inh})和皮肤吸收(CDI_{der})的慢性每日摄入量(CDI) (ng·kg⁻¹·d⁻¹)^[16]:

$$CDI_{ing} = (c \times IngR \times f \times EF \times ED) / (BW \times AT \times 1000) \quad (1)$$

$$CDI_{inh} = (c \times InhR \times f \times EF \times ED \times 1000) / (BW \times AT \times PEF) \quad (2)$$

$$CDI_{der} = (c \times AF \times ABS \times SA \times f \times EF \times ED) / (BW \times AT \times 1000) \quad (3)$$

$$CDI_{total} = CDI_{ing} + CDI_{inh} + CDI_{der} \quad (4)$$

式中: c 为灰尘样品中 SVOCs 的检出浓度(ng·g⁻¹); $IngR$ 是灰尘摄入量(mg·d⁻¹); $InhR$ 是吸入率(m³·d⁻¹); AF 是附着在皮肤上的灰尘质量(mg·cm⁻²·d⁻¹); ABS 是皮肤吸收因子; SA 是暴露的皮肤表面积(cm²); BW 是体质量(kg); f 是每天人群每天花在卧室里的时间百分比; ED 是暴露持续时间(a); EF 是暴露频率(d·a⁻¹); AT 是平均总暴露时间(d); PEF 是颗粒物排放因子(m³·kg⁻¹)。相关的暴露参数取值如表 2 所示。

非致癌风险评价中,使用摄入(HQ_{ing})、吸入(HQ_{inh})和皮肤吸收(HQ_{der})这 3 种暴露途径的危害商(HQ)^[17]来表征单体 SVOC 的风险,危害指数(HI)则为 3 种暴露途径的风险加和:

$$HQ_{ing} = CDI_{ing} / RfD \quad (5)$$

$$HQ_{inh} = CDI_{inh} / RfD \quad (6)$$

$$HQ_{der} = CDI_{der} / RfD \quad (7)$$

$$HI = HQ_{ing} + HQ_{inh} + HQ_{der} \quad (8)$$

式中: RfD 是 SVOCs 的慢性毒性参考剂量(ng·kg⁻¹·d⁻¹),该数据可从美国的综合风险信息系统(IRIS)^[18]和风险评估信息系统(RAIS)^[19]等数据库获得,当数据库中缺失相关 SVOCs 的 RfD 时,本研究使用由 Wignall 等^[20]开发的定量结构-活性关系模型(QSAR)预测得到的 RfD ,用于风险评价。非致癌风险被划分为高风险(HQ>1)、中等风险(0.1≤HQ≤1)、低风险(0.01≤HQ≤0.1)和可忽略的风险(HQ<0.01)^[21]。

致癌风险评价中,成人的慢性每日摄入量被用于计算终生致癌风险(CR),方法如下^[17]:

$$CR_{ing} = CDI_{ing} \times CSF \quad (9)$$

$$CR_{inh} = CDI_{inh} \times CSF \quad (10)$$

$$CR_{der} = CDI_{der} \times CSF \quad (11)$$

$$CR_{total} = CR_{ing} + CR_{inh} + CR_{der} \quad (12)$$

式中: CR_{ing} 、 CR_{inh} 和 CR_{der} 分别表示经口摄入、呼吸吸入和皮肤吸收引起的致癌风险; CSF 为致癌斜率因子(kg·d·ng⁻¹),该数据也可从相关的数据库获得,当数据库中缺失该数据时,使用由 Wignall 等^[20]开发的模型预测值。由于缺乏不同暴露途径下 SVOCs 的 CSF 值,本研究均使用经口暴露的 CSF 来评价检出物的致癌风险。致癌风险分为不可接受的风险($CR>10^{-4}$)、潜在风险($10^{-6} \leq CR \leq 10^{-4}$)和可忽略的风险($CR<10^{-6}$)^[21-22]。

2 结果(Results)

2.1 卧室灰尘中 SVOCs 的存在水平

在 19 个灰尘样品中共检出了 85 种 SVOCs,包括 20 种正构烷烃、12 种 PAHs、6 种 PAEs、8 种 OPEs、7 种醇、6 种取代苯、9 种酚、9 种农药、4 种酯、2 种脂肪酸和 2 种其他类。灰尘中检出的 SVOCs 的总浓度范围为 92~1.4×10³ μg·g⁻¹(中值:4.3×10² μg·g⁻¹),每户家庭灰尘中至少检出 31 种 SVOCs,最多可以检出 43 种 SVOCs。本研究分析了不同种类 SVOCs 的浓度对总浓度的贡献(图 1),PAEs 是灰尘中含量最丰富的 SVOCs,对总浓度的平均贡献达到了(40.9±11.7)%;其次为正构烷烃,平均贡献为(29.8±9.7)%;其余种类的 SVOCs 的平均贡献均不超过 10%。

6 种 PAEs 的总浓度范围为 28~5.3×10² μg·g⁻¹(中值:1.4×10² μg·g⁻¹)。经浓度贡献分析(图 2),邻苯二甲酸二(2-乙基己基)酯(DEHP,检出率:100%)、邻苯二甲酸二丁酯(DBP,78.9%)和邻苯二甲酸二异丁酯(DIBP,100%)分别贡献了总浓度的(63.1±14.5)%、(25.6±17.1)%和(10.4±10.2)%,是灰尘中最主要的 3 种 PAEs。邻苯二甲酸二甲酯(DMP,47.4%)和邻苯二甲酸二乙酯(DEP,78.9%)尽管也在多个灰尘样品中检出,但二者加和贡献仅为(0.8±1.3)%。此外,仅在一个样品中检出邻苯二甲酸二正辛酯(DnOP)。

检出的正构烷烃为 C₁₂、C₁₄ 和 C₁₆~C₃₃,总浓度范围为 34~2.5×10² μg·g⁻¹(中值:1.2×10² μg·g⁻¹)。为分析灰尘中正构烷烃的可能来源,本研究计算了碳优势指数(CPI,奇数碳的正构烷烃浓度之和与偶

数碳的正构烷烃浓度之和的比值)和主峰碳($C_{\max}$, 含量最丰富的正构烷烃的碳数)2 个参数。计算出的 CPI 范围为 0.9~2.9 (中值:1.8)。从 11 个样品中识别出的 $C_{\max}$ 为 C_{29} , 其次在 5 个样品中识别出的 $C_{\max}$ 为 C_{31} 。

鲸蜡醇(检出率:84.2%)、月桂醇(73.7%)和 1-壬醇(63.2%)是灰尘中最常检出的 3 种醇,中值浓度分别达到 17、8.5 和 $1.3\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 。棕榈酸甲酯(73.7%)

和乙酰柠檬酸三丁酯(ATBC, 63.2%)则是最常检出的酯,中值浓度分别达到 $1.3\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $6.1\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 。检出 2 种脂肪酸,肉豆蔻酸和硬脂酸,但检出率均低于 20%。

壬基酚和苯乙烯化苯酚是灰尘中检出率最高的酚类污染物,二者检出率均为 57.9%,中值浓度分别为 $4.4\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $2.5\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 。此外,还检出 2,6-二叔丁基对甲酚、三氯生等,但检出率均低于 30%。

表 1 GC-MS 系统的性能
Table 1 Performance of the GC-MS system

序号 No.	化合物 Compound	保留时间漂移/s Retention-time shift/s	响应 Response
1	敌菌丹 Captafol	-0.10	0.94
2	恶唑磷 Isoxathion	-0.43	1.26
3	2,4-二氯苯胺 2,4-dichloroanilin	0.04	0.98
4	2,4-二硝基苯胺 2,4-dinitroaniline	-0.03	1.14
5	五氯酚 Pentachlorophenol	-0.11	0.35
6	西玛津 Simazine	-0.41	1.01
7	杀螟松 Fenitrothion	0.54	0.70
8	十氟三苯基磷 Decafluorotriphenylphosphine	1.10	0.83
9	2,6-二氯苯酚 2,6-dichlorophenol	0.09	0.73
10	2,6-二甲基苯胺 2,6-dimethylaniline	-0.77	1.10
11	苯并噻唑 Benzothiazole	-0.36	0.96
12	邻苯二甲酸丁苄酯 Butyl benzyl phthalate	-0.10	1.09
13	邻苯二甲酸二乙酯 Diethyl phthalate	0.32	0.99
14	磷酸三丁酯 Tributyl phosphate	0.35	0.80
15	磷酸三(2-氯乙基)酯 Tris(2-chloroethyl) phosphate	0.48	0.55
16	甲基毒死蜱 Chlorpyrifos-methyl	0.23	0.66

表 2 人体暴露评价相关参数
Table 2 Parameters for human exposure assessment

参数 Parameter	含义 Definition	单位 Unit	幼儿 Infants	成人 Adults	参考文献 Reference
IngR	摄入率 Ingestion rate	$\text{mg}\cdot\text{d}^{-1}$	60	50	[1]
InhR	吸入率 Inhalation rate	$\text{m}^3\cdot\text{d}^{-1}$	5.08	15.7	[1]
AF	附着在皮肤上的灰尘质量 Amount of dust adhering to skin	$\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$	0.2	0.07	[23]
ABS	皮肤吸收因子 Dermal absorption factor	量纲为 1 Dimensionless	0.03	0.001	[24]
SA	皮肤表面积 Skin surface area	cm^2	1 600	5 700	[23-24]
BW	体质量 Body weight	kg	8.88	60.6	[1]
f	卧室停留时间百分比 Percentage of time spent in bedroom	量纲为 1 Dimensionless	0.544	0.342	[25-26]
ED	暴露持续时间 Exposure duration	a	2	30	[24]
EF	暴露频率 Exposure frequency	$\text{d}\cdot\text{a}^{-1}$	350	350	[24]
AT	平均暴露时间 Average lifetime	d	ED×365	ED×365	[24]
PEF	颗粒物排放因子 Particulate emission factor	$\text{m}^3\cdot\text{kg}^{-1}$	1.36×10^9		[23]

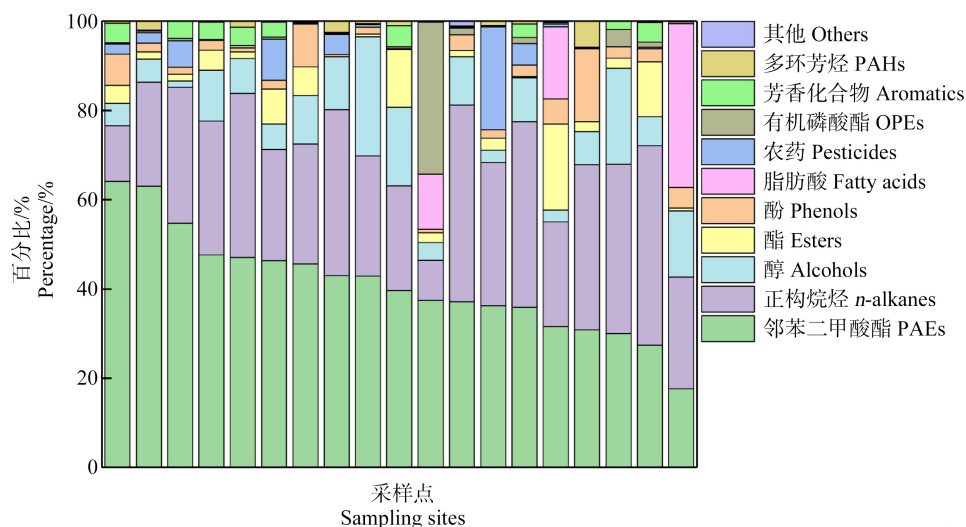


图 1 不同家庭室内灰尘中检出的半挥发性有机物的组成

注: PAHs 表示多环芳烃; OPEs 表示有机磷酸酯; PAE 表示邻苯二甲酸酯。

Fig. 1 Composition profile of semi-volatile organic compounds detected in indoor dust from different homes

Note: PAHs stands for polycyclic aromatic hydrocarbons; OPEs stands for organophosphate esters; PAEs stands for phthalates.

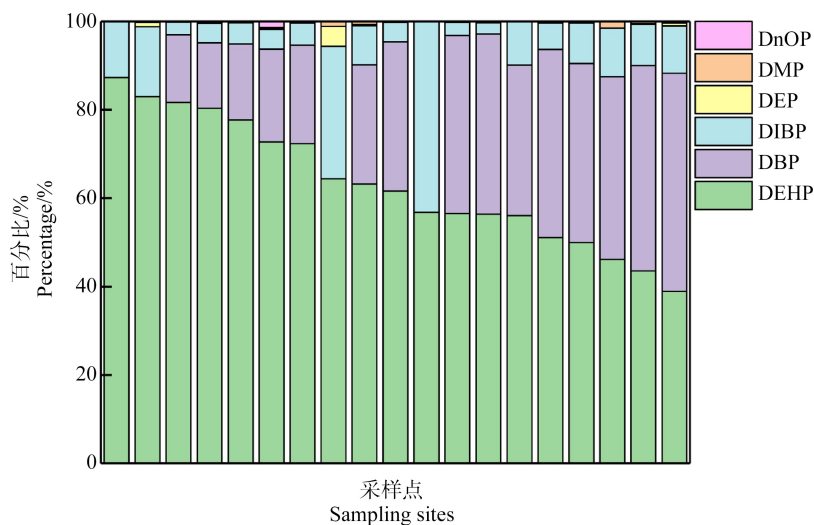


图 2 不同家庭室内灰尘中检出的邻苯二甲酸酯的组成

注: DEHP 表示邻苯二甲酸二(2-乙基己基)酯; DBP 表示邻苯二甲酸二丁酯; DIBP 表示邻苯二甲酸二异丁酯;

DMP 表示邻苯二甲酸二甲酯; DEP 表示邻苯二甲酸二乙酯; DnOP 表示邻苯二甲酸二正辛酯。

Fig. 2 Composition profile of phthalates detected in indoor dust from different homes

Note: DEHP stands for bis(2-ethylhexyl) phthalate; DBP stands for dibutyl phthalate; DIBP stands for diisobutyl phthalate;

DMP stands for dimethyl phthalate; DEP stands for diethyl phthalate; DnOP stands for di-*n*-octyl phthalate.

灰尘中检出的农药均为各类杀虫剂或杀虫剂助剂(包括 3 种拟除虫菊酯、避蚊胺和增效醚等),但检出率均未超过 50%。仅氯菊酯的检出率达到 42.1%,其最高检出浓度达 $29 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ 。

检出的 OPEs 的总浓度范围为 $0.11 \sim 4.8 \times 10^2 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ (中值: $1.6 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)。其中, TCIPP、TCEP、

TPHP、TDCIPP 和 EHDPP 均被 100% 检出,它们共同贡献了总浓度的 $(87.3 \pm 19.3)\%$ 。TCIPP 是灰尘中主要的 OPE,平均贡献为 $(33.5 \pm 21.4)\%$ 。

所有的灰尘样品中都检出 PAHs,总浓度范围为 $0.18 \sim 8.3 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ (中值: $2.0 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)。低环 PAHs 检出率相对较高,如 2-甲基萘(2 环, 84.2%)、菲(3 环,

78.9%)和萘(2环,57.9%),中值浓度分别为 0.43、0.86 和 0.18 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 。菲是灰尘中的最主要 PAH,平均贡献为(36.6±21.4)%。苯乙酮是检出率最高的取代苯(84.2%),中值浓度为 0.39 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 。

2.2 卧室灰尘中 SVOCs 的健康风险

本研究基于灰尘样品中的第 95 分位浓度,对检出率>10%的 38 种 SVOCs 进行人体暴露和健康风险评价。成人和幼儿通过摄入、吸入和皮肤吸收这 3 种途径的慢性每日摄入量如表 3 所示。3 种途径中,吸入途径的摄入量远比另外 2 种途径低,可忽略不计。暴露量计算结果表明,幼儿和成人对 DEHP 的摄入量最高,分别达到 $7.5\times 10^2 \text{ ng}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ 和 $50 \text{ ng}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ 。幼儿的摄入量均比成人的高,因此幼儿更容易受到室内灰尘中 SVOCs 的健康威胁。

针对这 38 种 SVOCs,本研究从各毒性数据库和文献中获取 RfD 值,评价它们的非致癌风险。结果显示,SVOCs 的非致癌风险(HI)均未超过 0.1。成人的非致癌风险最高仅为 4.8×10^{-3} ,来自苯乙烯化苯酚,可忽略不计。4 种 SVOCs 被发现会对儿童造成低风险,包括苯乙烯化苯酚($\text{HI}=7.2\times 10^{-2}$)、DEHP ($\text{HI}=3.8\times 10^{-2}$)、肉豆蔻酸($\text{HI}=2.2\times 10^{-2}$)和硬脂醇 ($\text{HI}=1.1\times 10^{-2}$),其风险主要是摄入灰尘导致的。

根据 WHO 的致癌物清单,在灰尘中识别出 10 种检出率>10%的致癌物,评价了它们的致癌风险(表 4)。其中,2 种 4 环 PAHs,荧蒽(3.7×10^{-6})和芘 (2.8×10^{-6})的风险被发现超出可接受水平(10^{-6}),会造成潜在的致癌风险,其致癌风险同样是由摄入灰尘导致的。其余 SVOCs 的致癌风险均可忽略。

3 讨论(Discussion)

本研究首次对我国家庭室内灰尘中的 895 种 SVOCs 开展了高通量筛查,阐明了卧室灰尘中 SVOCs 的复合污染概况。通过浓度贡献分析,从灰尘样品中检出的 85 种 SVOCs 中,识别出 PAEs 是最主要的污染物。此外,本研究对比了不同国家和地区室内灰尘中 SVOCs 的存在水平,并分析其潜在来源。

3.1 卧室灰尘中 SVOCs 的存在水平及来源分析

本研究中 PAEs 的检出水平(中值: $1.4\times 10^2 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$),低于在加拿大($626 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)^[27]、美国($288 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)^[28]。同时,本研究 PAEs 浓度也低于中国台湾地区($497 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)^[29]和广州市($241 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)^[30]的检出水平,但高于从我国 6 个地理区域($54 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)^[10]和 7

个地理区域($105 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)^[31]收集的室内灰尘中的浓度。本研究灰尘中 PAEs 组成与我国 6 个区域(DEHP:49.5%~89.4%,DBP:7.00%~31.2%,DIBP:3.20%~23.8%)^[10]和我国 7 个区域(DEHP:60.4%,DBP:28.0%,DIBP:10.5%)^[31]的组成相似,表明我国不同地区室内灰尘中的 PAEs 具有相似来源。DEHP 具有较高的辛醇-空气分配系数($\log K_{\text{oa}}=12.56$,来自 EPIWEB 4.1),容易被灰尘吸附,是灰尘中最丰富的 PAE。它还被发现是美国、法国、瑞典和日本等大多数国家灰尘中主要的 PAE^[32]。DEHP 和 DBP 广泛用作聚氯乙烯塑料(PVC)、建筑材料、电子产品和玩具等消费品中的增塑剂,而 DEP 和 DMP 不用作增塑剂,用作化妆品、家庭和个人护理产品中的添加剂^[32]。灰尘中 DEHP 和 DBP 的高检出率和高浓度,表明增塑剂的大规模使用导致 PAEs 成为室内主要的 SVOCs。

由于碳数小的正构烷烃挥发性强,不易被颗粒物吸附,本研究中碳数<23 的正构烷烃在灰尘中检出率均低于 40%。高等植物排放的正构烷烃碳数一般>24,具有较高的 C_{max} ,奇偶优势明显;化石燃料成熟度较高,燃烧排放的正构烷烃碳数一般<24,有较低的 C_{max} ^[33]。本研究识别出的 C_{max} 为 C_{29} 和 C_{31} ,这表明本研究中检出的正构烷烃明显受到植物源的影响。此外,一般化石燃料燃烧产生的正构烷烃的 CPI 值接近 1,而植物源的正构烷烃 CPI 值>5^[33]。本研究中正构烷烃的 CPI 中值为 1.8 (0.9~2.9),这说明化石燃料也是室内正构烷烃污染的重要来源。

目前,室内环境中醇污染相关的研究较少。本研究在灰尘中检出鲸蜡醇、月桂醇和 1-壬醇等 7 种醇类物质。有研究指出,鲸蜡醇、月桂醇和 1-壬醇常作为香料、乳化剂和表面活性剂等添加在各种化妆品和个人护理品中(如洗发水、肥皂和润肤乳)^[34-35]。生活用品中添加剂造成的室内污染问题需要进一步的关注。

室内环境中的 ATBC 和棕榈酸甲酯检出率较高,分别为 63.2%和 73.7%。本研究中 ATBC 的浓度(中值: $6.1 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)高于广州地区的浓度($2.68 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)^[30],但远低于美国的检出浓度($271 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)^[36]。此外,这应是首次在室内灰尘中筛查出棕榈酸甲酯。ATBC 是 PAEs 的主要替代增塑剂^[36],棕榈酸甲酯则是 PVC 和橡胶中一种重要的稳定剂和润滑剂^[37-38]。灰尘中这 2 种酯可能主要来自于塑料或橡胶制品。

表 3 幼儿和成人的慢性每日摄入量 (CDI) 及对应的参考剂量 (RfD) for infants and adults

化合物 Compound	幼儿/(ng·kg ⁻¹ ·d ⁻¹) Infants/(ng·kg ⁻¹ ·d ⁻¹)				成人/(ng·kg ⁻¹ ·d ⁻¹) Adults/(ng·kg ⁻¹ ·d ⁻¹)				RfD (mg·kg ⁻¹ ·d ⁻¹)
	CDI _{inh}	CDI _{ing}	CDI _{der}	CDI _{total}	CDI _{inh}	CDI _{ing}	CDI _{der}	CDI _{total}	
邻苯二甲酸 2-乙基 Bis(2-ethylhexyl) phthalate	4.0×10 ⁻²	6.5×10 ²	1.0×10 ²	7.5×10 ²	1.2×10 ⁻²	50	4.0×10 ⁻¹	50	0.02 ^a
邻苯二甲酸二丁酯 Dibutyl phthalate	2.9×10 ⁻²	4.7×10 ²	75	5.4×10 ²	8.3×10 ⁻³	36	2.9×10 ⁻¹	36	0.1 ^a
邻苯二甲酸二异丁酯 Diisobutyl phthalate	9.9×10 ⁻³	1.6×10 ²	25	1.8×10 ²	2.8×10 ⁻³	12	9.7×10 ⁻²	12	0.4 ^d
邻苯二甲酸二甲酯 Dimethyl phthalate	3.4×10 ⁻⁴	5.4	8.6×10 ⁻¹	6.3	9.6×10 ⁻⁵	4.1×10 ⁻¹	3.3×10 ⁻³	4.2×10 ⁻¹	0.35 ^d
邻苯二甲酸二乙酯 Diethyl phthalate	5.5×10 ⁻⁴	8.8	1.4	10	1.6×10 ⁻⁴	6.8×10 ⁻¹	5.4×10 ⁻³	6.8×10 ⁻¹	0.8 ^c
苯乙酮 Acetophenone	2.6×10 ⁻⁴	4.2	6.7×10 ⁻¹	4.9	7.5×10 ⁻⁵	3.2×10 ⁻¹	2.6×10 ⁻³	3.3×10 ⁻¹	0.1 ^a
苯并噻唑 Benzothiazole	5.3×10 ⁻⁵	8.6×10 ⁻¹	1.4×10 ⁻¹	1	1.5×10 ⁻⁵	6.6×10 ⁻²	5.3×10 ⁻⁴	6.6×10 ⁻²	0.00492 ^c
邻苯二甲酸 Phthalic acid	3.8×10 ⁻³	61	9.7	70	1.1×10 ⁻³	4.7	3.7×10 ⁻²	4.7	0.5 ^b
肉豆蔻酸 Myristic acid	2.2×10 ⁻²	3.5×10 ²	55	4.0×10 ²	6.1×10 ⁻³	27	2.1×10 ⁻¹	27	0.0181 ^c
2-甲基萘 2-methyl naphthalene	1.3×10 ⁻⁴	2.1	3.4×10 ⁻¹	2.5	3.8×10 ⁻⁵	1.6×10 ⁻¹	1.3×10 ⁻³	1.7×10 ⁻¹	0.004 ^a
联苯 Biphenyl	5.8×10 ⁻⁵	9.3×10 ⁻¹	1.5×10 ⁻¹	1.1	1.7×10 ⁻⁵	7.2×10 ⁻²	5.7×10 ⁻⁴	7.2×10 ⁻²	0.5 ^a
菲 Phenanthrene	5.4×10 ⁻⁴	8.6	1.4	10	1.5×10 ⁻⁴	6.6×10 ⁻¹	5.3×10 ⁻³	6.7×10 ⁻¹	0.00656 ^c
萘 Naphthalene	4.6×10 ⁻⁴	7.4	1.2	8.6	1.3×10 ⁻⁴	5.7×10 ⁻¹	4.5×10 ⁻³	5.7×10 ⁻¹	0.02 ^a
荧蒽 Fluoranthene	2.0×10 ⁻⁴	3.1	5.0×10 ⁻¹	3.7	5.6×10 ⁻⁵	2.4×10 ⁻¹	1.9×10 ⁻³	2.4×10 ⁻¹	0.04 ^a
芘 Pyrene	1.7×10 ⁻⁴	2.7	4.3×10 ⁻¹	3.1	4.8×10 ⁻⁵	2.1×10 ⁻¹	1.6×10 ⁻³	2.1×10 ⁻¹	0.03 ^a
月桂醇 Lauryl alcohol	4.1×10 ⁻³	67	11	77	1.2×10 ⁻³	5.1	4.1×10 ⁻²	5.2	0.0181 ^c
1-壬醇 1-nonanol	3.0×10 ⁻³	48	7.6	55	8.4×10 ⁻⁴	3.7	2.9×10 ⁻²	3.7	0.0154 ^a
硬脂醇 Stearyl alcohol	1.2×10 ⁻²	1.9×10 ²	31	2.2×10 ²	3.4×10 ⁻³	15	1.2×10 ⁻¹	15	0.0202 ^c
鲸蜡醇 Cetyl alcohol	7.1×10 ⁻³	1.1×10 ²	18	1.3×10 ²	2.0×10 ⁻³	8.8	7.0×10 ⁻²	8.9	0.0171 ^c
辛醇 Octanol	2.7×10 ⁻⁴	4.4	7.0×10 ⁻¹	5.1	7.8×10 ⁻⁵	3.4×10 ⁻¹	2.7×10 ⁻³	3.4×10 ⁻¹	0.0161 ^c

续表3

化合物 Compound	幼儿/(ng·kg ⁻¹ ·d ⁻¹) Infants/(ng·kg ⁻¹ ·d ⁻¹)			成人/(ng·kg ⁻¹ ·d ⁻¹) Adults/(ng·kg ⁻¹ ·d ⁻¹)			RfD (mg·kg ⁻¹ ·d ⁻¹)
	CDI _{inh}	CDI _{ing}	CDI _{der}	CDI _{inh}	CDI _{ing}	CDI _{der}	
苯甲醇 Benzyl alcohol	6.9×10 ⁻⁴	11	1.8	2.0×10 ⁻⁴	8.5×10 ⁻¹	6.8×10 ⁻³	8.5×10 ⁻¹ 0.1 ^a
棕榈酸甲酯 Methyl palmitate	1.0×10 ⁻³	16	2.6	2.9×10 ⁻⁴	1.3	1.0×10 ⁻²	1.3 0.0283 ^c
硬脂酸甲酯 Methyl stearate	1.0×10 ⁻³	16	2.6	2.9×10 ⁻⁴	1.2	9.9×10 ⁻³	1.3 0.0282 ^c
己二酸双(2-乙基己基)酯 Bis(2-ethylhexyl) adipate	1.3×10 ⁻³	21	3.3	3.7×10 ⁻⁴	1.6	1.3×10 ⁻²	1.6 0.6 ^a
乙酯柠檬酸三丁酯 Acetyl tri- <i>n</i> -butyl citrate	1.1×10 ⁻²	1.7×10 ²	28	3.1×10 ⁻³	13	1.1×10 ⁻¹	13 0.0403 ^c
2,6-二叔丁基对甲酚 Butylated hydroxytoluene	5.6×10 ⁻⁴	9	1.4	1.6×10 ⁻⁴	6.9×10 ⁻¹	5.5×10 ⁻³	7.0×10 ⁻¹ 0.3 ^b
壬基酚 Nonyl phenol	3.4×10 ⁻³	55	8.9	9.8×10 ⁻⁴	4.2	3.4×10 ⁻²	4.3 0.0171 ^c
苯乙烯化苯酚 Styrenated phenol	4.7×10 ⁻³	76	12	1.3×10 ⁻³	5.8	4.7×10 ⁻²	5.9 0.00123 ^c
氯菊酯 Permethrin	6.1×10 ⁻³	98	16	1.7×10 ⁻³	7.5	6.0×10 ⁻²	7.6 0.05 ^a
避蚊胺 Diethyltoluamide	1.8×10 ⁻⁴	2.9	4.7×10 ⁻¹	5.2×10 ⁻⁵	2.2×10 ⁻¹	1.8×10 ⁻³	2.3×10 ⁻¹ 0.0171 ^c
磷酸三(2-氯乙基)酯 Tris(2-chloroethyl) phosphate	5.3×10 ⁻⁴	8.5	1.4	1.5×10 ⁻⁴	6.5×10 ⁻¹	5.2×10 ⁻³	6.6×10 ⁻¹ 0.007 ^b
磷酸三(1-氯-2-丙基)酯 Tris(1-chloro-2-propyl) phosphate	2.5×10 ⁻³	41	6.5	7.2×10 ⁻⁴	3.1	2.5×10 ⁻²	3.2 0.01 ^b
磷酸三(1,3-二氯-2-丙基)酯 Tris(1,3-dichloro-2-propyl) phosphate	9.3×10 ⁻³	1.5×10 ²	24	2.7×10 ⁻³	12	9.2×10 ⁻²	12 0.02 ^b
磷酸三苯酯 Triphenyl phosphate	2.6×10 ⁻⁴	4.1	6.6×10 ⁻¹	7.3×10 ⁻⁵	3.2×10 ⁻¹	2.5×10 ⁻³	3.2×10 ⁻¹ 0.00367 ^b
磷酸三(丁氧基乙基)酯 Tris(2-butoxyethyl) phosphate	1.0×10 ⁻⁴	1.6	2.6×10 ⁻¹	2.8×10 ⁻⁵	1.2×10 ⁻¹	9.8×10 ⁻⁴	1.2×10 ⁻¹ 0.012 ^c
磷酸二苯基异辛酯 2-ethylhexyl diphenyl phosphate	1.3×10 ⁻⁴	2.1	3.3×10 ⁻¹	3.7×10 ⁻⁵	1.6×10 ⁻¹	1.3×10 ⁻³	1.6×10 ⁻¹ 0.0124 ^b
磷酸三辛酯 Tris(2-ethylhexyl) phosphate	9.7×10 ⁻⁵	1.6	2.5×10 ⁻¹	2.8×10 ⁻⁵	1.2×10 ⁻¹	9.6×10 ⁻⁴	1.2×10 ⁻¹ 0.1 ^b
磷酸三甲苯酯 Tricresyl phosphate	4.0×10 ⁻⁵	6.4×10 ⁻¹	1.0×10 ⁻¹	1.1×10 ⁻⁵	4.9×10 ⁻²	3.9×10 ⁻⁴	5.0×10 ⁻² 0.02 ^c

注: CDI_{inh} 表示吸入量; CDI_{ing} 表示经口摄入量; CDI_{der} 表示皮肤吸收量; CDI_{total} 表示总摄入量; RfD 表示参考剂量; ^a 数据来自综合风险信息系统^[18]; ^b 数据来自自风险评估信息系统^[19]; ^c Wignall 等^[20]开发的定量结构-活性关系模型预测值; ^d 数据来自文献[14]。

Note: CDI_{inh} stands for intake via inhalation; CDI_{ing} stands for intake via dermal absorption; CDI_{der} stands for intake via dermal absorption; CDI_{total} stands for total intake; RfD stands for reference dose; ^a the data were from the Integrated Risk Information System^[18]; ^b the data were from the Risk Assessment Information System^[19]; ^c the data were predicted using the quantitative structure-activity relationship model developed by Wignall et al.^[20]; ^d the data were from the literature [14].

酚在住宅环境中普遍存在^[39]。本研究在一半以上的家庭中检出壬基酚和苯乙烯化苯酚。壬基酚广泛用作日用化学品和纺织品中的表面活性剂,也作为抗氧化剂加入塑料制品,是环境中普遍检出的雌激素物质^[40]。本研究中壬基酚检出浓度($4.4 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)低于加拿大的部分地区的检出浓度($4.9 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)^[41],高于日本的部分地区的检出浓度($3.1 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)^[42],且比我国 2013 年部分地区研究的检出浓度($3 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$)^[43]高出 1 000 多倍。此外,苯乙烯化苯酚常用作橡胶防老剂(抗氧化剂),是酚类防老剂中使用较广泛的品种^[44]。然而,目前关于室内灰尘中苯乙烯化苯酚的发现较少,需要进一步研究室内环境中该类物质的污染水平。

本研究中 OPEs 的检出浓度(中值: $1.6 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)高于成都($0.5 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)^[45]和广州($1.4 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)^[30]地区灰尘中浓度,但低于上海($11.5 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)^[46]、大连和通辽($2.5 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)^[47]地区灰尘中浓度。本研究发现氯化 OPEs (TCIPP、TCEP 和 TDCIPP)和非氯化 OPEs (TPHP 和 EHDPP)都与 DEHP 具有显著相关性($P < 0.05$)。已有研究表明,氯化 OPEs 常作为聚氨酯泡沫(PUF)中的阻燃剂,而非氯化 OPEs 则被广泛用作 PVC 和 PUF 中的增塑剂^[48]。由此可知,灰尘中 DEHP 和 OPEs 可能具有共同来源。此外,TCEP 由于其致癌性已逐渐被 TCIPP 和 TDCIPP 替代,并在欧

盟、美国等多个地区被禁用,但在我国仍在使用且没有任何管控措施^[48]。本研究中在所有样品中检出 TCEP,且其对 OPEs 总浓度的平均贡献达到(15.6 ± 18.5)%,值得进一步关注。

本研究中 PAHs 的浓度水平(中值: $2.0 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)与广州地区的浓度($2.17 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)^[7]相当。本研究发现,灰尘中的 PAHs 以菲为主,这与在广州^[7]、大连和通辽^[47]地区的研究结果具有一致性。据报道,在亚洲,交通排放、烹饪和生物质燃烧是 PAHs 的主要来源,室内烹饪、取暖和吸烟活动则会直接加重增加室内 PAHs 污染^[49]。通常低环 PAHs (2~3 环)来源于石油污染和木柴、煤等在低中温度燃烧,高环 PAHs (4~6 环)主要来源于化石燃料的高温燃烧^[50]。本研究结果发现灰尘中的 PAHs 以低环为主,推测室内灰尘中 PAHs 主要来自烹饪等室内源。

3.2 卧室灰尘中 SVOCs 的健康风险评价

本研究从筛查出的 85 种 SVOCs 中,选取 38 种检出率>10% 的 SVOCs 进行了健康风险评价。结果表明,所有检出 SVOCs 对成人均无非致癌风险。然而对幼儿来说,苯乙烯化苯酚、DEHP、肉豆蔻酸和硬脂醇的暴露会对 0~2 岁的幼儿造成一定程度的非致癌风险($HI > 0.01$)。幼儿的非致癌风险主要是由室内灰尘摄入所导致。幼儿暴露于灰尘中 SVOCs 的健康风险大于成人的主要原因是:幼儿单位体质量

表 4 半挥发性有机物的致癌斜率因子(CSF)和致癌风险(CR)

Table 4 Carcinogenic slope factor (CSF) and carcinogenic risk (CR) of semi-volatile organic compounds

化合物 Compound	CSF/($\text{kg} \cdot \text{d} \cdot \text{mg}^{-1}$)	CR _{ing}	CR _{der}	CR _{inh}	CR _{total}
邻苯二甲酸二(2-乙基己基)酯 Bis(2-ethylhexyl) phthalate	0.014 ^a	7.0×10^{-7}	5.6×10^{-9}	1.6×10^{-10}	7.0×10^{-7}
联苯 Biphenyl	0.008 ^b	5.7×10^{-10}	4.6×10^{-12}	1.3×10^{-13}	5.8×10^{-10}
菲 Phenanthrene	0.828 ^c	5.5×10^{-7}	4.4×10^{-9}	1.3×10^{-10}	5.5×10^{-7}
萘 Naphthalene	0.12 ^c	6.8×10^{-8}	5.4×10^{-10}	1.6×10^{-11}	6.9×10^{-8}
荧蒽 Fluoranthene	15 ^c	3.6×10^{-6}	2.9×10^{-8}	8.4×10^{-10}	3.7×10^{-6}
苈 Pyrene	13.5 ^c	2.8×10^{-6}	2.2×10^{-8}	6.4×10^{-10}	2.8×10^{-6}
己二酸双(2-乙基己基)酯 Bis(2-ethylhexyl) adipate	0.0012 ^a	1.9×10^{-9}	1.5×10^{-11}	4.4×10^{-13}	1.9×10^{-9}
2,6-二叔丁基对甲酚 Butylated hydroxytoluene	0.0036 ^b	2.5×10^{-9}	2.0×10^{-11}	5.7×10^{-13}	2.5×10^{-9}
氯菊酯 Permethrin	0.00957 ^b	7.2×10^{-8}	5.8×10^{-10}	1.7×10^{-11}	7.3×10^{-8}
磷酸三(2-氯乙基)酯 Tris(2-chloroethyl) phosphate	0.02 ^c	1.3×10^{-8}	1.0×10^{-10}	3.0×10^{-12}	1.3×10^{-8}

注:CSF 表示致癌斜率因子;CR_{ing} 表示摄入致癌风险;CR_{der} 表示皮肤吸收致癌风险;CR_{inh} 表示吸入致癌风险;CR_{total} 表示总致癌风险;^a 数据来自综合风险信息系统^[18];^b 数据来自风险评估信息系统^[19];^c Wignall 等^[20]开发的定量结构-活性关系模型预测值。

Note: CSF stands for carcinogenic slope factor; CR_{ing} stands for carcinogenic risk via ingestion; CR_{der} stands for carcinogenic risk via dermal absorption; CR_{inh} stands for carcinogenic risk via inhalation; CR_{total} stands for total carcinogenic risk;^a the data were from the Integrated Risk Information System^[18];^b the data were from the Risk Assessment Information System^[19];^c the data were predicted using the quantitative structure-activity relationship model developed by Wignall et al.^[20]

的摄入比成人多,且具有相对频繁的爬行和手对口的行为^[51-52]。本研究首次发现室内环境中苯乙烯化苯酚对人体健康造成潜在风险。苯乙烯化苯酚在橡胶中应用广泛,也经常室内灰尘中检出,但关于它的毒性数据非常缺乏。由于毒性数据的缺乏,本研究中采用QSAR预测的RfD值,评价了其非致癌风险,这可能导致低估或高估实际风险。因此,有必要继续关注室内灰尘中苯乙烯化苯酚对人体健康的风险。此外,研究表明DEHP具有生殖和发育毒性,产前暴露于DEHP可能会增加儿童行为和情绪问题^[53]。幼儿正处于生长发育的关键阶段,需要进一步关注室内SVOCs对幼儿的健康风险。

室内灰尘中2种PAHs(荧蒹和芘)对人群的致癌风险,超过了US EPA推荐的致癌风险的可接受水平(10^{-6})。本研究在灰尘中发现荧蒹和芘是主要的致癌风险来源,它们属于高环PAHs,毒性更大。尽管灰尘中含量更丰富的低环PAHs显示出的致癌风险可忽略,但考虑到PAHs之间的协同作用^[54],灰尘中PAHs的联合致癌风险可能会更高。需要进一步关注室内PAHs污染。

本研究通过在室内灰尘中筛查895种SVOCs的存在水平和健康风险,发现了6种SVOCs对人体健康具有潜在危害。然而,本研究仍存在一定的局限性:灰尘样本数量较少,无法较为全面地反映我国家庭灰尘中SVOCs的污染状况,未来研究需要进一步扩大样本量;部分SVOCs的RfD和CSF是通过QSAR模型预测得到,人群暴露于SVOCs的实际健康风险可能被高估或低估;筛查室内SVOCs的健康风险时,未考虑检出的复合污染物的潜在相互作用和联合毒性效应,风险结果存在一定的不确定性。因此,仍需进一步开展研究关注室内SVOCs污染对人体健康的风险。

通信作者简介:李雪花(1980—),女,博士,教授,主要研究方向为化学品生态风险预测与评价。

参考文献(References):

- [1] 段小丽. 中国人群暴露参数手册[M]. 北京: 中国环境出版社, 2013: 269-271
Duan X L. Exposure Factors Handbook of Chinese Population [M]. Beijing: China Environmental Science Press, 2013: 269-271 (in Chinese)
- [2] World Health Organization. Household air pollution and health [EB/OL]. (2021-09-22) [2022-03-26]. <https://www.who.int/news-room/fact-sheets/detail/household-air-pollution-and-health>
- [3] Lucattini L, Poma G, Covaci A, et al. A review of semi-volatile organic compounds (SVOCs) in the indoor environment: Occurrence in consumer products, indoor air and dust [J]. Chemosphere, 2018, 201: 466-482
- [4] Sedha S, Lee H, Singh S, et al. Reproductive toxic potential of phthalate compounds—State of art review [J]. Pharmacological Research, 2021, 167: 105536
- [5] Katsikantami I, Sifakis S, Tzatzarakis M N, et al. A global assessment of phthalates burden and related links to health effects [J]. Environment International, 2016, 97: 212-236
- [6] Poursafa P, Moosazadeh M, Abedini E, et al. A systematic review on the effects of polycyclic aromatic hydrocarbons on cardiometabolic impairment [J]. International Journal of Preventive Medicine, 2017, 8: 19
- [7] Zhang Y J, Huang C, Lv Y S, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbon exposure, oxidative potential in dust, and their relationships to oxidative stress in human body: A case study in the indoor environment of Guangzhou, South China [J]. Environment International, 2021, 149: 106405
- [8] Idowu O, Semple K T, Ramadass K, et al. Beyond the obvious: Environmental health implications of polar polycyclic aromatic hydrocarbons [J]. Environment International, 2019, 123: 543-557
- [9] Araki A, Saito I, Kanazawa A, et al. Phosphorus flame retardants in indoor dust and their relation to asthma and allergies of inhabitants [J]. Indoor Air, 2014, 24(1): 3-15
- [10] Zhu Q Q, Jia J B, Zhang K G, et al. Phthalate esters in indoor dust from several regions, China and their implications for human exposure [J]. The Science of the Total Environment, 2019, 652: 1187-1194
- [11] Hu Q P, Xu L, Liu Y, et al. Co-occurrence and distribution of organophosphate tri- and di-esters in indoor dust from different indoor environments in Guangzhou and their potential human health risk [J]. Environmental Pollution, 2020, 262: 114311
- [12] Arnold K, Teixeira J P, Mendes A, et al. A pilot study on semivolatile organic compounds in senior care facilities: Implications for older adult exposures [J]. Environmental Pollution, 2018, 240: 908-915
- [13] Kadokami K, Tanada K, Taneda K, et al. Novel gas chromatography-mass spectrometry database for automatic identification and quantification of micropollutants [J]. Journal of Chromatography A, 2005, 1089(1-2): 219-226
- [14] Li X H, Tian T, Shang X C, et al. Occurrence and health

- risks of organic micro-pollutants and metals in groundwater of Chinese rural areas [J]. *Environmental Health Perspectives*, 2020, 128(10): 107010
- [15] Duong H T, Kadokami K, Trinh H T, et al. Target screening analysis of 970 semi-volatile organic compounds adsorbed on atmospheric particulate matter in Hanoi, Vietnam [J]. *Chemosphere*, 2019, 219: 784-795
- [16] United States Environmental Protection Agency. Guidelines for exposure assessment [R]. Washington DC: United States Environmental Protection Agency, 1992
- [17] United States Environmental Protection Agency. Risk-assessment guidance for Superfund. Volume 1. Human health evaluation manual. Part A. Interim report (Final) [R]. Washington DC: United States Environmental Protection Agency, 1989
- [18] United States Environmental Protection Agency. Integrated Risk Information System [DB/OL]. [2022-03-26]. <https://www.epa.gov/iris>
- [19] United States Environmental Protection Agency. The Risk Assessment Information System [DB/OL]. [2022-03-26]. https://rais.ornl.gov/cgi-bin/tools/TOX_search?select=chemtox
- [20] Wignall J A, Muratov E, Sedykh A, et al. Conditional toxicity value (CTV) predictor: An *in silico* approach for generating quantitative risk estimates for chemicals [J]. *Environmental Health Perspectives*, 2018, 126(5): 057008
- [21] Ramos R L, Moreira V R, Lebron Y A R, et al. Phenolic compounds seasonal occurrence and risk assessment in surface and treated waters in Minas Gerais-Brazil [J]. *Environmental Pollution*, 2021, 268(Pt A): 115782
- [22] Bai L, Chen W Y, He Z J, et al. Pollution characteristics, sources and health risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in PM_{2.5} in an office building in northern areas, China [J]. *Sustainable Cities and Society*, 2020, 53: 101891
- [23] United States Environmental Protection Agency. Supplemental guidance for developing soil screening levels for superfund sites [R]. Washington DC: United States Environmental Protection Agency, 2002
- [24] Doyi I N Y, Isley C F, Soltani N S, et al. Human exposure and risk associated with trace element concentrations in indoor dust from Australian homes [J]. *Environment International*, 2019, 133: 105125
- [25] United States Environmental Protection Agency. Exposure factors handbook chapter 16 (activity factors) [R]. Washington DC: United States Environmental Protection Agency, 2011
- [26] Boor B E, Spilak M P, Laverge J, et al. Human exposure to indoor air pollutants in sleep microenvironments: A literature review [J]. *Building and Environment*, 2017, 125: 528-555
- [27] Yang C Q, Harris S A, Jantunen L M, et al. Phthalates: Relationships between air, dust, electronic devices, and hands with implications for exposure [J]. *Environmental Science & Technology*, 2020, 54(13): 8186-8197
- [28] Bi C Y, Maestre J P, Li H W, et al. Phthalates and organophosphates in settled dust and HVAC filter dust of US low-income homes: Association with season, building characteristics, and childhood asthma [J]. *Environment International*, 2018, 121: 916-930
- [29] Huang C N, Chiou Y H, Cho H B, et al. Children's exposure to phthalates in dust and soil in Southern Taiwan: A study following the phthalate incident in 2011 [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 696: 133685
- [30] Tang B, Christia C, Malarvannan G, et al. Legacy and emerging organophosphorus flame retardants and plasticizers in indoor microenvironments from Guangzhou, South China [J]. *Environment International*, 2020, 143: 105972
- [31] Li X, Zhang W P, Lv J P, et al. Distribution, source apportionment, and health risk assessment of phthalate esters in indoor dust samples across China [J]. *Environmental Sciences Europe*, 2021, 33(1): 1-14
- [32] Kashyap D, Agarwal T. Concentration and factors affecting the distribution of phthalates in the air and dust: A global scenario [J]. *The Science of the Total Environment*, 2018, 635: 817-827
- [33] 程玲珑, 李杏茹, 徐小娟, 等. 唐山市大气气溶胶中正构烷烃污染特征及来源分析[J]. *环境化学*, 2016, 35(9): 1808-1814
- Cheng L L, Li X R, Xu X J, et al. Pollution characteristics and source analysis of n-alkanes in atmospheric aerosol of Tangshan [J]. *Environmental Chemistry*, 2016, 35 (9): 1808-1814 (in Chinese)
- [34] Fiume M, Bergfeld W F, Belsito D V, et al. Final report on the safety assessment of sodium cetearyl sulfate and related alkyl sulfates as used in cosmetics [J]. *International Journal of Toxicology*, 2010, 29(Suppl. 3): 115S-132S
- [35] Api A M, Belsito D, Biserta S, et al. RIFM fragrance ingredient safety assessment, 1-nonanol, 2, 4, 6, 8-tetramethyl-, acetate, CAS Registry Number 68922-14-5 [J]. *Food and Chemical Toxicology*, 2020, 144: 111640
- [36] Subedi B, Sullivan K D, Dhungana B. Phthalate and non-phthalate plasticizers in indoor dust from childcare facilities, salons, and homes across the USA [J]. *Environmental*

- Pollution, 2017, 230: 701-708
- [37] Qi Y Y, He J H, Li Y F, et al. A novel treatment method of PVC-medical waste by near-critical methanol: Dechlorination and additives recovery [J]. Waste Management, 2018, 80: 1-9
- [38] Meng Z R, Gao X, Yu H F, et al. Compatibility of rubber stoppers for recombinant antitumor-antivirus protein injection by gas chromatography-mass spectrometry [J]. Journal of Pharmaceutical Analysis, 2019, 9(3): 178-184
- [39] Levasseur J L, Hammel S C, Hoffman K, et al. Young children's exposure to phenols in the home: Associations between house dust, hand wipes, silicone wristbands, and urinary biomarkers [J]. Environment International, 2021, 147: 106317
- [40] 董林娟, 王孟, 石钰. 塑料鞋材中壬基酚和壬基酚聚氧乙烯醚的检测[J]. 塑料科技, 2021, 49(11): 101-105
Dong L J, Wang M, Shi Y. Determination of nonylphenol and nonylphenol polyoxyethylene ether in plastic shoe materials [J]. Plastics Science and Technology, 2021, 49(11): 101-105 (in Chinese)
- [41] Kubwabo C, Rasmussen P E, Fan X H, et al. Simultaneous quantification of bisphenol A, alkylphenols and alkylphenol ethoxylates in indoor dust by gas chromatography-tandem mass spectrometry and a comparison between two sampling techniques [J]. Analytical Methods, 2016, 8(20): 4093-4100
- [42] Kanazawa A, Saito I, Araki A, et al. Association between indoor exposure to semi-volatile organic compounds and building-related symptoms among the occupants of residential dwellings [J]. Indoor Air, 2010, 20(1): 72-84
- [43] Lu X M, Chen M J, Zhang X L, et al. Simultaneous quantification of five phenols in settled house dust using ultra-high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Analytical Methods, 2013, 5(19): 5339-5344
- [44] 张金龙, 陈墨雨. 苯乙烯化苯酚的合成研究[J]. 精细石油化工进展, 2009, 10(1): 51-52, 55
Zhang J L, Chen M Y. Synthesis of styrenated phenol [J]. Advances in Fine Petrochemicals, 2009, 10(1): 51-52, 55 (in Chinese)
- [45] Chen M Q, Jiang J Y, Gan Z W, et al. Grain size distribution and exposure evaluation of organophosphorus and brominated flame retardants in indoor and outdoor dust and PM₁₀ from Chengdu, China [J]. Journal of Hazardous Materials, 2019, 365: 280-288
- [46] 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
- [47] Yang Y, Wang Y, Tan F, et al. Pet hair as a potential sentinel of human exposure: Investigating partitioning and exposures from OPEs and PAHs in indoor dust, air, and pet hair from China [J]. The Science of the Total Environment, 2020, 745: 140934
- [48] Hou M M, Shi Y L, Na G S, et al. A review of organophosphate esters in indoor dust, air, hand wipes and silicone wristbands: Implications for human exposure [J]. Environment International, 2021, 146: 106261
- [49] Ma Y N, Harrad S. Spatiotemporal analysis and human exposure assessment on polycyclic aromatic hydrocarbons in indoor air, settled house dust, and diet: A review [J]. Environment International, 2015, 84: 7-16
- [50] 李法松, 韩铖, 周葆华, 等. 安徽省室内降尘中多环芳烃分布及来源解析[J]. 中国环境科学, 2016, 36(2): 363-369
Li F S, Han C, Zhou B H, et al. Distribution and source analysis of polycyclic aromatic hydrocarbons in indoor dust from Anhui Province, China [J]. China Environmental Science, 2016, 36(2): 363-369 (in Chinese)
- [51] Selevan S G, Kimmel C A, Mendola P. Identifying critical windows of exposure for children's health [J]. Environmental Health Perspectives, 2000, 108(Suppl.3): 451-455
- [52] Moya J, Phillips L. A review of soil and dust ingestion studies for children [J]. Journal of Exposure Science & Environmental Epidemiology, 2014, 24(6): 545-554
- [53] Yoon H, Kim T H, Lee B C, et al. Comparison of the exposure assessment of di(2-ethylhexyl) phthalate between the PBPK model-based reverse dosimetry and scenario-based analysis: A Korean general population study [J]. Chemosphere, 2022, 294: 133549
- [54] Staal Y C, Hebels D G, van Herwijnen M H, et al. Binary PAH mixtures cause additive or antagonistic effects on gene expression but synergistic effects on DNA adduct formation [J]. Carcinogenesis, 2007, 28(12): 2632-2640

