

北京市市售动物源性食品中十溴联苯醚和六溴环十二烷污染水平分析

王翼飞^{1,2}, 黄默容¹, 张淑华^{1,2}, 王 晖^{1,2}, 施致雄^{1,2*}

(1. 首都医科大学公共卫生学院, 北京 100069; 2. 首都医科大学环境毒理学北京市重点实验室, 北京 100069)

摘要: **目的** 了解北京市市售动物源性食品中十溴联苯醚和六溴环十二烷异构体(α -、 β -、 γ -六溴环十二烷)的污染水平。**方法** 于2013年采集北京地区水产品、肉、蛋、奶等动物性食品。采用凝胶渗透色谱结合固相萃取技术进行样品前处理,以气相色谱-负化学源质谱法(GC-NCI-MS)及超高效液相色谱-电喷雾电离-串联质谱法(UPLC-ESI-MS/MS)结合稳定性同位素稀释技术分别测定食品中十溴联苯醚和 α -、 β -、 γ -六溴环十二烷的含量。**结果** 十溴联苯醚污染水平在ND至159.17 ng/g脂肪,平均值和中值分别为14.33 ng/g脂肪和9.44 ng/g脂肪。3种六溴环十二烷异构体总量在ND至26.83 ng/g脂肪,均值和中值分别为4.32 ng/g脂肪和2.45 ng/g脂肪, α -六溴环十二烷是最主要的异构体。相比有关文献报道结果,本研究发现北京市市售动物源性食品中十溴联苯醚和六溴环十二烷污染水平高于其他地区。**结论** 北京市市售动物源性食品中普遍存在十溴联苯醚和六溴环十二烷污染,应当持续开展此类溴系阻燃剂的污染水平监测和健康效应评估。

关键词: 动物源性食品; 溴系阻燃剂; 十溴联苯醚; 六溴环十二烷

Survey on pollution levels of decabrominated diphenyl ethers and hexabromocyclododecane in food of animal origin saled in Beijing's markets

WANG Yi-Fei^{1,2}, HUANG Mo-Rong¹, ZHANG Shu-Hua^{1,2}, WANG Hui^{1,2}, SHI Zhi-Xiong^{1,2*}

(1. School of Public Health, Capital Medical University, Beijing 100069, China; 2. Beijing Key Laboratory of Environmental Toxicology, Capital Medical University, Beijing 100069, China)

ABSTRACT: Objective To investigate the pollution levels of two brominated flame retardants, hexabromocyclododecane (HBCD) and decapolybrominated diphenyl ethers (BDE-209), in food samples of animal-origin saled in Beijing's markets. **Methods** Aquatic foods, meat and meat products, eggs and dairy products, etc were collected in 2013. The samples' pretreatment were based on gel permeation chromatography combined with solid phase extraction. The BDE-209 was analyzed using GC-NCI-MS and the α -、 β -、 γ -HBCD was analyzed using UPLC-ESI-MS/MS. **Results** The pollution level of BDE-209 was from ND to 159.17 ng/g lipid, the mean value was 14.33 ng/g lipid and the median value was 9.44 ng/g lipid. The pollution level of

基金项目: 北京市自然科学基金(7122022)、国家自然科学基金(21007043)、北京市属高等学校高层次人才引进与培养计划项目(CIT&TCD201404190)和北京市优秀人才培养资助(2013D005018000008)

Fund: Supported by Beijing Natural Science Foundation (7122022), National Natural Science Foundation of China (21007043), the Importation and Development of High-Caliber Talents Project of Beijing Municipal Institutions (CIT&TCD201404190) and the Development of Outstanding Talents Project of Beijing (2013D005018000008).

*通讯作者: 施致雄, 博士, 副教授, 主要研究方向为食品化学污染物与健康。E-mail: szx0127@ccmu.edu.cn

*Corresponding author: SHI Zhi-Xiong, Associate Professor, Capital Medical University, No. 10 Xitoutiao, Youanmen, Beijing 100069, China. E-mail: szx0127@ccmu.edu.cn

HBCD was from ND to 26.83 ng/g lipid, with a mean and median value of 4.32 and 2.45 ng/g lipid, respectively. α -HBCD dominated the HBCD profile in the majority of the food samples. The pollution levels of BDE-209 and HBCD in present study were higher than other studies. **Conclusion** BDE-209 and HBCD are widespread in the food of animal origin saled in Beijing's markets. Further investigation and assessment of health effects to these brominated flame retardants are needed.

KEY WORDS: food of animal origin; brominated flame retardants; decabrominated diphenyl ethers; hexabromocyclododecane

溴系阻燃剂由于价格低廉且具有良好的防火阻燃效果而被广泛应用于以电子电气产品为主的各类产品中。多溴联苯醚(polybrominated diphenyl ethers, PBDEs)和六溴环十二烷(hexabromocyclododecane, HBCD)是当前生产量和消费量最大的两种添加型溴系阻燃剂。商品化 PBDEs 有五溴联苯醚、八溴联苯醚和十溴联苯醚(BDE-209)等。HBCD 则有 α -、 β -和 γ -HBCD 三种异构体。商品化 HBCD 中 γ -HBCD 所占比重最高, 达 75%~89%, α -HBCD 占 10%~13%, β -HBCD 占 0.5%~12%。在非生物体和生物体重三种异构体的比例差别显著, 因此对 HBCD 的环境危险性评价需要对 3 种异构体分别进行精确定量。PBDEs 和 HBCD 均具有结构稳定、脂溶性强、不易降解等特性, 以及较强的生物蓄积性和持久性^[1]。HBCD 和 PBDEs 中除 BDE-209 外的其他同系物均被确认为持久性有机污染物^[2], 但 HBCD 和 BDE-209 在我国仍大量生产与使用。HBCD 和 BDE-209 的潜在健康危害备受关注。现有研究表明, HBCD 和 BDE-209 具有肝毒性、内分泌干扰作用、神经毒性等多种毒性效应^[3, 4]。因此, BDE-209 和 HBCD 的污染水平监测一直是国内外研究的热点。由于 BDE-209 和 HBCD 均具有亲脂性和蓄积性, 动物源性食品被认为是普通人群摄入这类物质的主要来源。本研究选择北京市市售动物源性食品作为研究对象, 通过测定此类食品中 BDE-209 和 α -、 β -、 γ -HBCD 的含量, 初步了解北京市市售食品中 BDE-209 和 HBCD 的污染状况, 为评价北京市普通人群溴系阻燃剂的暴露水平提供基础数据支持。

1 材料与方法

1.1 仪器与试剂

QP2010 型气相色谱-质谱联用仪(日本岛津公司); ACQUITY™ 超高效液相色谱仪、Micromass®- Qua-

ttro Premier 三重四级杆质谱仪(美国 Waters 公司); AccuPrep MPS 自动凝胶渗透色谱系统(美国 J2 Scientific Inc.), 配备低压填充柱, 填料为 50 g Bio-Beads S-X3, 柱规格 50 cm×2 cm i.d.。

正己烷、甲醇、乙腈、丙酮、二氯甲烷、环己烷和乙酸乙酯, 均为农残级或色谱级(美国 J&T. Baker 公司或迪马公司)。98%浓硫酸购自北京化学试剂公司。BDE-209 标准品(25 μ g/mL, 溶于异辛烷)购于美国 Accu Standard 公司。 α -、 β -、 γ -HBCD 及其同位素内标标准品 $^{13}\text{C}_{12}$ - α -、 β -、 γ -HBCD(均为 50 μ g/mL, 溶于甲苯), 以及 BDE-209 的内标标准品 $^{13}\text{C}_{12}$ -BDE-209(25 μ g/mL, 溶于壬烷), 购于美国 Cambridge Isotopes Inc.。

固相萃取柱: LC-Si, 规格为 500 mg, 3 mL, 购自美国 Supelco 公司

1.2 样品采集与前处理

采集 在北京地区超市及农贸市场购买食品, 包括水产品, 肉类, 奶类和蛋类四类动物源性食品共 50 份, 其中水产品包括三文鱼、草鱼、鲢鱼、带鱼、黄花鱼、虾、鲤鱼、泥鳅、鱿鱼、平鱼和鲫鱼等共 18 个样品; 肉类包括猪肉、牛肉、羊肉、鸡肉和鸭肉等共 17 个样品; 奶类包括液态牛奶、奶粉和酸奶等共 11 个样品; 蛋类包括鸡蛋、鸭蛋、咸鸭蛋和松花蛋共 4 个样品。

提取 取可食用部分, 于小型匀浆机上将样品捣碎、匀浆。冷冻干燥后研碎, 根据脂肪含量的不同准确称取 5~10 g 置于纤维素提取套筒中, 加入内标 $^{13}\text{C}_{12}$ -BDE-209 和 $^{13}\text{C}_{12}$ - α -、 β -、 γ -HBCD 各 10 ng, 以 160 mL 正己烷/丙酮(1:1, v:v)索氏提取 20 h, 待净化。

净化 索氏提取后旋蒸除去溶剂, 以重量法计算脂肪含量, 加入乙酸乙酯/环己烷(1:1, v:v)溶解残渣, 转移至自动凝胶净化系统进样管定容至 6 mL 并进样 5 mL。流动相为乙酸乙酯/环己烷(1:1, v:v)混合

液,流速 5 mL/min,收集 19~40 min 流出组分并旋蒸至近干,加 5 mL 正己烷复溶,转移至玻璃离心管中,加入 2 mL 98%浓硫酸,振荡,600 g 离心 3min,转移上层有机相至另一离心管中,用正己烷萃取浓硫酸两次,合并有机相,氮气吹干浓缩至约 2 mL,待固相萃取柱分离。

分离 采用 LC-Si SPE 柱分离 BDE-209 与 HBCD,LC-Si 柱经 5 mL 正己烷活化后,导入试样溶液,加 6 mL 正己烷洗脱 PBDEs,再加 6 mL 丙酮洗脱 HBCD。含 BDE-209 的洗脱液经氮气吹干后加 100 μ L 正己烷复溶,转移至进样瓶待测。含 HBCD 的洗脱液经氮气吹干后加 200 μ L 甲醇复溶,转移至进样瓶待测。

1.3 UPLC-MS/MS 分析条件

采用 UPLC-MS/MS 测定 HBCD,UPLC 分析条件:色谱柱为 Waters 公司的 Acquity BEH C₁₈ 柱,50 mm \times 2.1 mm \times 1.7 μ m;柱温 50 $^{\circ}$ C;进样体积 10 μ L;流速 0.4 mL/min。流动相 A 为甲醇:乙腈混合液(1:1,v:v),流动相 B 为水,梯度:起始为 50% A,保持 1 min,A 相线性提高,在 4 min 时达到 90%A,保持 2 min,之后改变为 100% A 并保持 2 min,8 min 时回复到起始比例,平衡系统 3 min。质谱条件:离子源为电喷雾电离源,负电离模式[ESI(-)];毛细管电压 3.00 kV;锥孔电压为 TBBPA 70 V,HBCD 20 V;二级锥孔电压 2 V;射频透镜电压 0.5 V;源温度 120 $^{\circ}$ C;脱溶剂温度 400 $^{\circ}$ C;脱溶剂气为 N₂,流量 800 L/h;反吹气流量 50 L/h;碰撞能量 30 eV;碰撞气为 Ar,流量 0.2 mL/min。检测模式为多反应离子监测(MRM);HBCD 监测离子为 m/z 640.7 \rightarrow 80.7 和 640.7 \rightarrow 78.9,¹³C₁₂-HBCD 定量离子为 m/z 652.7 \rightarrow 80.7 和 652.7 \rightarrow 78.9。

1.4 GC-NCI/MS 分析条件

采用 GC-NCI/MS 分析 BDE-209,GC 分析条件:DB-5MS 毛细管柱(15 m \times 0.25 mm,0.1 μ m,J&W Scientific);载气为 He(纯度 > 99.995%);柱流量 1.5 mL/min;不分流进样,进样量 1.00 μ L;进样口温度 275 $^{\circ}$ C;传输线温度 280 $^{\circ}$ C;色谱柱升温程序:100 $^{\circ}$ C(保持 1.5 min),以 35 $^{\circ}$ C/min 升温至 200 $^{\circ}$ C,以 25 $^{\circ}$ C/min 升温至 280 $^{\circ}$ C,以 35 $^{\circ}$ C/min 升温至 310 $^{\circ}$ C(保持 6 min)。NCI/MS 分析条件:甲烷反应气压力 0.2 MPa;离子源电压 70 V;检测器电压 1.56 kV;

离子源温度 230 $^{\circ}$ C。检测模式为选择性离子监测(SIM);BDE-209 监测离子为 m/z 486 和 488,¹³C₁₂-BDE-209 监测离子为 m/z 492 和 494。

1.5 质量控制

每检测 10 个样品后测定一个方法空白,HBCD 在空白样本中均未检出,BDE-209 有微量检出,最终样品值均已扣除方法空白值。以猪肉、纯牛奶、鸡蛋及草鱼等样品进行基质加标回收实验,结果显示各待测物相对回收良好,回收率均在 75%~130%之间,变异系数在 15%之内。四类食品中 HBCD 和 BDE-209 的检测限在 10~100 pg/g。

2 结果与讨论

2.1 BDE-209 污染水平分析

本研究共检测了四类动物源性食品共 50 份样本,其中 43 份样品检出 BDE-209,污染水平在 ND~159.17 ng/g 脂肪(以脂肪含量计),平均值和中值分别为 14.33 ng/g 和 9.44 ng/g 脂肪。若结果以样品鲜重计,则含量在 ND~12.76 ng/g,中值和均值分别为 0.27 ng/g 和 1.83 ng/g(表 1)。肉类样品中含量最高,17 份样品中有 15 份检出 BDE-209,中值为 13.17 ng/g 脂肪,含量最高的是一个猪肉样品,污染水平达 159.17 ng/g 脂肪;其次是蛋类,4 份样品均可检出,中值为 11.31 ng/g 脂肪;在 18 份水产品中,有 16 份检出 BDE-209,在一个草鱼样及一个鲤鱼样中未检出,水产品中 BDE-209 中值为 5.53 ng/g 脂肪,含量最高的是一个三文鱼样。在所检测的 18 份水产品中,7 份为海水鱼,如三文鱼、黄花鱼和平鱼等,海水鱼类体内的 BDE-209 污染水平平均值为 18.94 ng/g 脂肪,高于所检测的 8 份淡水鱼类样(均值 5.13 ng/g 脂肪,包括草鱼、鲤鱼等),这可能与淡水鱼多为人工饲养,接触环境污染物机会较少有关。奶类样品的污染水平最低,在 11 份奶类样品中有 8 份检出 BDE-209,中值为 3.05 ng/g 脂肪。

与国内外研究相比,黄飞飞等^[5]测定了我国沿海地区贝类样品中的 BDE-209,平均含量为 61.29 ng/g (ng/g 表示以鲜重计算,下同),明显高于本研究中水产品的污染水平。Luo 等^[6]测定了我国南方某电子垃圾拆卸区家禽体内的 PBDEs,其中鸡肉中的 BDE-209 含量在 2~1836 ng/g 脂肪,高于本研究,但鸭肉中 BDE-209 含量仅为 1.2~37 ng/g

脂肪, 与本研究相当。刘斌等^[7]测定了深圳市售鱼类和禽蛋类食品中的 PBDEs, 淡水鱼类中未检出 BDE-209, 海水鱼中 BDE-209 中值为 0.24 ng/g, 禽蛋类食品中 BDE-209 中值为 0.47 ng/g, 含量在 ND~2.22 ng/g。Miyake 等^[8]测定了采集自广州和舟山群岛附近海域的海产品, BDE-209 在各类产品中的均值在 1.78~22.8 ng/g 脂肪, 最高污染水平为 45.8 ng/g 脂肪。在亚洲其他地区的研究中, Kaki-moto^[9]测定了日本市售 13 类食品中的 PBDEs, 其中 BDE-209 在 6 类食品中检出, 含量在 31.8~186 pg/g。在欧洲地区的研究中, Knutsen^[10]测定了挪威各类动物性食品中的 PBDEs, 其中 BDE-209 含量在 ND~1.9 ng/g 之间, 与本研究相当。但在比利时的一项研究中, 各类食品中均未检出 BDE-209^[11]。比利时的另一项研究测定了 2007 年春天采集的鸡蛋样本, BDE-209 均值为 7.07 ng/g 脂肪, 最高含量 31 ng/g 脂肪, 其均值要低于本研究^[12]。Fernandes 等^[13]分析了英国海洋贝类的 PBDEs 污染状况, 其中 BDE-209 污染水平在 ND~0.53 ng/g, 低于本研究。北美地区 PBDEs 使用时间较长, 多项研究均显示当地存在较严重 PBDEs 污染, 但现有文献表明北美地区 BDE-209 使用量较低, 因此 BDE-209 污染水平并不高^[14]。在一项涉及美国三个城市的研究中, BDE-209 在动物源性食品中含量在 ND 至 3.04 ng/g, 在肉类中含量最高, 中值及平均值分别为 0.18 ng/g 和 0.36 ng/g^[15]。总之, 国内外关于 BDE-209 在食品中污染水平的研究依然较少, 与国外类似研究相比, 我国食品中 BDE-209 污染水平略高于国外。

2.2 HBCD 污染水平分析

在 40 个样品中检出了 HBCD, Σ HBCD(α -, β -和 γ -HBCD 三种异构体含量总和)含量在 ND~26.83 ng/g 脂肪, 均值和中值分别为 4.32 ng/g 和 2.45 ng/g 脂肪, HBCD 含量最高的是一份鲶鱼样(26.83 ng/g 脂肪)。若结果以鲜重计, 则含量在 ND~4.12 ng/g, 中值和均值分别为 0.19 ng/g 及 0.39 ng/g (表 2), 本研究中 HBCD 的污染水平低于 BDE-209, 前期本课题组对北京市产妇女乳的检测也得到了类似的结果^[16], 原因应在于 PBDEs 的使用量高于 HBCD^[17]。在四类食品中, 水产品中 HBCD 含量最高, 中值为 5.65 ng/g 脂肪, 随后依次是蛋类、肉类和奶类。在 40 份检出 HBCD 的样品中, α -HBCD 全部检出, 除在一个鸭肉样品中含量占 Σ HBCD 的 41%之外, 在其他样品中 α -HBCD 均占 Σ HBCD 的 70%以上。在 3 份水产样(草鱼、黄花鱼和鲶鱼)和 3 份肉样(牛肉、鸭肉和羊肉)中检出了 β -和 γ -HBCD, 其中 β -HBCD 占 Σ HBCD 的 5%~14%, γ -HBCD 占 Σ HBCD 的 10%~49%。可见在动物体内, α -HBCD 是最主要的异构体。其他一些研究也得到了类似的结果^[18, 19]。现有研究均发现 HBCD 在生物类样品和非生物样品中含量特征差异显著, 在生物体内, α -HBCD 则是占据了绝对的比重, 大部分样品中只能检出 α -HBCD, 其次是 γ -HBCD, 而 β -HBCD 极少被检出。原因是 α -HBCD 在生物体内的代谢速度比其他两个异构体要慢, 且生物体内会发生 γ -HBCD 向 α -HBCD 的转化, 导致 α -HBCD 更容易在生物体内富集^[20, 21]。近期研究还发现在生物体内 α -HBCD 排泄速度比 γ -HBCD 慢而且有更强的脂肪蓄积性, 这也是导致生物体内 α -HBCD 比重高的原因^[22]。

表 1 四类动物源性食品中 BDE-209 的检出率和污染水平
Table 1 Detection rate and pollution levels of BDE-209 in four kinds of foods of animal origin

食品类别	检测/检出一份数	中值		均值±SD		含量范围	
		ng/g 脂肪	ng/g 鲜重	ng/g 脂肪	ng/g 鲜重	ng/g 脂肪	ng/g 鲜重
水产品	18/16	5.53	0.21	13.33±14.19	1.33±2.4	ND~40.51	ND~7.36
肉类	17/15	13.17	0.45	20.41±36.67	3.33±4.95	ND~159.17	ND~12.76
奶类	11/8	3.05	0.1	5.46±6.41	0.1±0.13	ND~19.43	ND~0.19
蛋类	4/4	11.31	1.62	13±5.81	1.6±0.69	8.07~21.33	0.75~2.42
总计	50/43	9.44	0.27	14.33±23.85	1.83±3.48	ND~159.17	ND~12.76

ND:未检出

表 2 四类动物源性食品中 Σ HBCD 的检出率和污染水平
Table 2 Detection rate and pollution levels of Σ HBCD in four kinds of foods of animal origin

食品类别	检测/检出份数	中值		均值 \pm SD		含量范围	
		ng/g 脂肪	ng/g 鲜重	ng/g 脂肪	ng/g 鲜重	ng/g 脂肪	ng/g 鲜重
水产品	18/14	5.65	0.3	7.05 \pm 7.15	0.41 \pm 0.4	ND~26.83	ND~1.1
肉类	17/15	2.43	0.18	2.8 \pm 2.63	0.57 \pm 1.09	ND~9.52	ND~4.12
奶类	11/8	1.14	0.04	2.42 \pm 4	0.14 \pm 0.22	ND~14.06	ND~0.47
蛋类	4/3	3.81	0.4	3.68 \pm 3.31	0.45 \pm 0.43	ND~7.12	ND~1.01
总计	50/40	2.45	0.19	4.32 \pm 5.32	0.39 \pm 0.74	ND~26.83	ND~4.12

与国内外文献相比较, 本实验结果高于 2007 年全国总膳食研究样品的检测结果, 该研究测定了 48 份动物性食品混样, 其中 HBCD 含量为 ND~9.2 ng/g 脂肪^[23]。向楠等^[24]测定了南方 12 种鱼类, 在 9 个鱼样中检出了 HBCD, 平均浓度范围在 0.002~0.026 ng/g, 低于本研究结果。Zhu 等^[25]测定了采集自青藏高原河湖中的 79 份鱼类样品, 其中 HBCD 含量为 ND~13.7 ng/g 脂肪(均值 2.12 ng/g 脂肪), 含量虽然比较低, 但说明溴系阻燃剂污染在我国已经普遍存在, 需引起高度关注。目前还未能检索到关于亚洲其他地区食品中 HBCD 含量的报道。在英国的一项总膳食研究中, HBCD 含量在 ND~0.24 ng/g, 也低于本实验的结果^[26]。Goscinnny 等^[27]测定了比利时食物中 HBCD 含量, 样本包括鱼、肉、蛋、奶及面包等其他食品, 含量在 2.4~42 ng/g 脂肪。Tornkvist 等^[28]测定了在瑞典采集的动物性食品样, 仅在鱼肉中检出 HBCD, 含量在 0.11~0.63 ng/g。Covaci 等^[12]测定了 2007 年春天在比利时采集的鸡蛋样本, 含量在 ND~39.3 ng/g 脂肪, 中值和均值分别为 2.85 ng/g 脂肪和 8.52 ng/g 脂肪。在荷兰的鱼和贝类动物体内也检出了 HBCD, 含量在 ND~0.23 ng/g^[19]。Schechter 等^[29]测定了美国的食品混样, 在鱼、肉及某蔬菜样中检出了 HBCD, 含量最高为 0.59 ng/g。与其它研究相比, 本实验结果高于国内外大多数研究结果, 显示北京地区食品中 HBCD 含量较高, 需持续进行 HBCD 污染水平的监控。

3 结 论

本研究通过对 50 份市售动物源性食品中的

BDE-209 和 HBCD 的测定, 结果发现所采集的北京市售动物性食品中普遍可检出 BDE-209 和 HBCD, 与国内外其他研究相比北京市食品中 HBCD 处在较高的污染水平, 而 BDE-209 污染水平较低。研究结果提示本地区食品中存在溴系阻燃剂污染, 需要持续开展溴系阻燃剂污染监测。

参考文献

- [1] Sellstrom U, Bignert A, Kierkegaard A, *et al.* Temporal trend studies on tetra- and pentabrominated diphenyl ethers and hexabromocyclododecane in guillemot egg from the Baltic Sea[J]. *Environ Sci Technol*, 2003, 37(24): 5496-5501.
- [2] Tang Hubert Po-on. Recent development in analysis of persistent organic pollutants under the Stockholm Convention[J]. *Trends Anal Chem*, 2013, 45(0): 48-66.
- [3] 杜红燕, 朱琳, 陈中智, 等. 十溴联苯醚的毒理学效应研究进展[J]. *毒理学杂志*. 2008, (1): 50-52.
Du HY, Zhu L, Chen ZZ, *et al.* Advances of Decabromodiphenyl ether's toxic effects [J]. *Chin J Toxicol*, 2008, 22(1): 50-52.
- [4] 王婧, 施致雄. 溴系阻燃剂六溴环十二烷的毒性研究进展[J]. *毒理学杂志*. 2013, (4): 310-313.
Wang J, Shi ZX. Advances of Hexabromocyclododecane's toxic effects [J]. *Chin J Toxicol*, 2013, 27(4): 82-85.
- [5] 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, (2): 418-422.
Huang FF, Li JG, Zhao YF, *et al.* Decabrominated diphenyl ether in shellfish from coastal areas of China [J]. *Chin J Environ Chem*, 2011, (2): 418-422.
- [6] Luo XJ, Liu J, Luo Y, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in free-range domestic fowl from an e-waste recycling site in South China: levels, profile and human dietary exposure[J].

- Environ Int. 2009, 35(2): 253–258.
- [7] 刘斌, 张立实, 张建涛, 等. 深圳市市售鱼类和禽蛋类食品中多溴联苯醚污染状况分析[J]. 中华预防医学杂志. 2011, 45(12): 1068–1072.
- Liu B, Zhang LS, Zhang JZ, *et al.* Investigation on levels of polybrominated diphenyl ethers in retail fish and egg products in Shenzhen [J]. Chin J Prev Med, 2011, 45(12): 1068–1072.
- [8] Miyake Y, Jiang Q, Yuan W, *et al.* Preliminary health risk assessment for polybrominated diphenyl ethers and polybrominated dibenzo-p-dioxins/furans in seafood from Guangzhou and Zhoushan, China [J]. Mar Pollut Bull, 2008, 57(6-12): 357–364.
- [9] Kakimoto K, Nagayoshi H, Takagi S, *et al.* Inhalation and dietary exposure to Dechlorane Plus and polybrominated diphenyl ethers in Osaka, Japan [J]. Ecotoxicol Environ Saf, 2014, 99: 69–73.
- [10] Knutsen HK, Kvale HE, Thomsen C, *et al.* Dietary exposure to brominated flame retardants correlates with male blood levels in a selected group of Norwegians with a wide range of seafood consumption [J]. Mol Nutr Food Res, 2008, 52(2): 217–227.
- [11] Voorspoels S, Covaci A, Neels H, *et al.* Dietary PBDE intake: a market-basket study in Belgium [J]. Environ Int, 2007, 33(1): 93–97.
- [12] Covaci A, Roosens L, Dirtu AC, *et al.* Brominated flame retardants in Belgian home-produced eggs: levels and contamination sources [J]. Sci Total Environ, 2009, 407(15): 4387–4396.
- [13] Fernandes A, Mortimer D, Gem M, *et al.* Brominated dioxins (PBDD/Fs) and PBDEs in marine shellfish in the UK [J]. Food Addit Contam Part A, 2009, 26(6): 918–927.
- [14] Domingo JL. Polybrominated diphenyl ethers in food and human dietary exposure: a review of the recent scientific literature [J]. Food Chem Toxicol, 2012, 50(2): 238–249.
- [15] Schechter A, Colacino J, Patel K, *et al.* Polybrominated diphenyl ether levels in foodstuffs collected from three locations from the United States [J]. Toxicol Appl Pharmacol, 2010, 243(2): 217–224.
- [16] Shi ZX, Jiao Y, Hu Y, *et al.* Levels of tetrabromobisphenol A, hexabromocyclododecanes and polybrominated diphenyl ethers in human milk from the general population in Beijing, China [J]. Sci Total Environ, 2013, (452-453): 10–18.
- [17] 姜玉起. 溴系阻燃剂的现状及其发展趋势[J]. 阻燃材料与技术. 2007, (2): 1–7.
- Jiang YQ. The status quo and development of brominated flame retardants [J]. Chin J Flame Retard Mater Technol, 2007, (2): 1–7.
- [18] Fernandes A, Dicks P, Mortimer D, *et al.* Brominated and chlorinated dioxins, PCBs and brominated flame retardants in Scottish shellfish: methodology, occurrence and human dietary exposure [J]. Mol Nutr Food Res, 2008, 52(2): 238–249.
- [19] van Leeuwen SP, de Boer J. Brominated flame retardants in fish and shellfish - levels and contribution of fish consumption to dietary exposure of Dutch citizens to HBCD [J]. Mol Nutr Food Res, 2008, 52(2): 194–203.
- [20] Law K, Palace VP, Halldorson T, *et al.* Dietary accumulation of hexabromocyclododecane diastereoisomers in juvenile rainbow trout (*Oncorhynchus mykiss*) I: bioaccumulation parameters and evidence of bioisomerization [J]. Environ Toxicol Chem, 2006, 25(7): 1757–1761.
- [21] Zegers BN, Mets A, Van Bommel R, *et al.* Levels of hexabromocyclododecane in harbor porpoises and common dolphins from western European seas, with evidence for stereoisomer-specific biotransformation by cytochrome p450 [J]. Environ Sci Technol, 2005, 39(7): 2095–2100.
- [22] David TS, Janet JD, Heldur H, *et al.* Toxicokinetics of the Flame Retardant Hexabromocyclododecane Gamma: Effect of Dose, Timing, Route, Repeated Exposure, and Metabolism [J]. Toxicol Sci, 2010, 117(2): 282–293.
- [23] Shi ZX, Wu YN, Li JG, *et al.* Dietary exposure assessment of Chinese adults and nursing infants to tetrabromobisphenol-A and hexabromocyclododecanes: occurrence measurements in foods and human milk [J]. Environ Sci Technol, 2009, 43(12): 4314–4319.
- [24] 向楠, 孟祥周, 段艳平, 等. 中国南方典型鱼类中六溴环十二烷的浓度分布及人体食用暴露风险[C]. 持久性有机污染物论坛 2011 暨第六届持久性有机污染物全国学术研讨会论文集, 北京: 中国化学会, 2011: 307–309.
- Xiang N, Meng XZ, Duan YP, *et al.* Hexabromocyclododecanes (HBCDs) in consumer fish from south China: implication for human exposure [C]. Symposium of the persistent organic pollutants (POPs) forum (2011) and the 6th POPs academic conference of China, Beijing, Chinese Chemical Society, 2011: 307–309.
- [25] Zhu N, Fu J, Gao Y, *et al.* Hexabromocyclododecane in alpine fish from the Tibetan Plateau, China [J]. Environ Pollut, 2013, 181: 7–13.
- [26] Driffield M, Harmer N, Bradley E, *et al.* Determination of brominated flame retardants in food by LC-MS/MS: diastereoisomer-specific hexabromocyclododecane and tetrabromobisphenol A [J]. Food Addit Contam Part A, 2008, 25(7): 895–903.
- [27] Goscinny S, Vandevijvere S, Maleki M, *et al.* Dietary intake of hexabromocyclododecane diastereoisomers (alpha-, beta-, and

gamma-HBCD) in the Belgian adult population [J].
Chemosphere, 2011, 84(3): 279–288.

[28] Tornkvist A, Glynn A, Aune M, *et al.* PCDD/F, PCB, PBDE, HBCD and chlorinated pesticides in a Swedish market basket from 2005—levels and dietary intake estimations [J]. Chemosphere, 2011, 83(2): 193–199.

[29] Schecter A, Haffner D, Colacino J, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and hexabromocyclodecane (HBCD) in composite U.S. food samples [J]. Environ Health Perspect, 2010, 118(3): 357–362.

(责任编辑: 项丽霞)

作者简介



王翼飞, 技师, 主要研究方向为色谱实验技术。

E-mail: wangyifei1986518@163.com



施致雄, 博士, 副教授, 主要研究方向为食品化学污染物与健康。

E-mail: szx0127@ccmu.edu.cn

“食品中过敏原及其检测技术研究”专题征稿

食物过敏是一个世界性公共卫生问题。据流行病学调查结果表明,近年来过敏症的发病率呈逐年上升的趋势,发达国家每年有3%~4%的成年人发生食品过敏,儿童及婴幼儿的发病率为5%。为保护易感者健康,部分国家和地区对食物过敏原的标签标注进行了严格规定,并列入立法范围,因此食物过敏原的检测越来越重要。

鉴于此,本刊编辑部特别策划了“食品中过敏原及其检测技术研究”专题,由天津出入境检验检疫局郑文杰研究员担任专题主编,围绕各种食品过敏原的鉴定及检测、致敏蛋白研究、脱敏方法研究、食物过敏机制、食物过敏原致敏性评估方法、加工过程对食物过敏原的影响、食品过敏原分类及管理等方面展开讨论,计划于2014年4月出版。

本刊编辑部及郑教授欢迎各位专家为本专题撰写稿件,综述、研究论文均可,以期进一步提升该专题的学术质量和影响力。请在3月20日前通过网站或Email投稿。我们将快速处理并优先发表。

投稿方式:

网站: www.chinafoodj.com

Email: jfoodsq@126.com

《食品安全质量检测学报》编辑部