

DOI: 10.7524/j.issn.0254-6108.2019012501

李玉芳, 宋淑玲. 中国主要沿海地区鱼/贝类中 PBDEs 暴露水平现状、特征和发展趋势[J]. 环境化学, 2020, 39(1): 138-147.

LI Yufang, SONG Shuling. Current status, characteristics and development trend of PBDEs levels in fish/shellfish from major coastal areas of China [J]. Environmental Chemistry, 2020, 39(1): 138-147.

中国主要沿海地区鱼/贝类中 PBDEs 暴露水平现状、特征和发展趋势*

李玉芳 宋淑玲**

(国家地质实验测试中心, 北京, 100037)

摘要 多溴联苯醚(polybrominated diphenyl ethers, PBDEs)是一种溴代阻燃剂, 稳定性强, 并具有生物蓄积性和长距离迁移特性. 海洋环境是疏水性 PBDEs 的全球汇集点, 自本世纪初研究者在海洋生物中陆续发现了 PBDEs. 本文分析了近 16 年来我国环渤海、东部沿海及南海北部三个沿海地区鱼/贝类中 PBDEs 的暴露水平现状及分布特征. 现有的研究表明: 环渤海、东部沿海以及南海北部地区鱼类中 PBDEs 总体暴露含量差异显著, 分别为 $0.56\text{--}215.81\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{ lw}$ (脂重)、 $\text{ND}\text{--}77.0\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{ lw}$ 和 $\text{ND}\text{--}167\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{ lw}$; 贝类样品 PBDEs 含量最高为渤海莱州湾地区 $230\text{--}720\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{ lw}$, 其次是浙江台州地区 $58.33\text{--}78.98\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{ dw}$ (干重); 渤海沿岸鱼类中 PBDEs 浓度呈现上升的趋势, 南海北部鱼类中的 PBDEs 浓度呈下降趋势, 东部沿海地区鱼类体内 PBDEs 浓度没有明显变化; 3 个沿海区鱼类中 PBDEs 的同系物暴露特征总体表现为低溴代的 PBDE-47 检出率最高、对总量贡献率最大. 高溴代的 PBDE-209 近年来在某些鱼/贝类中的检出率和检出浓度有上升趋势.

关键词 沿海地区, 多溴联苯醚, 暴露水平, 分布特征, 发展趋势.

Current status, characteristics and development trend of PBDEs levels in fish/shellfish from major coastal areas of China

LI Yufang SONG Shuling**

(National Research Center for Geoanalysis, Beijing, 100037, China)

Abstract: Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) are brominated flame retardants which are persistent, stable, bio-accumulative and long-distance transferable. PBDEs are hydrophobic compounds. Therefore, marine environment is the convergence point of global PBDEs. PBDEs have been consecutively detected in various marine organisms since the beginning of this century. This study was aimed at analyzing the current status and distribution characteristics of PBDEs in fish/shellfish from three coastal areas of China including Bohai Sea, eastern coast and Northern South China Sea in that past 16 years. The results from the present research work showed that significant difference of PBDEs concentration in fishes was observed. The PBDEs concentrations ranged from 0.56 to $215.81\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{ lw}$ (fat weight) in the fishes from Bohai Sea, from ND to $77.0\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{ lw}$ from the eastern coast, and from ND to $167\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{ lw}$ from the northern South China Sea, respectively. The highest concentration of PBDEs reported was $230\text{--}720\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{ lw}$ in shellfish samples of Bohai Laizhou Bay, followed by $58.33\text{--}78.98\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{ dw}$ (dry weight) in Taizhou, Zhejiang Province. The

2019 年 1 月 25 日收稿 (Received: January 25, 2019).

* 国家自然科学基金 (41473008) 资助.

Supported by the National Natural Science Foundation of China (41473008).

** 通讯联系人, Tel: 010-68999599, E-mail: songshuling163@163.com

Corresponding author, Tel: 86(10)-68999599, E-mail: songshuling163@163.com

concentration of PBDEs in fish from Bohai coast area showed an upward trend, while that from Northern South China Sea showed a downward trend. The concentration of PBDEs in fish from eastern coastal area did not change significantly. The results of research on PBDEs congeners in fish from the three coastal areas suggested that PBDE-47 was the dominant congener with the highest detection rate and highest concentration. Of course, the contribution of PBDE-47 to the total amount of PBDEs in fish was the highest. Meanwhile, recent studies demonstrated that the concentration of PBDE-209, a high brominated congener, has been increasing in some fish/shellfish during the past few years.

Keywords: coastal area, PBDEs, exposure level, distribution characteristics, development trend.

几十年来,溴化阻燃剂(brominated flame retardants, BFRs)被大量生产,并用于多种建筑材料、塑料商品、家电产品、服装和一些特殊性纸张中,以降低这些材料的可燃性,提高安全使用的性能^[1].PBDEs 是众多 BFRs 类产品中的一种,为溴化芳香族化合物,化学通式 $C_{12}H_{(0-9)}Br_{(1-10)}O$,总计有 209 种单体化合物.这 209 种单体化合物称为 PBDE 同系物,在光照的条件下,高溴代 PBDEs 可以转化为低溴代的 PBDEs^[2].PBDEs 作为添加型阻燃剂,其优点是阻燃效果好,价格低廉,但缺点是作为半挥发性有机化合物,PBDEs 在使用过程中极易从产品当中缓慢挥发、并释放到环境中,而其特有的稳定性、可蓄积性和可长距离迁移的特性,使得 PBDEs 成为一种典型的持久性有机污染物(persistent organic pollutants, POPs)^[1].

常见 PBDEs 商用阻燃剂主要包括,五溴联苯醚,八溴联苯醚和十溴联苯醚.目前研究结果表明,五溴联苯醚具有生殖毒性、神经发育毒性和干扰甲状腺激素的毒性,其毒性作用与多氯联苯(polychlorinated biphenyls, PCBs)相似^[3].研究者还发现不同的 PBDEs 在不同剂量水平会产生不同的生理毒性.例如 PBDEs 对老鼠和兔子的毒性研究结果表明,五溴联苯醚对神经系统具有严重的损害作用,暴露浓度在 $0.6-0.8\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 时可对母体表现出神经毒性,暴露浓度在 $6-10\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 可对后代的甲状腺激素产生影响;八溴联苯醚暴露浓度 $\geq 2\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 会引起胎儿畸形发育;而十溴联苯醚产品的毒性相对较低,暴露浓度达到 $80\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 会引起成熟动物的甲状腺、肝和肾形态的改变^[4].基于众多关于 PBDEs 生物毒性的研究结果,2004 年欧盟禁止使用五溴联苯醚和八溴联苯醚,2008 年颁布了十溴联苯醚的禁令^[5].2006 年,加拿大制定了法规规定禁止生产所有的 PBDEs^[5].美国缅因州议会规定自 2006 年 1 月 1 日起禁止使用五溴联苯醚和八溴联苯醚,2008 年 1 月 1 日起禁止使用十溴联苯醚^[6].2009 年 5 月在瑞士日内瓦签订的斯德哥尔摩公约中,禁止全球范围内五溴联苯醚和八溴联苯醚的使用,中国等一些亚洲地区仍然在使用十溴联苯醚^[5].

作为一种 POPs,海洋是 PBDEs 蓄积和传输的主要环境介质,而海洋生物是 PBDEs 富集的主要生物介质.研究者陆续在我国渤海和东南沿海发现 PBDEs.渤海山东半岛的莱州湾经济带是我国最大的溴代阻燃剂生产基地,是 PBDEs 潜在释放源.而渤海又是我国北方最大的半封闭式内海,海水循环交换能力弱,这些都增加了渤海海域中 PBDEs 的污染风险^[7].与渤海地区不同,东南沿海是我国主要的经济发展区,浙江台州以及珠江三角洲附近有较大的电子垃圾回收站点,且一些发达国家产生的电子垃圾排放到我国东南沿海城市.所以,东南沿海既是 PBDEs 的汇,也是 PBDEs 的排放源,该地区 PBDEs 的污染压力大,有区域差异性.

由于 PBDEs 具有疏水亲脂性以及生物累积性,极易在生物体当中富集,导致了生物体中的污染物浓度比水体环境中高出几个数量级^[8].鱼类处在较高的营养级,体内的污染物蓄积水平较高,可作为良好的环境污染生物指示物.一些研究结果也表明,鱼类已成为人类 PBDEs 暴露的主要膳食来源^[9].随着我国经济发展和对外开放程度的不断加大,我国沿海地区海产品养殖规模不断增大、国内居民海产品的食用量逐渐上升^[5]、海产品国外市场也在继续扩大.因此,开展沿海地区鱼/贝类中 PBDEs 暴露量的研究,一方面可以调查和监测海洋及其生物体中 PBDEs 的暴露水平和变化趋势,也可间接评价 PBDEs 对鱼/贝类的生物毒性、污染特征和估算居民的暴露水平等.

本文调研了我国近 16 年来关于环渤海地区、东部沿海地区和南海北部地区鱼/贝类中 PBDEs 的蓄

积水平,总结了我国不同沿海地区鱼/贝类当中的 PBDEs 的暴露水平和研究现状,对比和分析了蓄积水平、影响因素及 PBDEs 的暴露特征,推测了未来不同沿海地区鱼/贝类中 PBDEs 浓度变化趋势.最后针对当前沿海地区鱼/贝类中 PBDEs 研究中存在的问题,进一步预见了该领域的研究发展趋势.

1 不同沿海地区鱼/贝类 PBDEs 暴露水平 (Fish/shellfish exposure levels to PBDEs in different coastal areas)

1.1 环渤海地区鱼/贝类 PBDEs 暴露水平

渤海位于我国东北部,拥有 3 个海湾,分别是南部的莱州湾、北部的辽东湾以及西部的渤海湾^[10],是我国 PBDEs 的主要生产区,也是鱼/贝类中 PBDEs 暴露水平的主要研究区域.

该地区研究的鱼类主要为马鲛、银鲳鱼、鲈鱼、狼鱼等鲈形目鱼类,以及鲷鱼(山肖目)和舌鲷(鲽形目),均为肉食性动物.早在 2008 年有研究报道称,渤海湾鲈鱼、狼鱼等 6 种鱼类中 Σ_9 PBDEs (PBDE-28,47,66,71,99,100,119,153,154) 的浓度为 0.56—6.31 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{lw}$,其中以 PBDE-47 和 PBDE-99 为主要同系物^[11].同年夏重欢^[10]分别测定了天津、大连和青岛银鲳鱼中 PBDEs 的浓度,结果表明 3 个地区相同鱼体内 PBDEs 暴露水平差异不大.2010 年 MA 等^[12]对辽东湾鲷鱼、舌鲷、马鲛鱼等 9 种鱼类进行测定,结果显示该地区鱼体中 Σ_8 PBDEs 浓度为 4.89—20.3 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{lw}$,均值 12.8 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{lw}$,同样的以 PBDE-47 和 PBDE-99 为主要同系物.其中鲷鱼和舌鲷体内 PBDEs 浓度分别为 $1582.3\pm 793.2\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{dw}$ 和 $984.6\pm 376.6\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{dw}$,该值远远高于 2010 年倪新娟等^[13]在渤海湾北塘口、大沽口、岐口及高沙岭中测定的鲷鱼和舌鲷体内 PBDEs 浓度(1.917 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{dw}$ 、1.858 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{dw}$),说明当时辽东湾 PBDEs 污染程度大于渤海湾.除此之外,2010 年倪欣娟等^[13]还在渤海湾测得狼鱼中 6 种同系物 PBDE-47,99,100,153,154,209 总浓度为 2.550 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{dw}$.在相同同系物组成情况下,2013 年有学者测得渤海湾狼鱼体内的浓度为 9.57 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{dw}$ ^[14],对比发现该地区鱼类体内的 PBDEs 浓度有小幅上升.王莎莎等^[2]2015 报道了渤海湾天津塘沽地区鲈鱼、鲈鱼、马鲛鱼等 11 种鱼体中 PBDEs 浓度的为 10.28—215.81 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{lw}$,同系物 PBDE-28,47,66,85,99,100,153,154,183 在所有鱼类中均有检出,以 PBDE-47 和 PBDE-99 为主要同系物.该检测结果远高于 2008 年^[11]渤海湾鱼类中 PBDEs 检测结果,由此可进一步推测渤海湾近几年 PBDEs 污染状况有加重的趋势.

2006 年有学者测得莱州湾贝类体内 PBDEs 浓度为 230—720 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{lw}$.相比之下,该研究中的多溴二苯醚总浓度高于其他地区,原因可能是采样位置靠近商业十溴二苯醚混合物工业生产区^[15].马新东^[16]2006 年测定了渤海 12 个沿岸城市采集的贝类生物体体内 PBDEs 的浓度,结果为 0.31—2.73 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{dw}$,平均值为 0.96 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{dw}$,其中烟台、莱州、洋口 3 个地区浓度相对较高;姚文君等^[5]于 2011—2013 年在环渤海沿岸 10 个城市中分别测定了菲律宾蛤仔、紫贻贝、麻蛤、牡蛎、四角蛤蜊中 Σ_9 PBDEs 的浓度,结果在 0.053—9.90 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{dw}$ 之间,平均值为 1.38 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{dw}$,其中蓬莱、潍坊、莱州、锦州 4 个城市中贝类的 PBDEs 浓度较高.但两个时间点的数据表明,环渤海地区贝类体内 PBDEs 浓度变化不大.

表 1 是近 13 年来,关于渤海地区及 3 个海湾中鱼/贝类中 PBDEs 的研究数据.这些研究结果表明,总体上渤海地区鱼类的 PBDEs 暴露水平呈现上升趋势,贝类的 PBDEs 暴露水平无显著变化.其中鱼类样品中 PBDEs 暴露水平最高可达到 215.81 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{lw}$,贝类生物体中 PBDEs 浓度最高可达到 720 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{lw}$.另一方面不难发现,环渤海的 3 个不同海湾辽东湾、莱州湾和渤海湾鱼、贝类中 PBDEs 暴露水平有显著差异.例如渤海湾鱼类体内 PBDEs 浓度较高,而莱州湾地区贝类污染比较严重.

1.2 东部沿海地区鱼/贝类 PBDEs 暴露水平

东海位于我国大陆东部,包括长江三角洲及周边发达城市,如上海、温州、厦门、福州等.因此,研究者们主要开展食用海鱼和贝类中 PBDEs 残留浓度或蓄积水平的研究,用以评价当地居民食用鱼/贝类造成的 PBDEs 暴露水平或暴露风险.

表 1 中国环渤海地区中鱼/贝类样品中 PBDEs 浓度 (ng·g⁻¹ lw)

Table 1 Concentration of PBDEs in fish/shellfish samples from Bohai Sea, China (ng·g⁻¹ lw)

地点 Site	生物种类 Species	ΣPBDEs	采样年份 Year	参考文献 References
渤海湾	鲶鱼、鲈鱼、狼鱼等	0.56—6.31	2008	[11]
	鲶鱼	23.6±8.7 ^c	2008	[11]
	鲈鱼	37.8±1.7 ^c	2008	[11]
天津	银鲱鱼	2.21±0.31	2008	[10]
大连	银鲱鱼	1.53±0.28	2008	[10]
青岛	银鲱鱼	2.02±0.29	2008	[10]
辽东湾	鲷鱼、舌鲷、马鲛	4.89—20.3	2010	[12]
	鲷鱼	1582.3±793.2 ^b	2010	[12]
	舌鲷	984.6±376.6 ^b	2010	[12]
渤海湾	鲷鱼	1.917 ^b	2010	[13]
	舌鲷	1.858 ^b	2010	[13]
	狼鱼	2.550 ^b	2010	[13]
渤海湾	狼鱼	9.57 ^b	2013	[14]
	马鲛、鲶鱼、鲈鱼等	10.28—215.81	2015	[2]
	鲶鱼	1575.44 ^c	2015	[2]
	鲈鱼	1348.64 ^c	2015	[2]
莱州湾	贝类	230—720	2006	[15]
环渤海	贻贝、牡蛎等	0.31—2.73 ^b	2006	[16]
环渤海	紫贻贝、牡蛎等	0.053—9.90 ^b	2011—2013	[5]

注:b 代表 ng·g⁻¹ dw;c 代表 pg·g⁻¹ ww Note: b stands for ng·g⁻¹ dw c stands for pg·g⁻¹ ww

该地区研究的鱼类主要为银鲱鱼、大黄鱼、小黄鱼、金线鱼、鲈鱼等,同属于鲈形目,习性相近.早在 2003—2004 年^[17],有学者研究了舟山采集的银鲱鱼、小黄鱼等鱼类体内的 PBDEs,结果发现 Σ₉PBDEs 浓度为 1.32—10.3 ng·g⁻¹ lw,平均值 6.72 ng·g⁻¹ lw,且 PBDE-47,99 为主要同系物,和渤海地区同系物特征相近.对于长江三角洲区域,2007 年有研究者采集了海门、南京、靖江、太仓和太湖中的凤尾鱼,测定了 PBDEs 浓度最高值为 77 ng·g⁻¹ lw,高于东海沿岸其他地区海鱼体内 PBDEs 含量^[18],这可能与凤尾鱼的种类有关.凤尾鱼是一种洄游性小型鱼类,平时多栖息于外海,在特定时间会由海入江,在中下游的淡水入口处产卵洄游,而淡水区的鱼类更易受到 PBDEs 污染^[19].2008 年,夏重欢^[10]开展了上海、福州、泉州、厦门等城市大黄鱼和银鲱鱼体内 Σ₉PBDEs 浓度调查,评价了当地居民 PBDEs 的暴露水平与暴露风险.研究表明,两种海鱼中 PBDEs 总体含量范围为 1.11—5.28 ng·g⁻¹ lw,但两种海鱼及不同城市结果存在差异.例如,大黄鱼体内 PBDEs 浓度普遍高于银鲱鱼;厦门大黄鱼体内 Σ₉PBDEs 浓度最高,平均值为 5.28 ng·g⁻¹ lw;相比之下,其他 3 个地区两种鱼体内 PBDEs 浓度差异不大^[10].另外,陈树科等^[20]在 2009 年测定乐清湾海域的鲈鱼体内 PBDEs 浓度为 0.1474—0.7605 ng·g⁻¹ ww,PBDE-47 相对含量最高.2013 年,有研究者^[21]测定了厦门海鱼金线鱼中的 Σ₉PBDEs (PBDE-47,66,85,99,100,153,154,209)浓度,其浓度范围为 2.17—12.2 ng·g⁻¹ lw,中值为6.45 ng·g⁻¹ lw,与夏重欢等 2008 年测定的结果相比,该城市海鱼体内 PBDEs 浓度变化不大.

东部沿海地区,对于贝类 PBDEs 蓄积水平的调查和研究主要集中在浙江省台州市,其主要原因是该地有我国大型的电子垃圾回收站点.2015 年,江锦花等^[22]调查了台州市近海海水养殖环境多种海产品(蛤蜊、毛蚶、泥蚶等)中 PBDEs 的污染水平.研究发现这些贝类产品中 PBDEs 的浓度范围为 58.33—78.98 ng·g⁻¹ dw,比相同时期(2015 年)浙江乐清湾^[23]海域附近贝类中 PBDEs 浓度(1.35—3.06 ng·g⁻¹ dw)高出 10—20 倍,可见台州地区贝类产品 PBDEs 污染严重.

我国东部沿海地区鱼/贝类样品中 PBDEs 浓度具体见表 2.东部沿海地区鱼类体内 PBDEs 浓度早期数据比较充分,近几年数据较少.根据现有的数据,鱼类中 PBDEs 蓄积水平在时间和地域上的变化较小,其中长江三角洲凤尾鱼类中 PBDEs 浓度较高,最高浓度为 77 ng·g⁻¹ lw,是其他沿海城市海鱼体中

PBDEs 浓度的 5—6 倍;而贝类体内 PBDEs 蓄积水平存在典型的地域差异,浙江台州贝类中 PBDEs 浓度,普遍高于乐清湾和舟山地区.

表 2 中国东部沿海地区鱼/贝类样品中 PBDEs 浓度(ng·g⁻¹ lw)

Table 2 Concentration of PBDEs in fish/shellfish samples from coastal areas of eastern China (ng·g⁻¹ lw)

地点 Site	生物种类 Species	Σ PBDEs	采样年份 Year	参考文献 References
舟山	银鲱鱼、小黄鱼等	1.32—10.30	2003—2004	[17]
长江三角洲	凤尾鱼	ND—77.00	2007	[18]
上海	银鲱鱼、大黄鱼	2.40—3.19	2008	[10]
福州	银鲱鱼、大黄鱼	2.72—3.78	2008	[10]
泉州	银鲱鱼、大黄鱼	1.11—3.25	2008	[10]
厦门	银鲱鱼、大黄鱼	5.01—5.28	2008	[10]
乐清湾	鲈鱼	0.1474—0.7605 ^c	2009	[20]
厦门	金线鱼	2.17—12.2	2013	[21]
舟山	贝类	6.58—14.30	2003—2004	[17]
台州	蛤蜊、泥蚶	58.33—78.98 ^b	—	[22]
乐清湾	蛤蜊、泥蚶	1.35—3.06 ^b	2015	[23]

注:b 代表 ng·g⁻¹ dw; c 代表 ng·g⁻¹ ww. Note: b stands for ng·g⁻¹ dw; c stands for ng·g⁻¹ ww;
ND 表示没有检测到. ND: No detected.

1.3 南海北部地区鱼/贝类 PBDEs 暴露水平

南海位于中国大陆的南方,南海北部地区包括珠江三角洲、广东、广西和海南等.现有的研究表明,珠江三角洲及附近海域是 PBDEs 的主要污染区^[19].所以,南海北部水域中鱼/贝类 PBDEs 暴露水平更加引人关注.

该地区研究的鱼类主要有鲈形目鱼类(带鱼、金线鱼、美国红鱼、卵形鲳鲅、红笛鲷、银鲳、棘头梅童鱼)、鲱形目鱼类(鳙鱼、裘氏小沙丁鱼)及仙女鱼目的龙头鱼,除裘氏小沙丁鱼(草食性)外,其他均为肉食性鱼类.早在 2003 年丘耀文等^[24]测定的大亚湾鱼类体内 PBDEs 浓度最大值为 16.77 ng·g⁻¹ lw, 2004 年测得深圳湾鱼体中 PBDEs 浓度最大值为 167 ng·g⁻¹ lw^[25].孟祥周等^[8]于 2004—2005 年在广东省 11 个的沿海城市采样,结果发现海洋捕捞鱼类(带鱼、金线鱼、乌鲳)中 Σ₁₀ PBDEs 浓度中值为 4.476 ng·g⁻¹ lw,海水养殖鱼类(美国红鱼、卵形鲳鲅、红笛鲷) Σ₁₀ PBDEs 浓度中值为 13.635 ng·g⁻¹ lw,海水养殖鱼类可能受人为因素影响较大,故浓度普遍高于海水捕捞鱼类.2004 年,有研究者^[26]测定了珠江口大黄鱼、银鲳鱼、龙头鱼等鱼类中 Σ₁₀ PBDEs (PBDE-28, 47, 66, 85, 99, 100, 138, 153, 154, 183) 浓度,范围在 37.8—407.1 ng·g⁻¹ lw,其中龙头鱼体内含量最高且以 PBDE-47 为主要同系物.孙闰霞等^[19] 2013 年测得珠江三角洲 5 种鱼类(鳙鱼、龙头鱼、银鲳等)中 PBDEs 浓度范围 3.1—59 ng·g⁻¹ lw,其中同样为龙头鱼体内 PBDEs 含量最高;而银鲳鱼体内 PBDEs 浓度中值为 8.0 ng·g⁻¹ lw,与 2004 年^[27]珠江口银鲳鱼体内 PBDEs 浓度(中值为 148 ng·g⁻¹ lw)相比显著下降.同时孙闰霞等^[19]对比了 2005 年和 2013 年,珠江口棘头梅童鱼和前鳞骨鲻中 PBDEs 浓度,结果表明这两种生长在海水和淡水交汇处鱼体中 PBDEs 的浓度显著下降.以棘头梅童鱼为例, PBDEs 蓄积水平的最高值从 280 ng·g⁻¹ lw 下降到 6.7 ng·g⁻¹ lw.相比于珠江三角洲,南海北部其他地区鱼体中 PBDEs 的研究较少.2013 年的一项研究表明汕头、阳江、北部湾、海口、三亚等地金线鱼中 PBDEs 含量水平普遍较低,范围在 1.28—36.0 ng·g⁻¹ lw 之间,浓度中值最高出现在汕头,为 10.95 ng·g⁻¹ lw^[21]; 8 种 PBDEs 同系物 PBDE-47, 66, 85, 99, 100, 153, 154, 209 在鱼类体内被检出,其中 PBDE-47 为主要同系物.

相比于鱼体中 PBDEs 的研究,南海北部地区贝类水生生物研究报道比较有限.2003—2004 年广州检测的贝类样品中 PBDEs 浓度为 10.6—18.9 ng·g⁻¹ lw^[17];珠江三角洲贝类体内的 PBDEs, 2005 年检出浓度为 6.4—29 ng·g⁻¹ lw^[28], 2013 年检出浓度为 0.56—43 ng·g⁻¹ lw^[19],总体上该地区贝类 PBDEs 蓄积水平小幅度提升.

表 3 中给出了近年来南海北部地区鱼/贝类的 PBDEs 暴露水平的研究结果.从表 3 可以看出,珠江

三角洲是研究的主要区域,研究结果丰富.研究数据表明该地区鱼类体内 PBDEs 浓度存在下降趋势,而贝类体内 PBDEs 浓度有小幅提升.

表 3 中国南海北部地区鱼/贝类样品中 PBDEs 浓度(ng·g⁻¹ lw)

Table 3 Concentration of PBDEs in fish/shellfish samples from the northern part of the South China Sea (ng·g⁻¹ lw)

地点 Site	生物种类 Species	Σ PBDEs(median)	采样年份 Year	参考文献 References
大亚湾	花鲈、黄斑鲷等	1.00—16.77	2003	[24]
深圳湾	斑鲈、黄斑鲷等	21—167	2004	[25]
广东	美国红鱼、卵形鲳鲹等	3.509—52.0524(4.476)	2004—2005	[8]
	带鱼、金线鱼等	ND—69.410(13.635)	2004—2005	[8]
珠江口	大黄鱼、银鲳鱼等	37.8—407.1	2004	[26]
珠江三角洲	银鲳鱼	148(中值)	2004	[27]
	银鲳鱼	3.3—20(8.0)	2013	[19]
	鳎鱼、龙头鱼等	3.1—59	2013	[19]
	棘头梅童鱼、前鳞骨鲇	60—280	2005	[19]
	棘头梅童鱼、前鳞骨鲇	2.2—14	2013	[19]
广东	金线鱼	1.28—36.0	2013	[21]
广州	贝类	10.6—18.9	2003—2004	[17]
珠江三角洲	贝类	6.4—29	2005	[28]
	贝类	0.56—43	2013	[19]

ND: 没有检测到.ND: No detected.

2 沿海地区鱼/贝类 PBDEs 暴露水平的影响因素及污染特征 (Influencing factors and pollution feature of PBDEs in fish/shellfish from different coastal areas)

2.1 时间、空间分布特征及影响因素

表 4 列出了我国环渤海、东部沿海及南海北部在不同环境介质中的 PBDEs 浓度,其中渤海和东部沿海地区数据较新,而南海北部地区的数据较早.从表中看出,2002—2005 年南海北部海水和沉积物中 PBDEs 的含量远高于 2011—2016 年的渤海和东部沿海地区,这一点与我们研究的南海北部 2003—2005 年鱼类体内浓度较高相匹配.我国沿海地区近 16 年来鱼类体内 PBDEs 浓度时间、空间分布如图 2 (以 3 个地区鱼类体内 PBDEs 浓度范围中最高值取平均作图) 所示.2003—2009 年间,以南海北部地区鱼类体内的 PBDEs(162.90 ng·g⁻¹ lw) 污染最为严重,但近几年污染水平有所下降.环渤海地区鱼类体内 PBDEs 浓度呈现上升趋势,2010—2015 年该地区 PBDEs 平均浓度达到 118.06 ng·g⁻¹ lw, 远高于其他两个地区.而东部沿海地区鱼体中 PBDEs 浓度在两个时间段内没有明显变化.

表 4 中国沿海地区在不同环境介质中的 PBDEs 浓度

Table 4 PBDEs concentrations in different environmental media from China's coastal areas

	时间 Time(year)	大气 Atmosphere/ (pg·m ⁻³)	海水 Seawater/ (pg·L ⁻¹)	沉积物 Sediment/ (ng·g ⁻¹ dw)
环渤海	2012—2016	0.25—46.2 ^[30]	3.10—29.91 ^[30]	0.24—35.73 ^[5]
东部沿海	2011—2013	12 ^[31]	61.9—121.2 ^[31]	0.77—4.96 ^[32]
南海北部	2002—2005	0.07—35.9 ^[33]	108—5788 ^[34]	12.7—7361 ^[35] (ng·g ⁻¹)

珠江三角洲周边城市电子行业发展快,广州、深圳以及东莞等市是目前我国电子电器产品重要的生产地^[29], 这些复合因素都增加了该地区海水环境 PBDEs 的污染压力,也是该地区鱼/贝类体内 PBDEs 浓度偏高的主要原因.渤海湾靠近我国天津、河北等地,工业发展速度快,污染物不断被排放到海水当中,而渤海又是半封闭式内海,海水交换能力弱^[7], PBDEs 得以蓄积,所以渤海湾鱼类样品中 PBDEs 浓度也较高.关于莱州湾鱼类中 PBDEs 浓度报道很少,更多研究的是贝类样品.

莱州湾贝类体内 PBDEs 浓度为 $230\text{--}720\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{ lw}$ ^[15], 该水平远大于我国东部沿海地区和南海北部的珠江三角洲地区. 这与莱州湾经济带是我国最大的 BRFs 生产基地有很大关系, 且该采样时间为 2006 年 5 月, 商业五溴联苯醚和八溴联苯醚阻燃剂还未禁用, 我国还在大量生产和使用 PBDEs, 所以结果偏高. 东部沿海地区贝类样品中 PBDEs 污染程度以浙江台州最为严重, 该地区有巨大的电子垃圾拆解市场, 这些电子垃圾在堆放和拆解过程中持续缓慢的向环境中释放 PBDEs, 从而导致海水中贝类体内的 PBDEs 浓度偏高.

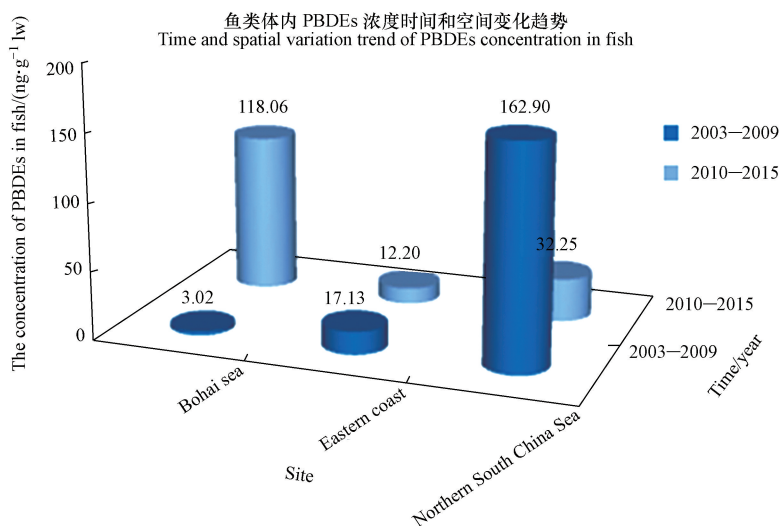


图 1 中国沿海地区鱼体内 PBDEs 浓度时间和空间变化趋势

Fig.1 Time and spatial variation trend of PBDEs concentration in fish from coastal areas of China

2.2 同系物的分布特征

关于渤海、东部沿海及南海北部 3 个地区鱼类体内 PBDEs 同系物的研究结果表明, PBDE-47, 99, 100, 153, 154 在所有鱼类样品中均有检出, 渤海和东部沿海鱼类中以 PBDE-47 和 PBDE-99 为主要同系物, 南海北部地区鱼类中以 PBDE-47 为主要同系物. 分析 PBDE-47 所占的比例较高^[2,8,10,36]的主要原因是, PBDE-47 是商业五溴联苯醚的主要成分, 具有高挥发性和水溶性, 生物富集能力也高, 在生物体中有较高的检出率和检出浓度^[37]. 而分子量最大的 PBDE-209, 却在海洋生物种很少检测到^[36,38]. 可能是由于 PBDE-209 具有低挥发性和低水溶性, 所以进入环境后极易吸附于泥上和颗粒上长期稳定存在^[39], 而在生物中富集能力较低. 但近年来, 有关报道也表明 PBDE-209 脱溴降解后, 有助于溴化程度较低、毒性较大同系物的环境富集^[37-38,40].

伴随着我国商业十溴联苯醚的持续使用, 其主要成分 PBDE-209 暴露水平及降解也引起了国内外研究者的关注. 例如, 在早期的 Ueno 等^[36]采集的金枪鱼样品中没有检测到 PBDE-209, Gomara 等^[41]的报道中, PBDE-209 对总 PBDEs 的贡献率不到 10%. 但近年来倪欣娟等^[13]在研究渤海湾北塘口、大沽口、歧口和高沙岭等 4 个潮间带的多种动物样品中的 PBDEs 水平时发现, PBDE-209 为主要检出物, 浓度范围是 $0.965\text{--}2.417\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{ dw}$, 贡献率高达 73%. 汪洋^[42]测得三峡库区主要支流野生鱼体内的 PBDE-209 浓度范围是 $\text{ND--}7.03\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{ lw}$, 贡献率为 21.23%, 并且在所有鱼样中的检出率高达 97%, 几乎普遍存在于各种鱼体内. 另外在广东和舟山的生物样品中也检测到了 PBDE-209, 鱼类样品中 PBDE-209 浓度为 $2.12\text{--}3.03\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{ lw}$, 占总 PBDEs 浓度的 6.5%—31.5%; 贝类样品 PBDE-209 浓度为 $7.67\text{--}8.84\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{ lw}$, 贡献率高达 65.5%—73.0%^[17]. 黄飞飞等^[43]从沿海 5 省采集的贝类样品中测定出其 PBDE-209 的平均含量显著高于国内外的相关报道.

以上这些研究结果, 打破了人们普遍认为的一种观点: PBDE-209 因其分子量和分子体积较大, 难以通过生物膜组织, 而被生物体所吸收^[42]. 不同研究中 PBDE-209 检出率高低不一的原因可能与不同生物体内的转化与代谢有关, 例如在孙闰霞^[19]的研究中, 文蛤体内 PBDE-209 所占相对比例达 88%, 而银鲳鱼中 PBDE-209 所占比例不足 20%.

2.3 标准海洋物种的选取

由于 PBDEs 具有脂溶性和生物累积性,容易被生物体吸收,所以通常采用鱼类来指示海洋 POPs 污染程度^[45].为了方便污染监测和更直观的对不同区域的 PBDEs 浓度进行比较,我们需要选择标准的海洋物种作为参考.倪新娟^[13]研究认为,可将墨斗鱼作为海洋污染的指示物.因为墨斗鱼分布广,产量高,是我国四大经济鱼类之一,且以浮游生物及虾、蟹为食,对 PBDEs 有很好的富集能力,体内 PBDEs 含量高;而 Ueno 等^[36,44]认为,鲑鱼可作为合适的海洋污染指示物,有如下几个原因:(1)鲑鱼主要分布在近海水域,几乎遍布世界各地的热带和温带开放海域,如太平洋、大西洋和印度洋,是一种重要的商品鱼.(2)鲑鱼的迁移模式、生长阶段和性别对其体内 POPs 残留水平的变化没有或几乎没有影响.(3)在鲑鱼中发现的 POPs 浓度的分布模式与该地区报道的表层海水及各类生物相似.陈凤巧等^[45]的报道中也提到鲑鱼对污染物有良好的指示作用.

总的来说,选取海洋标准生物时要考虑以下方面:(1)鱼类的地区分布和产量大小.(2)鱼类的性别、生长阶段是否对体内 PBDEs 污染水平具有影响^[45].(3)鱼类体内的含脂率^[45].(4)鱼类体内的 PBDEs 污染程度要与该地区海水及其他生物体内相近.

3 研究展望 (Research prospect)

(1) 希望加强鱼/贝类体内 PBDEs 暴露水平在垂直方向上的研究.以往关于 PBDEs 暴露水平的研究,大多是横向空间上不同区域 PBDEs 暴露量的调查,缺少一些重点区域或污染点鱼/贝类体内 PBDEs 时间上纵向的研究和比较.

(2) 在对海水 PBDEs 污染水平进行评价时,希望海洋物种的选取标准化,尽量统一 PBDEs 浓度的单位,或者给出干重与脂重的换算方法.在不同的海洋环境中,PBDEs 含量根据生物种类和收集地点的不同有很大差异,而且很多报道中 PBDEs 浓度的单位不一致,增大了研究中对比和总结的难度,导致数据型的结论不够全面或准确性不足.

(3) 加快海水、鱼/贝和海底沉积物体系中 PBDE-209 的环境行为研究.通过配套开展海水、生物体和沉积物中 PBDE-209 研究,监测 PBDE-209 的暴露水平变化动态,尽快摸清环境中 PBDE-209 的降解、代谢和迁移特征,服务于 PBDEs 的安全生产和使用.

参考文献 (References)

- [1] 王赛赛,宋烽,韩刚,等.多溴联苯醚污染现状研究进展[J].中国农学通报,2017,33(20):149-157.
WANG S S, SONG Y, HAN G, et al. Advances in research on pollution status of polybrominated diphenyl ethers[J]. Chinese Agricultural Science Bulletin, 2017, 33(20): 149-157 (in Chinese).
- [2] 王莎莎.渤海湾海域不同海鱼体内持久性有机污染物的污染特征研究[D].沧州:河北农业大学,2015.
WANG S S. Study on pollution characteristics of persistent organic pollutants in different sea fish in Bohai Bay[D]. Cangzhou: Hebei Agricultural University, 2015 (in Chinese).
- [3] SHEN H P, HUANG C J, FANG L U, et al. Comparative toxicity of PCBs and PBDEs using human cancer cell lines and zebrafish embryos[J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2009(4): 625-633.
- [4] PER Ola Darnerud. Toxic effects of brominated flame retardants in man and in wildlife[J]. Environment International, 2003, 29(6): 841-853.
- [5] 姚文君,薛文平,国文,等.环渤海近岸海域表层沉积物及底栖生物中 PBDEs 的赋存特征及富集行为[J].生态毒理学报,2016,11(2):413-420.
YAO W J, XUE W P, GUO W, et al. Occurrence and enrichment behavior of PBDEs in surface sediments and benthic organisms in the coastal waters around the Bohai Sea[J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2016, 11(2): 413-420 (in Chinese).
- [6] 蒋笑萍. RoHS 指令评述[J]. 上海标准化, 2005(7): 16-20.
JIANG X P. RoHS directive review[J]. Shanghai Standardization Monthly, 2005(7): 16-20 (in Chinese).
- [7] JIN J, LIU W Z, WANG Y, et al. Levels and distribution of polybrominated diphenyl ethers in plant, shellfish and sediment samples from Laizhou Bay in China[J]. Chemosphere, 2008, 71(6): 1043-1050.
- [8] 孟祥周.中国南方典型食用鱼类中持久性卤代烃的浓度分布及人体暴露的初步研究[D].广州:中国科学院研究生院(广州地球化学研究所),2007.
MENG X Z. Preliminary study on concentration distribution and human exposure of persistent halogenated hydrocarbons in typical edible fish in southern China[D]. Guangzhou: Graduate School of Chinese Academy of Sciences (Guangzhou Institute of Geochemistry), 2007 (in

Chinese).

- [9] NI K, LU Y L, WANG T Y, 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.
- [10] 夏重欢. 中国沿海地区海鱼体内持久性有机污染物痕量元素的污染水平以及对人类健康的风险评估[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2011.
- XIA C H. Pollution levels of trace elements of persistent organic pollutants in marine fish in coastal areas of China and risk assessment of human health[D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2011 (in Chinese).
- [11] WAN Y, HU J, ZHANG K, et al. Trophodynamics of polybrominated diphenyl ethers in the marine food web of Bohai Bay, North China [J]. Environmental Science & Technology, 2008, 42(4): 1078-1083.
- [12] MA X D, ZHANG H J, YAO Z W, et al. Bioaccumulation and trophic transfer of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in a marine food web from Liaodong Bay, North China [J]. Marine Pollution Bulletin, 2013, 74(1): 110-115.
- [13] 倪新娟. 渤海湾动物中多溴联苯醚的富集代谢[D]. 保定: 河北大学, 2012.
- NI X J. Enrichment and metabolism of polybrominated diphenyl ethers in Bohai Bay animals [D]. Baoding: Hebei University, 2012 (in Chinese).
- [14] ZHENG B, ZHAO X, NI X, et al. Bioaccumulation characteristics of polybrominated diphenyl ethers in the marine food web of Bohai Bay [J]. Chemosphere, 2016, 150: 424-430.
- [15] JIN J, LIU W Z, WANG Y, et al. Levels and distribution of polybrominated diphenyl ethers in plant, shellfish and sediment samples from Laizhou Bay in China [J]. Chemosphere, 2007, 71(6): 1043-1050.
- [16] 马新东. 海洋沉积物和生物中多溴联苯醚的方法研究及应用[D]. 大连: 大连海事大学, 2007.
- MA X D. Research and application of polybrominated diphenyl ethers in marine sediments and organisms [D]. Dalian: Dalian Maritime University, 2007 (in Chinese).
- [17] YUICHI MIYAKE, JIANG Q T, WANG Y, et al. Preliminary health risk assessment for polybrominated diphenyl ethers and polybrominated dibenzo-p-dioxins/furans in seafood from Guangzhou and Zhoushan, China [J]. Marine Pollution Bulletin, 2008, 57(6): 357-364.
- [18] SU G Y, GAO Z S, YU Y J, et al. Polybrominated diphenyl ethers and their methoxylated metabolites in anchovy (*Coilia* sp.) from the Yangtze River Delta, China [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2010, 17(3): 634-642.
- [19] 孙闰霞. 珠江三角洲水生生物中卤代有机污染物的时空分布、生物积累及人体暴露评估[D]. 广州: 中国科学院研究生院(广州地球化学研究所), 2016.
- SUN R X. Temporal and spatial distribution, bioaccumulation and human exposure assessment of halogenated organic pollutants in aquatic organs in the Pearl River delta [D]. Guangzhou: Graduate School of Chinese Academy of Sciences (Guangzhou Institute of Geochemistry), 2016 (in Chinese).
- [20] 陈树科, 沈晓飞, 江锦花. 乐清湾海域鱼类中多溴联苯醚的分布特征[J]. 安徽农业科学, 2009, 37(23): 11040-11043.
- CHEN S K, SHEN X F, JIANG J H. Distribution characteristics of polybrominated diphenyl ethers in fish in Yueqing Bay [J]. Journal of Anhui Agricultural Sciences, 2009, 37(23): 11040-11043 (in Chinese).
- [21] HAO Q, SUN Y X, XU X R, et al. Geographical distribution and risk assessment of persistent organic pollutants in golden threads (*Nemipterus virgatus*) from the northern South China Sea [J]. Ecotoxicology, 2015, 24(7-8): 1593-1600.
- [22] 江锦花, 陶亮, 陈莹曦. 浙江近海海水养殖生物体内多溴联苯醚浓度特征及风险评价[J]. 台州学院学报, 2015, 37(6): 1-7.
- JIANG J H, TAO L, CHEN Y X. Concentration characteristics and risk assessment of polybrominated diphenyl ethers in marine aquaculture organisms in Zhejiang offshore [J]. Journal of Taizhou University, 2015, 37(6): 1-7 (in Chinese).
- [23] 章启明. 海水养殖贝类中多溴联苯醚的浓度特征[J]. 安徽农业科学, 2015, 43(4): 230-234.
- ZHANG Q M. Concentration characteristics of polybrominated biphenyl ethers in mariculture shellfish [J]. Journal of Anhui Agricultural Sciences, 2015, 43(4): 230-234 (in Chinese).
- [24] 丘耀文, 张干, 郭玲利, 等. 大亚湾海域多溴联苯醚的生物累积特征[J]. 中国环境科学, 2006, 26(6): 685-688.
- QIU Y W, ZHANG G, GUO L L, et al. Bioaccumulation characteristics of polybrominated diphenyl ethers in Daya Bay [J]. China Environmental Science, 2006, 26(6): 685-688 (in Chinese).
- [25] 丘耀文, 张干, 郭玲利, 等. 深圳湾海域多溴联苯醚(PBDEs)生物累积及其高分辨沉积记录[J]. 海洋与湖沼, 2009, 40(3): 261-268.
- QIU Y W, ZHANG G, GUO L L, et al. Bioaccumulation of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in the Shenzhen Bay and their high-resolution deposition records [J]. Oceanologia Et Limnologia Sinica, 2009, 40(3): 261-268 (in Chinese).
- [26] 向彩红. 珠江河口水生生物中多溴联苯醚的初步研究[D]. 广州: 中国科学院研究生院(广州地球化学研究所), 2006.
- XIANG C H. A preliminary study on polybrominated biphenyl ethers in aquatic organisms in the Pearl River estuary [D]. Guangzhou: Graduate School of Chinese Academy of Sciences (Guangzhou Institute of Geochemistry), 2006 (in Chinese).
- [27] XIANG C H, LUO X J, CHEN S J, et al. Polybrominated diphenyl ethers in biota and sediments of the Pearl River Estuary, South China [J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2007, 26(4): 616-623.
- [28] YU M, LUO X J, WU J P, et al. Bioaccumulation and trophic transfer of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in biota from the Pearl River Delta Estuary, South China [J]. Environmental International, 2009, 35(7): 1090-1095.

- [29] 管玉峰,涂秀云,吴宏海.珠江入海口水体中多溴联苯醚及其来源分析[J].生态环境学报,2011,20(3):474-479.
GUAN Y F,TU X Y,WU H H,et al. Analysis of polybrominated biphenyl ethers (PBDEs) and their sources in the estuary of the pearl river [J]. Ecology and Environmental Sciences, 2011,20(3):474-479(in Chinese).
- [30] 刘琳. 当前使用农药和卤代阻燃剂在渤海区域的时空分布特征研究[D].烟台:中国科学院大学(中国科学院烟台海岸带研究所),2018.
LIU L. Study on the spatial and temporal distribution of pesticides and halogenated flame retardants in bohai region[D].Yantai: University of Chinese Academy of Sciences(Yantai Institute of Coastal Zone Research,Chinese Academy of Sciences),2018(in Chinese).
- [31] 李圆圆. 东海持久性有机污染物多溴联苯醚的“源—汇”作用研究[D].上海:复旦大学,2014.
LI Y Y. Study on the “source-sink” effect of polybrominated biphenyl ethers (pbdes), a persistent organic pollutant in the east China sea [D].Shanghai:Fudan University,2014(in Chinese).
- [32] 周鹏,林匡飞,于慧娟,等. 东海沉积物中多溴联苯醚的分布特征研究[J].中国环境科学,2016,36(1):149-156.
ZHOU P,LIN K F,YU H J,et al. Distribution characteristics of polybrominated biphenyl ethers in sediments of the east China sea. [J]. China Environmental Science, 2016, 36(1):149-156(in Chinese).
- [33] 李琦路,李军,刘向,等. 南海北部大气气相多溴联苯醚的含量及来源[J]. 环境科学,2012,33(8):2533-2537.
LI Q L,LI J,LIU X,et al. Content and source of atmospheric pbdes in northern South China Sea[J]. Environmental Science, 2012, 33(8):2533-2537(in Chinese).
- [34] 罗孝俊,余梅,陈社军,等. 多溴联苯醚(PBDEs)在珠江口水体中的分布与分配[J].科学通报,2008,53(2):141-146.
LUO X J,YU M,CHEN S J,et al. Distribution and distribution of polybrominated biphenyl ether (PBDEs) in Pearl River Estuary water [J]. Chinese Science Bulletin, 2008, 53(2):141-146(in Chinese).
- [35] 陈社军,麦碧娴,曾永平,等. 珠江三角洲及南海北部海域表层沉积物中多溴联苯醚的分布特征[J]. 环境科学学报,2005,25(9):1265-1271.
CHEN S J,MAI B X,ZENG Y P,et al. Distribution characteristics of polybrominated biphenyl ethers in surface sediments of the pearl river delta and the northern south China sea [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2005, 25(9):1265-1271(in Chinese).
- [36] UENO D,KAJIWARA N,TANAKA H,et al. Global pollution monitoring of polybrominated diphenyl ethers using skipjack tuna as a bioindicator[J]. Environmental Science & Technology, 2004, 38(8):2312-2316.
- [37] 赵志刚. 大连海域底泥环境多溴联苯醚生态风险分析研究[D].大连:大连海事大学,2013.
ZHAO Z G. Ecological risk analysis of polybrominated diphenyl ethers in sediment environment of Dalian sea area[D].Dalian: Dalian Maritime University,2013(in Chinese).
- [38] LI Q Z,YAN C Z,LUO Z X,et al. Occurrence and levels of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in recent sediments and marine organisms from Xiamen offshore areas, China[J]. Marine Pollution Bulletin,2010,60(3):464-469.
- [39] ZHANG D P,ZHANG X Y,YU Y X,et al. Tissue-specific distribution of fatty acids, polychlorinated biphenyls and polybrominated diphenyl ethers in fish from Taihu Lake, China, and the benefit-risk assessment of their co-ingestion[J]. Food and Chemical Toxicology, 2012,50(8):2837-2844.
- [40] HYO JIN LEE,GI BEUM KIm. An overview of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in the marine environment[J]. Ocean Science Journal,2015,50(2):119-142.
- [41] GÓMARA, B, HERRERO L, RAMOS J J, et al. Distribution of polybrominated diphenyl ethers in human umbilical cord serum, paternal serum, maternal serum, placentas, and breast milk from Madrid Population, Spain[J]. Environmental Science & Technology, 2007, 41(20):6961-6968.
- [42] 汪洋. 三峡库区主要支流野生鱼体中多溴联苯醚的初步研究[D].上海:上海大学,2013.
WANG Y. Preliminary study on polybrominated diphenyl ethers in wild fishes from the main tributaries of the Three Gorges reservoir area [D].Shanghai: Shanghai University,2013(in Chinese).
- [43] 黄飞飞,李敬光,赵云峰,等.我国沿海地区贝类样品中十溴联苯醚污染水平分析[J].环境化学,2011,30(2):418-422.
HUANG F F,LI J G,ZHAO Y F,et al. Analysis of pollution level of decabromodiphenyl ether in shellfish samples from coastal areas of China[J]. Environmental Chemistry, 2011,30(2):418-422(in Chinese).
- [44] UENO D,TAKAHASHI S,TANAKA H,et al. Global pollution monitoring of PCBs and organochlorine pesticides using skipjack tuna as a bioindicator.[J].Archives of Environmental Contamination and Toxicology,2003,45(3)378-389.
- [45] 陈巧凤,周铁慧,仇雁翎,等. 鱼类作为持久性有机污染物指示生物研究进展[J]. 环境科学与技术,2016,39(S1):99-110.
CHEN Q F,ZHOU Y H,QIU Y L, et al. Fish as persistent organic pollutants indicate the progress of biological research[J]. Environmental Science & Technology, 2016(S1):99-110(in Chinese).