

DOI: 10.7524/j.issn.0254-6108.2017110302

林必桂, 陈希超, 杜宏伟, 等. 珠三角电子垃圾拆解区室内环境中多溴联苯醚的人体暴露[J]. 环境化学, 2018, 37(9): 1910-1920.

LIN Bigui, CHEN Xichao, DU Hongwei, et al. Human exposure to PBDEs in indoor environment at an e-waste area in Pearl River Delta[J]. Environmental Chemistry, 2018, 37(9): 1910-1920.

珠三角电子垃圾拆解区室内环境中 多溴联苯醚的人体暴露*

林必桂^{1,2,3} 陈希超² 杜宏伟² 乔 静⁴ 李良忠² 张国志⁴ 于云江^{1,2,3**}

(1. 有机地球化学国家重点实验室, 中国科学院广州地球化学研究所, 广州, 510640;

2. 国家环境保护环境污染健康风险评价重点实验室, 环境保护部华南环境科学研究所, 广州, 510655;

3. 中国科学院大学, 北京, 100049; 4. 清远市人民医院, 清远, 511518)

摘 要 通过对清远市电子垃圾拆解区 11 户居民室内积尘和室内空气颗粒物中 PBDEs 和 PBB153 赋存量和赋存特征的分析, 以及利用环境保护部近年编著的《中国人群暴露参数手册》中的暴露参数对该地区的人群暴露量和暴露特征进行评估. 结果表明, 研究区域居民室内积尘中 PBDEs 的含量为 646—7862 ng·g⁻¹, 室内空气颗粒物中含量为 477—1579 pg·m⁻³; PBDEs 及其各单体以及 PBB153 在室内积尘和室内空气颗粒物中的含量之间具有显著的相关性 ($r=0.629-0.895, P<0.05$), 其主要来源可能是室外输送; 男性成人、女性成人和儿童 (9—12 岁) 对室内环境介质中 PBDEs 的总暴露量分别为 2507±2099、2831±2400、8455±7382 pg·kg⁻¹·d⁻¹ bw. 对不同暴露途径而言, 所有暴露人群经口摄入积尘中上述化合物的日均暴露量占日均暴露量的比例最高, 其次是经呼吸暴露, 经皮肤暴露相对较低. 对于不同暴露人群而言, 儿童经皮肤暴露摄入上述化合物的比例相对最高, 而男性成人经呼吸摄入上述化合物的比例相对最高.

关键词 室内灰尘, 室内空气, 多溴联苯醚 (PBDEs), 人体暴露量, 暴露特征, 电子垃圾拆解区, 清远市.

Human exposure to PBDEs in indoor environment at an e-waste area in Pearl River Delta

LIN Bigui^{1,2,3} CHEN Xichao² DU Hongwei² QIAO Jing⁴ LI Liangzhong²
ZHANG Guozhi⁴ YU Yunjiang^{1,2,3**}

(1. State Key Laboratory of Organic Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences,

Guangzhou, 510640, China; 2. State Environmental Protection Key Laboratory of Environmental Pollution Health Risk

Assessment, South China Institute of Environmental Sciences, Ministry of Environmental Protection, Guangzhou, 510655, China;

3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing, 100049, China; 4. The People's Hospital of Qingyuan, Qingyuan, 511518, China)

Abstract: Human exposure to PBDEs and PBB153 in indoor dust and in indoor air of 11 households at an e-waste recycling area in Qingyuan City was investigated. Using the exposure parameters in the “Exposure Factors Handbook of Chinese Population” compiled by the Ministry of Environmental

2017 年 11 月 3 日收稿 (Received: November 3, 2017).

* 国家自然科学基金 (NSFC)-广东联合基金 (U1401233) 和中央级公益性科研院所基本科研业务费专项资金 (PM-zx703-201701-030, PM-zx703-201602-042) 资助.

Supported by the Joint fund of the National Natural Science Foundation of China (NSFC) and People's Government of Guangdong Province (U1401233) and Central Fund Supporting Nonprofit Scientific Institutes for Basic Research and Development (PM-zx703-201701-030, PM-zx703-201602-042).

** 通讯联系人, Tel: 020-29119807, E-mail: yuyunjiang@scies.org

Corresponding author, Tel: 020-29119807, E-mail: yuyunjiang@scies.org

Protection, the human exposure dose and its characteristics in this area were assessed. The results showed that the PBDEs levels in indoor dust and indoor air particulate were 647—7862 ng·g⁻¹ and 477—1579 pg·m⁻³, respectively. And there was a significant correlation between the levels of PBDEs and PBB153 in indoor dust and indoor air particles ($r = 0.629—0.895$, $P < 0.05$). Their main source may be from outdoors. The total exposure to PBDEs in indoor environmental media of male adults, female adults and children (9—12 years old) were 2507 ± 2099, 2838 ± 2400 and 8455 ± 7382 pg·kg⁻¹·d⁻¹ bw, respectively. For different exposure pathways, dust ingestion for the average daily exposure of these compounds was the highest, followed by inhalation exposure and skin exposure. For different exposed populations, skin exposure to these compounds was the highest for children, while male adults had the highest intake of these compounds by breathing.

Keywords: indoor dust, indoor air, polybrominated diphenyl ethers, human exposure, exposure characteristics, e-waste area, Qingyuan City.

溴系阻燃剂(brominated flame retardants, BFRs)广泛应用于塑料、电子、建筑、纺织等材料和产品中,是一类环境中广泛存在的全球性有机污染物.其中,多溴联苯醚(PBDEs)、多溴联苯(PBBs)等溴系阻燃剂具有环境持久性、远距离传输、生物可累积性及对生物和人体具有毒害效应等持久性有机污染物(POPs)的特性,因此,PBDEs等BFRs带来的环境问题成为环境学科近二十年来持续关注的热点^[1].由于PBDEs对人体具有内分泌干扰效应、生殖毒性、肝脏毒性和神经毒性等效应^[2-4],因此,人体PBDEs的暴露水平及暴露特征是当前很受关注的热点问题^[5].

近十年来有不少研究强调了室内暴露尤其是灰尘摄入PBDEs的重要性,因为在现代城市生活中,人们每天80%以上的时间都在室内,室内的家用电器、纺织品等都会释放PBDEs,并通过积尘和空气被摄入人体^[6-7].研究已经证实,室内灰尘是PBDEs暴露的主要来源之一,这与多氯联苯(PCBs)和DDT等主要通过饮食暴露是不同的^[8-9].Lorber^[10]对美国人体内PBDEs暴露途径进行了总结,发现饮食暴露只占总暴露的17%,80%的暴露可能是通过室内灰尘的暴露.

我国是电子垃圾进口和拆解大国,据统计2014年我国电子废弃物的产生量约为600万吨,位列全球第二;此外,中国还是电子电器废弃物的主要进口国,据报道美国电子垃圾的70%进入了中国^[11].我国环境介质中PBDEs等的监测数据也证实了水体、空气、土壤以及室内积尘和室内空气等环境介质存在不同程度的污染^[12-13].因此,全面评估我国室内环境中PBDEs的赋存情况以及人体暴露量是进一步开展其对人体健康影响的基础.

本文在珠三角清远市电子垃圾拆解区开展了当地居民室内环境介质(包括室内积尘和室内空气颗粒物)中PBDEs的赋存量研究,并利用国家环境保护部近年编制的《中国人群暴露参数手册》的暴露参数对该地区的人群暴露量进行估算,对其暴露特征进行分析,为进一步研究其对人体的健康影响提供依据.

1 材料与方法 (Materials and methods)

1.1 样品采集

于2015年10—11月在清远市电子垃圾拆解区采集了11户居民的室内灰尘和室内空气(TSP)样本.所有居民户型均为1—3层的砖混结构,建筑面积均约为100m²左右,室内均为简单装修,装修时间为5—10年,墙壁为粉白灰粉刷、地板为瓷砖,无地毯、壁纸等,室内家用电器主要有电视和冰箱各1台、空调2—3台,风扇1—2台等.

室内环境空气样品的采集:采集对象为室内空气中的颗粒相,连续采集6d,每天采集时间约为24h,采集区域为客厅,其面积约为15—25m².为减小空气采样器的噪声对居民休息的影响,采用了噪声较小的个体采样器(SK224-PCXR8, SKC Communications, 美国).采样器位于地面1m以上,采样流量为2.0L·min⁻¹,每天换1张滤膜,6d的滤膜合并为1个样本.采用石英玻璃纤维滤膜,直径37mm,孔

径 2.2 μm (Whatman 公司, 美国).

室内灰尘的采集: 灰尘样本使用 VDI (Verein Deutscher Ingenieure, Association of German Engineers) 推荐的灰尘标准化样品采集技术^[14]. 采集灰尘使用的工具为羊毛刷, 刷子在使用之前用酒精浸泡过夜, 用超纯水冲洗、烘干. 室内灰尘主要在较少整理的衣柜和空调顶部、桌椅和靠近室内的窗台以及卧室和客厅的地面表层收集. 采集时用刷子轻轻地将表面降尘聚拢, 从同一个住宅不同地方收集的灰尘混合在一起, 计为 1 个样品, 并记录采集房型和采集面积.

1.2 试剂材料

PBDEs 标样, 包括三溴代 (BDE28)、四溴代 (BDE47)、五溴代 (99 和 100)、六溴代 (BDE153 和 154)、七溴代 (BDE183) 和十溴代 (BDE209) 共 8 种 PBDEs 同族体, 以及内标 (BDE118 和 128) 和回收率指示物 (BDE77 和 181) 购自美国 Accustandards 公司; ¹³C-BDE209 (回收率指示物) 购自美国剑桥同位素实验室 (Cambridge Isotope Laboratories).

有机溶剂 (甲醇、丙酮、二氯甲烷和正己烷) 均为色谱纯. 硅胶和氧化铝经二氯甲烷索式抽提、干燥和活化处理. 碱性硅胶和酸性硅胶的制备详见文献 [15]. 所用玻璃器皿用 RBS 实验室专用清洗剂洗涤, 使用前用溶剂荡洗.

1.3 样品处理

灰尘样本过 200 目筛子, 准确称取积尘样品 0.5 g, 用预先抽提过的滤纸包好, 200 mL 正己烷/丙酮 ($V:V = 1:1$) 索氏抽提 48 h. 抽提前用微量进样针在样品内加入定量的回收率指示物, 并在底瓶中加入适量铜片用于脱硫. 抽提液在旋转蒸发器上浓缩至 5—10 mL, 转移至鸡心瓶中, 底瓶用正己烷润洗 3 次 (每次 5 mL), 再旋转蒸发至约 1 mL, 通过复合硅胶氧化铝柱净化, 用二氯甲烷/正己烷 ($V:V = 1:1$) 混合溶液 70 mL 冲洗出 PBDEs 组分. 旋转蒸发至约 1 mL, 再转移至细胞瓶中, 在柔和的高纯氮气下用正己烷定容至 200 μL , 并于 -20 $^{\circ}\text{C}$ 避光保存. 仪器分析之前加入内标.

环境空气滤膜的样本前处理: 将 37 mm 玻璃纤维滤膜剪碎至于 10 mL 玻璃离心管中, 加入回收率指示物, 用 3 mL 丙酮-正己烷 (1:3, V/V), 旋涡振荡 5 min 并且超声萃取 15 min, 4000 $\text{r}\cdot\text{min}^{-1}$ 高速离心 5 min, 取上清液于干净玻璃离心管中, 上述操作重复 3 次, 合并提取液, 然后用 Florisil SPE 柱进行萃取净化. 上样前 SPE 柱用 8 mL 正己烷进行活化, 上样完毕后用 8 mL 正己烷进行洗脱. 氮吹洗脱液至 1—2 mL, 再用自制酸性硅胶 SPE 柱进一步净化. 酸性硅胶 SPE 柱用 6 mL 正己烷活化, 上样完毕后用 10 mL 二氯甲烷-正己烷 (1:1, V/V) 进行洗脱, 氮吹洗脱液至尽干, 加入进样内标, 并用异辛烷定容至 50 μL , 待分析.

1.4 仪器分析

PBDEs 检测分析仪器为安捷伦气相色谱-质谱联用仪 (Agilent GC-MS, 7890A-5975C), 采用负化学电离 (NCI) 和选择离子检测 (SIM) 模式. 载气为高纯氮, 反应气为甲烷, 离子源压力为 2.5×10^{-3} Pa. 色谱柱为 DB-5HT MS Column (15 m \times 0.25 mm \times 0.1 μm , J&W Scientific, Folsom, CA) 进行检测. 升温程序为: 110 $^{\circ}\text{C}$ 保持 5 min, 以 20 $^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 的速率升至 200 $^{\circ}\text{C}$, 保持 4.5 min, 最后以 7.5 $^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 升至 300 $^{\circ}\text{C}$, 保持 16 min. 柱流速 1.2 mL/min. 进样口温度为 260 $^{\circ}\text{C}$, 离子源、连接线和四极杆的温度分别为 250 $^{\circ}\text{C}$ 、280 $^{\circ}\text{C}$ 和 150 $^{\circ}\text{C}$. 无分流进样, 进样量 1 μL . 仪器分析扫描离子为: 三溴—七溴联苯醚为 (荷质比) $m/z = 79, 81$; 十溴联苯醚为 $m/z = 486.7$ 和 488.7.

1.5 质量控制与质量保证

抽提样品前向每个样品中加入回收率指示物 BDE77、181 和 ¹³C-BDE209. 每分析一批 (10 个) 样品同时分析 QA/QC 样品, 包括方法空白、空白加标、基质加标和样品平行样. 目标化合物的定性和定量以在 GC 上的保留时间偏差不超过 0.1 min.

仪器检测限定义为 3 倍信噪比 ($S/N \geq 3$), 当色谱峰 $S/N \geq 3$, 认为该化合物被检测出. 室内积尘中 PBDEs 及 PBB153 各单体的检出限为 0.07—1.3 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$, BDE77 回收率为 $97.2 \pm 8.9\%$, BDE181 回收率为 $81.3 \pm 9.2\%$, ¹³C-BDE209 回收率为 $72.3 \pm 10.5\%$. 室内空气中的检出限为 0.22—1.39 $\text{pg}\cdot\text{m}^{-3}$, 回标的回收率为 $70.3 \pm 11.2\%$ — $83.7 \pm 9.8\%$.

数据统计分析采用 SPSS 20 统计软件, 显著性标准为 $P < 0.05$, 并采用 SPSS Persons 进行相关性

分析.

1.6 模型计算

人体对尘中污染物的经口暴露的日均暴露剂量计算方式见公式(1)^[16].

$$ADD_{ing} = \frac{C_{dust} \times IR_{dust} \times CF \times EF \times ED}{BW \times AT} \quad (1)$$

人体经呼吸暴露空气中污染物的日均暴露剂量计算方式见公式(2).

$$ADD_{inh} = \frac{C_{air} \times IR_{air} \times ET \times EF \times ED}{BW \times AT} \quad (2)$$

人体经皮肤暴露尘中污染物的日均暴露剂量计算方式见公式(3).

$$ADD_{derm} = \frac{C_{dust} \times SA \times CF \times AF \times F_{exp} \times ABS \times EF \times ED}{BW \times AT} \quad (3)$$

式中, ADD_{ing} 、 ADD_{inh} 、 ADD_{derm} 单位均为 $pg \cdot kg \cdot bw^{-1} \cdot d^{-1}$; C_{dust} 为尘中污染物的浓度, $mg \cdot kg^{-1}$; C_{air} 为空气中污染物的浓度, $mg \cdot m^{-3}$; IR_{dust} 为尘日均摄入量, $mg \cdot d^{-1}$; IR_{air} 为呼吸速率, $m^3 \cdot d^{-1}$; SA 为皮肤表面积, cm^2 ; F_{exp} 为皮肤暴露比率, %; AF 为尘-皮肤粘附系数, $mg \cdot cm^{-2} \cdot d^{-1}$; ABS 为皮肤吸收系数, 无量纲; EF 为暴露尘或空气的频率, $d \cdot a^{-1}$; ET 为暴露时间, $h \cdot d^{-1}$; ED 为暴露持续时间, a ; AT 为平均暴露时间, d ; BW 为体重, kg ; CF 为单位转换系数.

各公式参数取值见表 1, 其中 IR_{dust} 、 IR_{air} 、 SA 、 EF 、 ET 、 AT 和 BW 等暴露参数采用《中国人群暴露参数手册》(成人卷)和(儿童卷:6—17岁)中关于广东省的数值, 其余参数则参考相关文献资料.

表 1 室内环境中 PBDEs 日平均暴露量计算参数取值

Table 1 Parameters of daily exposure for PBDEs in indoor environment

项目 Content	参数 Parameter	取值 Value			数据来源 Data sources
		Male	Female	Children (9—12 yr)	
食入途径 Ingestion	IR_{dust}	50	50	66	[16-17]
呼吸途径 Inhalation	IR_{air}	17.7	14.5	9.4	[16-17]
	ET	19.38	19.38	21.85	[16-17]
皮肤暴露途径 Dermal exposure	SA	17000	15000	9300	[16-17]
	F_{exp}^*	33%	33%	33.8%	[18]
	AF	0.07	0.07	0.2	[19]
	ABS	0.01	0.01	0.01	[20]
暴露行为参数 Exposure parameters	EF	365	365	365	[19]
	ED	24	24	6	[19]
	AT	$ED \times 365$	$ED \times 365$	6×365	[19]
	BW	62.9	54.4	23.8	[16-17]
	CF	1×10^3	1×10^3	1×10^3	[16-17]

*注: F_{exp} : 由于《Exposure Factors Handbook(2011 Edition)》中无室内活动的皮肤暴露比例参数, 故采用室外活动皮肤暴露比例参数, 见参考文献“Chapter 7-Deraml exposure factors”^[18]表 7-16 中的“warm months”参数(均值).

2 结果与讨论(Results and discussion)

2.1 室内环境介质中 PBDEs 的赋存量及其赋存特征

研究区域居民室内积尘和室内空气颗粒物中 PBDEs 和 PBB153 的赋存量见表 2. 室内积尘中 PBDEs 的含量为 647—7862 $ng \cdot g^{-1}$. 而 Zheng 等^[21]的研究结果表明, 2013 年该区域室内积尘中 PBDEs 的含量为 173—196000 $ng \cdot g^{-1}$. 由于当地政府自 2013 年开始对该地区电子垃圾拆解作坊进行取缔或者搬迁至集中式工业园区, 至 2015 年 10 月份基本整顿完毕, 故本研究是在此次整顿接近完成时开展的, 因此说明整顿前后当地居民室内积尘中 PBDEs 的含量有所下降. 本研究与国内其他电子垃圾拆解区室内积尘中

PBDEs 含量相比也较低,如广东贵屿电子垃圾拆解区为 721—23500 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ ^[22],浙江台州电子垃圾拆解区为 597—323919 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ ^[23],由于上述文献的样本除了居民室内积尘样本,也包含了电子垃圾拆解厂内的积尘样本,故其最大值比本研究高很多。

从表 2 也可知,室内空气颗粒物中低溴代多溴联苯醚的含量相对较低,而高溴代含量相对较高,其中 BDE209 含量为 766 $\text{pg}\cdot\text{m}^{-3}$,这与室内积尘中的成份组成比例类似.本研究区域室内空气颗粒物中 PBDEs 含量高于国内其他非电子垃圾拆解区的含量,如杭州家庭室内空气中 PBDEs 含量为 119 $\text{pg}\cdot\text{m}^{-3}$ ^[24],上海家庭室内空气中 PBDEs 含量为 207 $\text{pg}\cdot\text{m}^{-3}$ ^[25],但却低于广州市区家庭室内空气中的含量(879.8 $\text{pg}\cdot\text{m}^{-3}$)^[26].本研究区域室内环境介质(包括室内积尘和室内空气)中,多溴联苯(PBBs)检出率较高的化合物单体主要为 PBB153(检出率>90%),其他单体基本未检出或检出率很低。

表 2 室内积尘和室内空气颗粒物中 PBDEs 的含量

Table 2 Levels of PBDEs in indoor dust and in indoor air particulates

	化合物 PBDE congener	几何均值 GM	几何偏差 GSD	中位值 Median	范围 Range	算术均值 Mean
室内积尘	BDE 28	1.22	1.42	1.06	0.42—5.71	1.61
Indoor dust ($n=11$)/ ($\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$)	BDE 47	16.4	11.7	14.0	7.74—45.3	19.2
	BDE 100	6.36	3.89	6.84	2.49—16.9	7.30
	BDE 99	30.2	21.0	30.0	10.7—81.0	35.8
	BDE 154	6.40	5.31	6.08	2.66—22.2	7.76
	BDE 153	19.8	21.2	16.8	7.93—84.4	25.7
	BDE183	37.0	87.6	28.7	12.1—331.3	61.8
	BDE 209	1759	2204	1431.8	587—7651	2511
	Σ PBDEs	1894	2305	1538.0	647—7863	2670
	PBB153	3.39	2.82	3.27	1.51—11.9	4.08
室内空气	BDE 28	1.99	0.474	1.80	1.55—2.8	2.04
Indoor air ($n=11$)/ ($\text{pg}\cdot\text{m}^{-3}$)	BDE 47	6.82	5.94	6.01	3.51—26	8.06
	BDE 100	4.07	3.42	3.65	0.98—14.3	4.98
	BDE 99	13.6	10.6	15.6	5.67—45.1	16.2
	BDE 154	11.94	9.62	11.3	5.11—31.1	14.8
	BDE 153	25.0	27.5	27.3	5.13—85.8	35.8
	BDE183	49.1	20.7	59.7	25.9—95.5	53.2
	BDE 209	766.1	307	745	386—1360	823
	Σ PBDEs	893	359	870	477—1579	958
	PBB153	6.35	2.23	6.57	3.29—10.6	6.74

通过对 PBDEs 及其各单体和 PBB153 在室内积尘和室内空气颗粒物中赋存量的相关性分析可知,上述化合物在室内积尘和空气颗粒物中的赋存量之间均具有显著的相关性($r=0.629$ — 0.895 , $P<0.05$),见表 3.除 BDE183 和 209 外, PBDEs 各单体和 PBB153 挥发性较强,在室内空气和室内积尘之间具有一定的迁移规律^[27-28],因此室内空气中的 BDE 28、47、100、99、154、153 和 PBB153 的赋存量与室内积尘中的赋存量往往具有显著的相关性,其在室内积尘中的丰度取决于气态颗粒物的沉降、活动产生的重悬浮、直接富集以及渗透的相互作用^[29].Allen 等^[30]研究表明五溴联苯醚(*penta*-BDE)在室内空气(包括气相和颗粒相)与室内积尘中 PBDE 的浓度具有显著相关($r=0.62$, $P<0.01$),但十溴联苯醚(BDE209)不相关($P=0.25$).Wilford 等^[28]研究表明,室内积尘与室内空气(包括气相和颗粒相)中所有低溴代单体(除 BDE183 和 BDE209 等高溴代单体外)均具有显著相关性.在上述文献中,低溴代 PBDEs 在室内积尘与室内空气中的赋存量均有显著的相关性,而高溴代 PBDEs 之间的相关性则不显著;但在本研究中,室内积尘与室内空气颗粒物中高溴代 PBDEs(包括 BDE183 和 BDE209)也均呈现显著相关性.其原因可能是由于上述文献中室内积尘和室内空气中 PBDEs 的主要来源是室内源,即来自室内电子电器等溴代阻燃剂的挥发.而本研究区域居民室内使用含溴代阻燃剂的电子电器等较少,即室内源较少;但本研究区

域为电子垃圾拆解区,室外各种环境介质中的 PBDEs 含量均较高^[31-33],因此其主要来源可能是室外环境介质(包括室外空气颗粒物和室外扬尘等)的输送,故其室内空气颗粒物和室内积尘的低溴代和高溴代 PBDEs 的赋存量之间均具有较好的相关性。

表 3 室内积尘和室内空气颗粒物中 PBDEs 各单体的相关性分析

Table 3 Association between the PBDE congener levels in indoor dust and in indoor air particulate

PBDE congener	<i>r</i>	<i>P</i>
BDE28	0.724	0.012
BDE47	0.824	0.002
BDE100	0.895	<0.001
BDE99	0.778	0.005
BDE154	0.746	0.008
BDE153	0.823	0.002
BDE183	0.629	0.038
BDE209	0.780	0.005
PBDEs	0.823	0.002
PBB153	0.893	<0.001

2.2 不同暴露人群的日均暴露量

根据公式(1)—公式(3)并结合表 1 的暴露参数和表 2 室内环境介质中污染物的赋存量,分别得出成人(包括男性和女性)以及儿童(9—12 岁)经积尘摄入 PBDEs 和 PBB153 的暴露量(包括经口暴露量和经皮肤暴露量)和经呼吸摄入室内空气颗粒物的暴露量以及总暴露量,见表 4。男性成人 PBDEs 的总暴露量为 $2507 \pm 2099 \text{ pg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1} \text{ bw}$; 女性成人 为 $2831 \pm 2400 \text{ pg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1} \text{ bw}$; 儿童(9—12 岁)为 $8455 \pm 7382 \text{ pg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1} \text{ bw}$; 而儿童、女性成人和男性成人对室内环境介质中 PBB153 的总暴露量分别为 14.8 ± 9.48 、 5.46 ± 3.21 和 $5.03 \pm 2.86 \text{ pg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1} \text{ bw}$ 。不同人群对室内环境中 PBDEs 和 PBB153 的总日均暴露量均为儿童>女性成人>男性成人。

表 4 不同人群的 PBDEs 日均暴露剂量 ($\text{pg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1} \text{ bw}$)

Table 4 Daily exposure to PBDEs of different populations ($\text{pg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1} \text{ bw}$)

	PBDE	ADD _{ing}	ADD _{dem}	ADD _{inh}	ADD _{total}
男性成人 Male	BDE 28	1.28±1.19	0.1±0.09	0.46±0.11	1.85±1.26
	BDE 47	15.2±9.74	1.2±0.76	1.83±1.41	18.2±10.8
	BDE 100	5.8±3.24	0.46±0.25	1.13±0.81	7.39±3.71
	BDE 99	28.5±17.5	2.24±1.38	3.68±2.53	34.4±19.5
	BDE 154	6.17±4.42	0.48±0.35	3.36±2.29	10.0±5.84
	BDE 153	20.4±17.7	1.6±1.39	8.13±6.55	30.2±21.1
	BDE183	49.1±73.1	3.86±5.74	12.08±4.92	65.0±78.1
	BDE 209	1996±1838	157±144	187.1±73.2	2340±2006
	PBDEs	2123±1923	167±151	217±85.6	2507±2099
	PBB153	3.24±2.35	0.25±0.18	1.53±0.53	5.03±2.86
女性成人 Female	BDE 28	1.48±1.37	0.10±0.10	0.44±0.11	2.02±1.44
	BDE 47	17.6±11.3	1.22±0.78	1.73±1.34	20.55±12.33
	BDE 100	6.71±3.75	0.46±0.26	1.07±0.77	8.24±4.2
	BDE 99	32.91±20.3	2.28±1.4	3.49±2.39	38.7±22.2
	BDE 154	7.13±5.11	0.49±0.35	3.19±2.17	10.81±6.42
	BDE 153	23.62±20.5	1.64±1.42	7.7±6.20	33.8±23.6
	BDE183	56.8±84.5	3.94±5.86	11.45±4.66	72.2±89.6
	BDE 209	2308.15±2125	160.0±147.3	177±69.3	2645±2294
	PBDEs	2454±2222	170.1±154.0	206.29±81.1	2831±2400
	PBB153	3.75±2.72	0.26±0.19	1.45±0.50	5.46±3.21

续表4

	PBDE	ADD _{ing}	ADD _{derm}	ADD _{inh}	ADD _{total}
	BDE 28	4.47±4.14	0.43±0.39	0.74±0.18	5.63±4.50
	BDE 47	53.1±33.4	5.06±3.24	2.9±2.24	61.05±37.6
	BDE 100	20.2±11.3	1.93±1.08	1.79±1.29	24.0±12.7
儿童	BDE	99.3±61.2	9.46±5.82	5.83±4.00	114.6±67.7
(9—12岁)	BDE 154	21.5±15.4	2.05±1.47	5.32±3.63	28.9±18.2
Children	BDE 153	71.3±61.8	6.79±5.88	12.86±10.37	90.9±69.9
(9—12 years old)	BDE183	171±255	16.3±24.3	19.12±7.79	207±278
	BDE 209	6964±6411	663.4±611	296±116	7923±70589
	PBDEs	7405±6704	705±639	345±135	8455±7382
	PBB153	11.3±8.21	1.08±0.78	2.42±0.84	14.8±9.48

表4中的暴露参数(包括体重、肺活量等人体参数以及积尘摄入量和时间-活动参数等)采用《中国人群暴露参数手册》(成人卷和儿童卷(6—17岁))中广东省的参数.由于之前不同的中国学者在进行上述暴露量评估时所采用的暴露参数有所不同,如有采用美国EPA参数,也有采用问卷调查参数,故其所估算的暴露量存在一定的差异.目前我国已有《中国人群暴露参数手册》(环境保护部编著),为我国这方面的研究提供可靠的参数,也将使得不同研究结果具有更好的可比性.

研究表明,在我国室内积尘摄入与膳食摄入都是人体PBDEs暴露的主要来源,其次为经皮肤暴露,经呼吸暴露量则相对较小.如Ni等^[34]估算了广州成人通过膳食和室内积尘摄入的PBDEs量分别为270—950、200—1240 $\text{pg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}\text{bw}$;儿童通过膳食和室内积尘摄入的量分别为270—460、12490—14470 $\text{pg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}\text{bw}$.Xu等^[35]估算了上海成人对家庭室内积尘PBDEs的暴露量为283 $\text{pg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}\text{bw}$,而家庭室内空气颗粒物(TSP)的暴露量为20 $\text{pg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}\text{bw}$,其中通过PM_{2.5}的暴露量为8.1 $\text{pg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}\text{bw}$.Zhu等^[36]估算了我国各省的室内积尘PBDEs暴露量,其中成人经口暴露量为530 $\text{pg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}\text{bw}$,经皮肤暴露量为180 $\text{pg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}\text{bw}$,前者是后者的2.9倍.而对于成人,在美国经口暴露量为2400—23600 $\text{pg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}\text{bw}$ ^[37],在加拿大为150—3600 $\text{pg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}\text{bw}$ ^[28],在越南为100—8660 $\text{pg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}\text{bw}$ ^[38];在德国,经膳食和经皮肤暴露量为287.3 $\text{pg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}\text{bw}$ ^[39],经呼吸暴露量为4.58 $\text{pg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}\text{bw}$ ^[40].因此,本研究区域成人摄入室内积尘中PBDEs的暴露量普遍比国内非电子垃圾拆解区高.本研究区人群的暴露量也比德国等欧洲国家高,但比美国要低一些.与国内外不同研究地区相比,本研究区域(电子垃圾拆解区)人群通过室内积尘和空气摄入PBDEs的暴露量处于较高的水平.

2.3 不同暴露途径以及不同暴露人群的暴露量比较分析

不同暴露途径的日均暴露量比较情况,即通过不同暴露途径(包括积尘经口摄入、积尘经皮肤接触、经呼吸吸入)摄入PBDEs和PBB153的日均暴露量占总日均暴露量的比例见图1.从图1可知,所有暴露人群(包括男性成人、女性成人和儿童)经口摄入积尘PBDEs及其各单体和PBB153的日均暴露量(ADD_{ing})占总日均暴露量的比例均最高,分别为60.9%—82.2%,65.1%—84.5%和73.3%—86.2%.对于男性成人和女性成人而言,3种暴露途径的暴露量占总暴露量的比例均为ADD_{ing}>ADD_{inh}>ADD_{derm}.对于儿童(9—12岁)而言,BDE47、99、209以及总PBDEs为ADD_{derm}>ADD_{inh},而其余化合物单体(BDE28、100、154、153、183以及PBB153)则为ADD_{inh}>ADD_{derm}.

不同暴露人群的日均暴露量比较情况,即不同人群通过不同暴露途径摄入室内环境介质中PBDEs和PBB153的日均暴露量占总暴露量的比例见图2.对于经口摄入积尘PBDEs及其各单体和PBB153的暴露量(ADD_{ing})而言,均为儿童(9—12岁)>女性成人>男性成人.对于经皮肤摄入积尘中PBDEs和PBB153的暴露量(ADD_{derm})而言,均为儿童(9—12岁)>男性成人>女性成人.对于儿童而言,经皮肤摄入上述化合物的比例是最高的,这与儿童因玩耍而接触较多的积尘有关^[41-42].对于经呼吸摄入室内空气颗粒物中PBDEs和PBB153的暴露量(ADD_{inh})而言,均为男性成人>女性成人>儿童(9—12岁),说明经呼吸摄入的量对男性的影响最大,而对儿童影响最小,这与不同人群的呼吸量是紧密相关的.

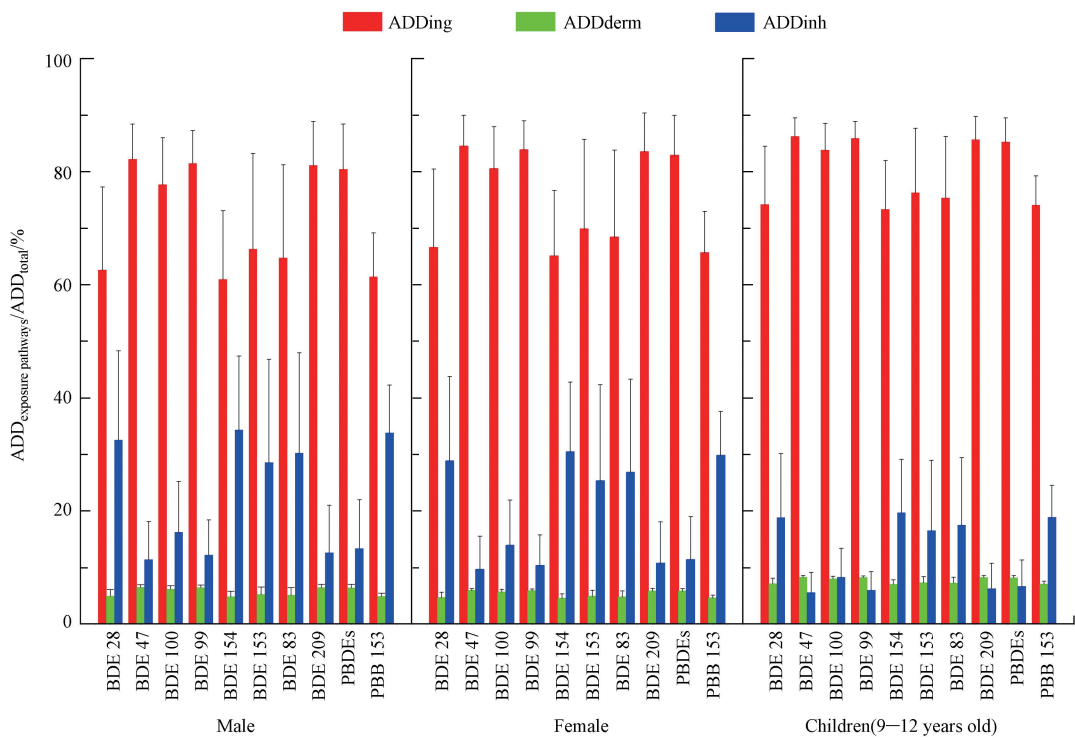


图 1 不同暴露途径的日均暴露量占总日均暴露量的比值

Fig.1 Ratio of $ADD_{\text{exposure pathways}}/ADD_{\text{total}}$

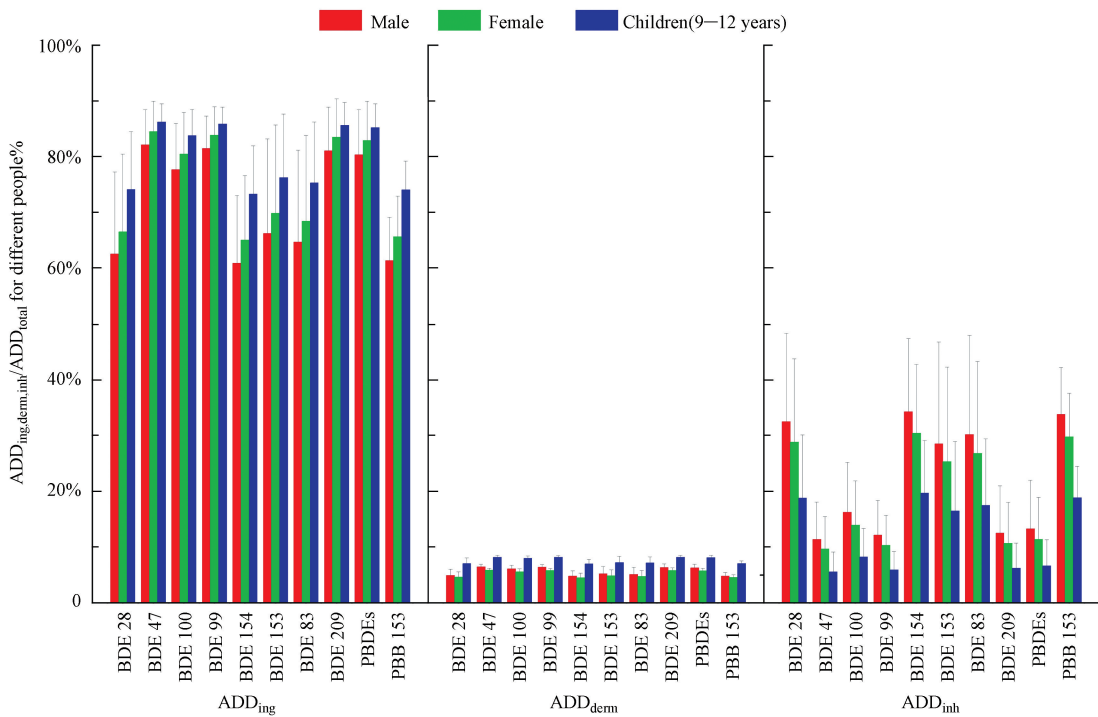


图 2 不同人群 PBDEs 的日均暴露量占总日均暴露量的比值

Fig.2 Ratio of $ADD_{\text{ing,derm,inh}}/ADD_{\text{total}}$ for different people

2.4 研究区域室内环境介质中 PBDEs 的暴露特征

在本研究区域(珠三角典型电子垃圾拆解区之一),居民室内环境介质中的 BDE 28、47、100、99、154、153、183 和 209 在室内积尘/室内空气颗粒物中的含量占其各自总含量的比例分别为 0.05%/0.24%、0.73%/0.69%、0.25%/0.47%、1.22%/1.40%、0.28%/1.30%、0.94%/3.09%、1.87%/5.16%、

94.29%/86.08%,其中 BDE209 是室内积尘和室内空气颗粒物中最主要的单体,其次为 BDE183 和 99. Zheng 等^[21]对广东贵屿、大沥电子垃圾拆解区室内积尘中 PBDEs 赋存量的研究结果也表明 BDE 209 与 BDE183 和 99 是电子垃圾拆解区室内环境中的三种主要单体。

本研究区域居民室内环境介质(包括室内积尘和室内空气颗粒物)的赋存量具有较高的水平,但比该区域电子垃圾拆解作坊整顿前有所下降。根据对室内积尘和室内空气颗粒物中低溴代和高溴代 PBDEs 赋存量的相关性分析可知,本研究区域室内环境介质中 PBDE 的主要来源可能是室外输送,与非电子垃圾拆解区主要来源可能是室内源是不同的。在本研究区域,经口摄入积尘 PBDEs 是最主要的暴露途径,其次是经呼吸暴露,经皮肤摄入的量相对最小。对于儿童而言,经皮肤摄入 PBDEs 的量相对成人要高很多。此外,虽然在我国电子垃圾拆解区经膳食摄入 PBDEs 的量占总暴露量的比例较高^[32-43],但相关研究发现膳食中的 PBDEs 含量与人体中的 PBDEs 负荷并不呈显著相关性^[39-44],而室内积尘中 PBDEs 赋存量与人体内的负荷却具有显著相关性^[44],因此,通过室内积尘摄入 PBDEs 是最重要的暴露途径之一。由于 PBDEs 是持久性有机污染物,同时也是内分泌干扰物,因此其对高暴露人群健康尤其是生殖健康的影响亟待关注。

3 结论 (Conclusion)

(1)本研究区域(电子垃圾拆解区)居民室内积尘中 PBDEs 的含量为 647—7863 ng·g⁻¹,室内空气颗粒物中含量为 477—1579 pg·m⁻³,室内积尘和室内空气颗粒物中 PBDEs 及其单体以及 PBB153 的含量之间均具有显著的相关性($r=0.629-0.895$, $P<0.05$)。本研究区域室内环境介质中 PBDEs 的主要来源可能是室外输送。(2)根据《中国人群暴露参数手册(成人卷和儿童卷:6—17岁)》中广东省的人群参数可得男性成人 PBDEs 的总暴露量为 2507±2099 pg·kg⁻¹·d⁻¹ bw,女性成人 2831±2400 pg·kg⁻¹·d⁻¹ bw,儿童(9—12岁)为 8455±7382 pg·kg⁻¹·d⁻¹ bw;儿童、女性成人和男性成人对室内环境介质中 PBB153 的总暴露量分别为 14.8±9.48、5.46±3.21、5.03±2.86 pg·kg⁻¹·d⁻¹ bw。(3)所有暴露人群(包括男性成人、女性成人和儿童)经口摄入积尘 PBDEs 及其单体和 PBB153 的日均暴露量占总日均暴露量的比例最高,分别为 60.9%—82.2%,65.1%—84.5%和 73.3%—86.2%。对于不同暴露人群而言,儿童经皮肤摄入上述化合物的比例最高,这与儿童因玩耍而接触较多的积尘有关。男性成人经呼吸摄入上述化合物的比例最高,与其具有较大的呼吸量密切相关。在该电子垃圾拆解区,人群通过室内积尘摄入 PBDEs 是最重要的暴露途径之一。

参考文献 (References)

- [1] HITES R A. Polybrominated Diphenyl Ethers in the environment and in people: A Meta-Analysis of Concentrations [J]. Environmental Science & Technology, 2004, 38(4): 945-956.
- [2] BIRNBAUM L S STASKAL D F. Brominated flame retardants: Cause for concern? [J]. Environmental Health Perspectives, 2004, 112(1): 9-17.
- [3] WONG F, SUZUKI G, MICHINAKA C, et al. Dioxin-like activities, halogenated flame retardants, organophosphate esters and chlorinated paraffins in dust from Australia, the United Kingdom, Canada, Sweden and China [J]. Chemosphere, 2017, 168: 1248-1256.
- [4] 万斌, 郭良宏. 多溴联苯醚的环境毒理学研究进展[J]. 环境化学, 2011, 30(1): 143-152.
WAN B and GUO L H. Research progress on the investigation of environmental toxicology of polybrominated diphenyl ethers [J]. Environmental Chemistry, 2011, 30(1): 143-152 (in Chinese).
- [5] HAMMEL S C, HOFFMAN K, LORENZO A M, et al. Associations between flame retardant applications in furniture foam, house dust levels, and residents' serum levels [J]. Environment International, 2017, 107: 181-189.
- [6] JONES-OTAZO H A, CLARKE J P, DIAMOND M L, et al. Is house dust the missing exposure pathway for PBDEs? An analysis of the urban fate and human exposure to PBDEs [J]. Environmental Science & Technology, 2005, 39(14): 5121-5130.
- [7] PENG C, TAN H, GUO Y, et al. Emerging and legacy flame retardants in indoor dust from East China [J]. Chemosphere, 2017, 186: 635-643.
- [8] BETTS K S. Unwelcome Guest: PBDEs in Indoor Dust [J]. Environmental Health Perspectives, 2008, 116(5): 202-208.
- [9] KADEMOGLOU K, XU F, PADILLA-SANCHEZ J A, et al. Legacy and alternative flame retardants in Norwegian and UK indoor environment: Implications of human exposure via dust ingestion [J]. Environment International, 2017, 102: 48-56.

- [10] LORBER M. Exposure of Americans to polybrominated diphenyl ethers [J]. *Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology*, 2008, 18(1): 2-19.
- [11] LIU K, LI J, YAN S, et al. A review of status of tetrabromobisphenol A (TBBPA) in China [J]. *Chemosphere*, 2016, 148: 8-20.
- [12] 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.
- [13] 张利飞, 黄业茹, 董亮. 多溴联苯醚在中国的污染现状研究进展[J]. *环境化学*, 2010, 29(5): 787-795.
ZHANG LF, HUANG Y R, DONG L. Pollution of polybrominated diphenyl ethers in China [J]. *Environmental Chemistry*, 2010, 29(5): 787-795 (in Chinese).
- [14] WANG J, MA Y J, CHEN S J, et al. Brominated flame retardants in house dust from e-waste recycling and urban areas in South China: Implications on human exposure [J]. *Environment International*, 2010, 36(6): 535-541.
- [15] 向彩红, 罗孝俊, 余梅, 等. 珠江河口水生生物中多溴联苯醚的分布 [J]. *环境科学*, 2006, 27(9): 1732-1737.
XIANG C H, LUO X J, YU M, et al. Distribution of polybrominated diphenyl ethers in aquatic species from the Pearl River estuary [J]. *Environmental Science*, 2006, 27(9): 1732-1737 (in Chinese).
- [16] 环境保护部, 中国人群暴露参数手册(成人卷)[M]. 北京: 中国环境出版社, 2013.
Ministry of Environmental Protection. Exposure factors handbook of Chinese population, adults [M]. Beijing: China Environmental Press, 2013 (in Chinese).
- [17] 环境保护部, 中国人群暴露参数手册(儿童卷:6-17岁)[M]. 北京: 中国环境出版社, 2016.
Ministry of Environmental Protection. Exposure factors handbook of Chinese population, children (6-17years) [M]. Beijing: China Environmental Press, 2016 (in Chinese).
- [18] U.S. EPA. Exposure Factors Handbook 2011 Edition (Final Report) [M]. Washington DC: U.S. Environmental Protection Agency, EPA/600/R-09/052F, 2011.
- [19] 赵秀阁, 黄楠, 段小丽, 等. 环境健康风险评价中的皮肤暴露参数 [J]. *环境与健康杂志*, 2012, 29(2): 124-126.
ZHAO X G, HUANG N, DUAN X L, et al. Dermal exposure factors in environmental health risk assessment [J]. *Journal of Environment and Health*, 2012, 29(2): 124-126 (in Chinese).
- [20] 娄素芳, 王欣欣, 姜子岸, 等. 贵屿表层土壤中多溴联苯醚的水平与儿童健康风险 [J]. *上海大学学报(自然科学版)*, 2016, 22(2): 141-150.
LOU S F, WANG X X, JIANG Z A, et al. Levels of polybrominated diphenyl ethers in surface soil of Guiyu and the associated health risk to children [J]. *Journal of Shanghai University (Natural Science)*, 2016, 22(2): 141-150 (in Chinese).
- [21] ZHENG X, XU F, CHEN K, 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.
- [22] ZHENG J, LUO X J, YUAN J G, et al. Levels and sources of brominated flame retardants in human hair from urban, e-waste, and rural areas in South China [J]. *Environmental Pollution*, 2011, 159(12): 3706-3713.
- [23] JIANG H, LIN Z K, WU Y Y, et al. Daily intake of polybrominated diphenyl ethers via dust and diet from an e-waste recycling area in China [J]. *Journal Of Hazardous Materials*, 2014, 276: 35-42.
- [24] SUN J Q, WANG Q W, ZHUANG S L, et al. Occurrence of polybrominated diphenyl ethers in indoor air and dust in Hangzhou, China: Level, role of electric appliances, and human exposure [J]. *Environmental Pollution*, 2016, 218: 942-949.
- [25] 刘洋, 冀秀玲, 马静, 等. 上海市典型家庭室内空气中 PCBs 与 PBDEs 初步研究 [J]. *环境科学研究*, 2011, 24(5): 482-488.
LIU Y, JI X L, MA J, et al. Preliminary study of PCBs and PBDEs in indoor air samples collected from typical houses in Shanghai [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2011, 24(5): 482-488 (in Chinese).
- [26] CHEN L G, MAI B X, XU Z C, et al. In- and outdoor sources of polybrominated diphenyl ethers and their human inhalation exposure in Guangzhou, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, 42(1): 78-86.
- [27] WEI W, MANDIN C, BLANCHARD O, et al. Distributions of the particle/gas and dust/gas partition coefficients for seventy-two semi-volatile organic compounds in indoor environment [J]. *Chemosphere*, 2016, 153: 212-219.
- [28] WILFORD B H, SHOEIB M, HARNER T, et al. Polybrominated Diphenyl Ethers in Indoor Dust in Ottawa, Canada: Implications for Sources and Exposure [J]. *Environmental Science & Technology*, 2005, 39(18): 7027-7035.
- [29] FROMME H, KOERNER W, SHAHIN N, et al. Human exposure to polybrominated diphenyl ethers (PBDE), as evidenced by data from a duplicate diet study, indoor air, house dust, and biomonitoring in Germany [J]. *Environment International*, 2009, 35(8): 1125-1135.
- [30] ALLEN J G, MCCLEAN M D, STAPLETON H M, et al. Critical factors in assessing exposure to PBDEs via house dust [J]. *Environment International*, 2008, 34(8): 1085-1091.
- [31] LABUNSK I, HARRAD S, SANTILLO D, et al. Levels and distribution of polybrominated diphenyl ethers in soil, sediment and dust samples collected from various electronic waste recycling sites within Guiyu town, southern China [J]. *Environmental Science-Processes & Impacts*, 2013, 15(2): 503-511.
- [32] LABUNSKA I, HARRAD S, WANG M, et al. Human dietary exposure to PBDEs around E-waste recycling sites in Eastern China [J].

- Environmental Science & Technology, 2014, 48(10): 5555-5564.
- [33] LEUNG A O W, ZHENG J, YU C K, et al. Polybrominated Diphenyl Ethers and Polychlorinated Dibenzo-p-dioxins and Dibenzofurans in Surface Dust at an E-Waste Processing Site in Southeast China [J]. Environmental Science & Technology, 2011, 45(13): 5775-5782.
- [34] NI K, LU Y, WANG T, et al. A review of human exposure to polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in China [J]. International Journal of Hygiene and Environmental Health, 2013, 216(6): 607-623.
- [35] XU F, TANG W B, ZHANG W, et al. Levels, distributions and correlations of polybrominated diphenyl ethers in air and dust of household and workplace in Shanghai, China; implication for daily human exposure [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2016, 23(4): 3229-3238.
- [36] ZHU N Z, LIU L Y, MA W L, et al. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in the indoor dust in China: levels, spatial distribution and human exposure [J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2015, 111: 1-8.
- [37] STAPLETON H M, DODDER N G, OFFENBERG J H, et al. Polybrominated Diphenyl Ethers in House Dust and Clothes Dryer Lint [J]. Environmental Science & Technology, 2005, 39(4): 925-931.
- [38] ANH H Q, NAM V D, TRI T M, et al. Polybrominated diphenyl ethers in plastic products, indoor dust, sediment and fish from informal e-waste recycling sites in Vietnam: a comprehensive assessment of contamination, accumulation pattern, emissions, and human exposure [J]. Environ Geochem Health, 2017, 39(4): 935-954.
- [39] FROMME H, KORNER W, SHAHIN N, et al. Human exposure to polybrominated diphenyl ethers (PBDE), as evidenced by data from a duplicate diet study, indoor air, house dust, and biomonitoring in Germany [J]. Environment International, 2009, 35(8): 1125-1135.
- [40] KEFENI K K, OKONKWO J O, BOTHA B M. Concentrations of polybromobiphenyls and polybromodiphenyl ethers in home dust: Relevance to socio-economic status and human exposure rate [J]. Science of the Total Environment, 2014, 470: 1250-1256.
- [41] SUGENG E J, DE COCK M, SCHOONMADE L J, et al. Toddler exposure to flame retardant chemicals: Magnitude, health concern and potential risk- or protective factors of exposure: Observational studies summarized in a systematic review [J]. Chemosphere, 2017, 184: 820-831.
- [42] MALLIARI E, KALANTZI O-I. Children's exposure to brominated flame retardants in indoor environments-A review [J]. Environment International, 2017, 108: 146-169.
- [43] SONG Q B, LI J H. A systematic review of the human body burden of e-waste exposure in China [J]. Environment International, 2014, 68: 82-93.
- [44] BRAMWELL L, GLINIANAIA S V, RANKIN J, et al. Associations between human exposure to polybrominated diphenyl ether flame retardants via diet and indoor dust, and internal dose: A systematic review [J]. Environment International, 2016, 92-93: 680-694.