

行政院國家科學委員會專題研究計畫 成果報告

我國多溴二苯醚環境荷爾蒙之公共衛生及管理策略研究--
我國多溴二苯醚環境荷爾蒙之環境流佈及暴露研究(III)
研究成果報告(完整版)

計畫類別：整合型
計畫編號：NSC 98-2621-M-040-001-
執行期間：98年08月01日至99年11月30日
執行單位：中山醫學大學職業安全衛生學系暨碩士班

計畫主持人：毛義方

處理方式：本計畫可公開查詢

中華民國 100 年 01 月 31 日

行政院國家科學委員會專題研究計畫成果報告

我國多溴二苯醚環境賀爾蒙之公共衛生及管理策略研究

我國多溴二苯醚環境賀爾蒙之環境流佈及暴露研究(III)

計畫編號：NSC96-2621-Z-040-003-

執行期限：98年8月1日至99年7月31日

主持人：毛義方 中山醫學大學 職業安全衛生學暨碩士班

共同主持人：

計畫參與人：楊尚淳 國立陽明大學 環境與職業衛生研究所

中文摘要

多溴二苯醚是最常被使用的添加型溴化阻燃劑，其廣泛用於電器及電子產品、家用品等，因於環境中不易降解，其似動物體上的甲狀腺素且具環境賀爾蒙效應，可能會導致身體上不良的危害如干擾體內賀爾蒙作用及對神經行為產生毒性極致癌性，已被廣泛注意。多溴二苯醚經排放或逸散至環境中，會經由生命週期及生物傳遞而蓄積於食物鏈中，一但於人體中累積，將造成人體中之健康影響。

多溴二苯醚的暴露途徑，主要包括攝入、皮膚接觸與空氣吸入。過去研究顯示室內家用品、電器的使用提高了室內空氣中多溴二苯醚的濃度；且因人一天時間之80%於室內活動，故人會經由呼吸吸入到較高的多溴二苯醚劑量。

此研究的目的為針對人於室內環境活動時之空氣中多溴二苯醚之暴露分析及室外環境之暴露。並結合第二年之國人食物攝取研究結果，計算國人之多溴二苯醚之總暴露量。

本研究方法分析空氣中之多溴二苯醚，共分析八種常見的多溴二苯醚同源物，包括 BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183 及 BDE-209，使用主動採樣後將樣本萃取淨化，並以 GC/MS 分析，其物質平均回收率在 BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183 為 77.4%，而在 BDE-209 為

121.6%。儀器之偵測極限於 BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183 及 BDE-209 分別為 0.65 $\mu\text{g/L}$ 、0.819 $\mu\text{g/L}$ 、0.63 $\mu\text{g/L}$ 、0.82 $\mu\text{g/L}$ 、1.24 $\mu\text{g/L}$ 、2.13 $\mu\text{g/L}$ 、0.66 $\mu\text{g/L}$ 及 10 $\mu\text{g/L}$ 。

本研究分析台灣台北地區室內辦公室、電器行、一般住宅及都市區與郊區室外空氣共 46 組樣本；於室內辦公室 ΣPBDEs 濃度範圍為 105.16 至 74079.67 pg/m^3 ，電器行 ΣPBDEs 濃度範圍為 684.28 至 1321.79 pg/m^3 ，一般住宅 ΣPBDEs 濃度範圍為 0.56 至 446.26 pg/m^3 ，室外濃度範圍為 n.d. 至 3260.59；在檢出 BDE-209 之樣本中，BDE-209 為主要的同源物，其在室內工作場所皆檢出。在工作場所之室內多溴二苯醚濃度高於室外濃度；另外多溴二苯醚濃度隨著遠離都市降低。

每日平均暴露劑量中，呼吸之平均每日暴露劑量為 3.1 ng/day ，此劑量占每人每日由呼吸吸入及飲食攝入之暴露劑量之 4.2%。

關鍵詞：多溴二苯醚，室內外空氣濃度

Abstract

Polybrominated diphenyl ethers are a class of additive brominated flame retardant that most most used in electric appliances and household products. It had been concerned about its degradation slowly in environment, similar structure like human thyroid

hormones, and adverse health effect such as endocrine disruptor, neurobehavior effect and carcinogen. PBDEs may leach to environment and contaminate biota by food chain and biocummulate in human.

The exposure pathway of PBDEs include ingestion, skin absorption, and air inhalation. According to period studies, the increase of the use of household products, and electric appliances would elevate the PBDEs concentration in indoor air.

People stayed in indoor environment for 80% of a day time, so people would expose to higher PBDEs concentration. This study analysed eight PBDEs congener in the air. Analytes included BDE-28, BDE-47, BDE-99, BDE-100, BDE-153, BDE-154, BDE-183, and BDE-209.

Active samplers were adopted to attain air samples. Samples were analysed by GC/MS after extraction and clean-up steps.

The average recovery rate for BDE-28, BDE-47, BDE-99, BDE-100, BDE-153, BDE-154, and BDE-183 were 77.4% and 121.6% for BDE-209.

The instrument limit detection for BDE-28, BDE-47, BDE-99, BDE-100, BDE-153, BDE-154, BDE-183, and BDE-209 were 0.65 $\mu\text{g/L}$, 0.82 $\mu\text{g/L}$, 0.63 $\mu\text{g/L}$, 0.82 $\mu\text{g/L}$, 1.24 $\mu\text{g/L}$, 2.13 $\mu\text{g/L}$, 0.66 $\mu\text{g/L}$, and 10 $\mu\text{g/L}$, respectively.

Totally 46 samples were collected from indoor office, electric device store, and normal; home as well as urban and rural outdoor site.

The PBDEs air concentration were range from 105.16 to 74079.67 pg/m^3 for office, 684.28 to 1321.79 pg/m^3 for electric device store, 0.56 to 446.26 pg/m^3 for home, and n.d. to 3260.59 for outdoor.

BDE-209 was found in all indoor workplace. The predominant congener of PBDEs was BDE-209.

The PBDEs concentration of indoor workplace were higher than outdoor.

There is urban-rural degradation of PBDEs air concentration at outdoor. The daily average intake dose by inhalation was 3.1 ng/day that is 4.2% for combination daily average intake dose of inhalation and food ingestion.

Key words: PBDEs, indoor and outdoor, air concentration

壹、前言

多溴二苯醚 (Polybrominated diphenyl ether, PBDEs) 為最常被使用的溴化阻燃劑 (brominated flame retardants, BFRs), 廣泛使用於電器及電子產品、家用產品、塑膠、紡織品及建材物料等。依溴原子數目及於苯環上鍵結位置不同, PBDEs 共有 209 個同源物 (congeners), 其中以五溴 (penta-BDE)、八溴 (octa-BDE) 及十溴 (deca-BDE) 最常被使用。PBDE 於生物體中主要作用器官為肝臟、腎臟、和甲狀腺 (Breslin et al., 1989; Eriksson et al., 1998; Hallgren et al., 1998; Norris et al., 1975; Viberg et al., 2000)。由化學結構是發現, PBDEs 之化學結構與甲狀腺賀爾蒙 T4、T3 相似; Eriksson et al.(1998)之研究發現, PBDEs 會干擾生物體之甲狀腺分泌, 並影響神經發育; 齧齒暴露到 PBDEs 後期血清中 total 和 free 甲狀腺素濃度顯著降低 (Fowles et al., 1994; Zhou et al., 2001; Zhou et al., 2002; Hallgren et al., 2001; Hallgren et al., 2002)。於神經行為方面, 新生小鼠暴露到 PBDEs 後會導致學習和運動方面障礙 (Eriksson et al., 1998; Eriksson et al., 1999; Viberg et al., 2000; Viberg et al., 2001); 小屬於產後 3、10 或 19 天后暴露於劑量 8mg/kg-bw 之 2,2,4,4,5-penta-BDE 會產生學習和記憶力減弱 (Eriksson et al., 1999; Viberg et al., 2000), 且 PBDEs 暴露到 3 天和 10 天後可藉由其自主行為的改變而明

顯發現腦部發展障礙，推測可能因其膽鹼系統(cholinergic system)受到 PBDEs 之影響所致。

由於 PBDEs 具有高親脂性和高物累積效應之特性，且會影響生物體之行為、發育等，因此於 2005 年聯合國環境規劃署依據「斯德哥爾摩公約」之精神便將 PBDEs 列為持久性有機汙染物(Persistent organic pollutants, POPs)之一。歐盟電子及電機設備有害物質限制使用指令(RoHS)規定 2006 年 7 月起禁止使用多溴二苯醚阻燃劑。而我國環保署將五溴和八溴二苯醚列為第一類毒性化學物質，時溴二苯醚列為第四類毒性化學物質，但仍可做阻燃劑和教育研究之使用。

Harrad et al.(2008)針對加拿大、紐西蘭、英國和美國住家室內空氣粉塵中 PBDEs 濃度分析發現，北美地區以 deca-和-BDE 為主，英國則以 deca-BDE 為主，而紐西蘭則以 penta-BDE 為主，並未測得 deca-BDE；美國、加拿大、英國和紐西蘭之 Σ PBDEs 濃度分別為 4800、1400、45000 和 1600ng/g。由 Harrad et al.(2006)針對英國住家、辦公室、車內和公共場所進行室內空氣中 PBDEs 濃度分析發現，平 sigma-BDE 濃度為 273 pg/m³而住家室內粉塵中平均濃度為 215.2 pg/m³，其中以車內濃最高為 709 pg/m³，另針對鄉村與都市之空氣和土壤中 PBDEs 濃度差異研究發現，空氣和土壤中 PBDEs 濃度均隨劇室中心距離越遠而濃度越低，且二者中之 congeners 成分不同，及空氣中 BDE-47 較多而土壤中 BDE-99 濃度較高(Harrad, 2008 and Hunder, 2006)。

由於 PBDEs 常添加於日常生活中的各項塑化材料物品做阻燃劑，而在過去研究指出各種室內家具、電子產品之使用，會提高室內空氣中多溴二苯醚之濃度。隨著室內通風、降解程度不同及各種人的活動對室內多溴二苯醚的濃度皆有影響(Ferro et al, 2004 and Mandalakis, 2008)。另外有許多研

究指出，每人每日之時間分配 80% 以上處於室內環境(Johnson-Restrepo and Kurunthachalam Kannan, 2009)，所以有較高的機會暴露到較高濃度的多溴二苯醚。

國人可能藉由呼吸而暴露，且其對人體具有影響賀爾蒙及健康之作用，對國公共衛生上之影響甚巨，因此，本研究將建立空氣中之 PBDEs 分析方法，並分析其濃度做為我國相關單位管理 PBDEs 之基本資料。

貳、研究目的

本研究目的為針對人於室內環境活動時之空氣中及室外空氣中多溴二苯醚之濃度分析。

參、研究方法

一、研究樣本

本研究選擇台灣台北市地區之室內辦公室、電子賣場、住家及戶外進行空氣採樣，室內辦公室共 13 間，電器行大賣場 3 間，住家 9 間，及戶外樣本共 21 個。在戶外樣本選擇中以台北市為主並以交通量選擇代表地點擇出 urban、suburban 以及 rural。

二、材料

(一) 試劑

1. PBDE congeners of primary interest: BDE-CSM, contained 2,4,4'-tribromodiphenyl ether (BDE-28)、2,2',4,4'-tetrabromodiphenyl ether (BDE-47)、2,2',4,4',5-pentabromodiphenyl ether (BDE-99)、2,2',4,4',6-pentabromodiphenyl ether (BDE-100)、2,2',4,4',5,5'-hexabromodiphenyl ether (BDE-153)、2,2',4,4',5,6'-hexabromodiphenyl ether (BDE-154)

- 2,2',3,4,4',5',6-heptabromodiphenyl ether (BDE-183)、
2,2',3,3',4,4',5,5',6,6'-decabromodiphenyl ether (BDE-209), 20 µg/mL in isooctane, excluded BDE-209 was 200 µg/mL in isooctane AccuStandard, USA。
2. 丙酮(acetone): LC 級, 99%, Merck, Germany
 3. 正己烷(n-hexane): GC 級, 99%, Merck, Germany
 4. 二氯甲烷(dichloromethane): Analyse 級, 99%, Merck, Germany
 5. 甲苯(toluene): LC 級, Merck, Germany
 6. 硫酸(Sulfuric acid): GR 級, 97%, Merck Germany
 7. 矽膠(Silica gel): grade 923, 100-200 mesh, Sigma-Aldrich, USA
 8. 氧化鋁(MN-aluminum oxide, acidic): Brockmann activity 1, 70-230 mesh, Macherey-Nagel GmbH, Germany
 9. 玻璃棉(Glass wool): silane treated, Supelco, USA

(二) 器材

1. 低溫冷凍櫃: -30°C, Sanyo, Japan
2. 二位數電子天平(Electronic balance): SC133, 英展, Taiwan
3. 減壓濃縮裝置(Rotavapor): BUCHI 461, Switzerland
4. 烘箱(Drying oven): DS30, DENG YNG
5. 氮氣(N₂): 純度 99.99%, 勝益氣體有限公司, Taiwan
6. 氮氣濃縮裝置: MGS-2200, 尚偉
7. 超音波震盪槽(Ultrasonic cleaner): 50-60 Hz, Branson, USA
8. 空氣採樣幫浦(Air sampler): Buck Lin Eair TM40, APB-504000
9. 三節式濾紙匣, 苯乙烯: 37mm, 225-3050CF, SKC
10. 玻璃纖維濾紙(Glass Fiber Type A/E): 37mm, 1.0µm nominal, SKC

11. Cellulose Support Pads: 37 mm
12. 六位數微量精密天平: MC5 微量精密天平, Sartorius, USA

(三) 儀器

氣相層析質譜儀(GC/MS): Thermo Fisher Scientific, USA

1. Autosampler: AI-3000, Thermo, USA
2. GC: Trace GC Ultra II, Thermo, USA
3. MS: DSQ, Thermo, USA
4. Software: Xcalibur 2.0.7, Thermo, USA
5. Column: J&W DB-5HT, 5%-phenyl-methyl-polysiloxane capillary column, 15 m×0.25 mm ID×0.1 µm, Agilent, Wilmington, DE, USA
6. 超高氦(He): 純度 99.99%, 勝益氣體有限公司, Taiwan

三、採樣方法

為使能夠在人活動情況下進行採樣且不使噪音打擾到室內人群, 本方法將低流量幫浦放置於不同房間或室外並以 PVC 管連接含有玻璃纖維濾紙之濾紙匣置於室內環境中人活動主要範圍內, 高度為主要活動之呼吸腔高度。採樣幫浦於該室內環境有人活動時才開啟, 採樣流速平均為 22L/min 共三天取得 24 小時之採樣時間。

四、分析方法

(一) 濾紙樣本前處理

參考本研究之第一及第二年研究之方法酌加修改。進行採樣結束之濾紙放置於恆濕箱內調理 24 小時後以六位數精密天平取得粉塵重量, 而後將濾紙切為四片至於萃取瓶中加入 10mL 之正己烷/丙酮/二氯甲烷(4:3:3), 以超音波震盪槽進行 30 分鐘兩次的萃取。將共 20mL 之萃取液體濃縮至約 1mL 後移至 10mL 試管後加入 1mL 濃

硫酸進行酸處理，將上清液移至乾淨室管中，再分次添加兩次之 2mL 正己烷轉移，將 5mL 轉移液以酸性矽膠及酸性氧化鋁淨化，即取 10mL 拋棄式移液管裝填 4g 之酸性矽膠及些許玻璃棉，以 10mL 之正己烷預洗；其串聯 10mL 之拋棄式移液管裝填 6g 之酸性氧化鋁及些許玻璃棉，以 10mL 正己烷預洗。將轉移液移至串聯淨化管並再回溶兩次後，以 15mL 分三次流洗淨化管後，移開上層酸性矽膠管，以 40mL 之二氯甲烷/正己烷(50/50, v/v)沖提，再以減壓濃縮裝置濃縮至約 1mL，移至微量樣本瓶，以氮氣濃縮至乾，再以 45 μ L 甲苯溶出移至尖底內管，即可上機分析。

(二) 氣相層析質譜儀(GC/MS)設定參數

1. Column : J&W DB-5HT capillary column, 15 m \times 0.25 mm ID \times 0.1 μ m
2. Injection volumn : 3 μ L
3. Splitless mode
4. Carrier gas : He 99.999%
5. Carrier gas volumn : 1.0 mL/min
6. Injector : 280 $^{\circ}$ C
7. Ion source : 280 $^{\circ}$ C
8. Transfer line : 310 $^{\circ}$ C
9. Temperature program : started at 120 $^{\circ}$ C , hold for 1min , increased at 25 $^{\circ}$ C/min to 330 $^{\circ}$ C , hold for 10min
10. Ionization : electron impact (EI) mode
11. Selected ion monitoring (SIM) mode : BDE-28 : m/z 406,408、BDE-47 : m/z 484,486、BDE-100, 99 : m/z 564,566、BDE-154, 153 : m/z 642,644、BDE-183 : m/z 721,723、BDE-209 : m/z 797,799,801,957,959

(三) 採樣方法之品保品管

一、濾紙之確認

所有濾紙皆確認其是否有破損及透光，並將濾紙至於恆溫恆濕箱中調理 24 小時以上才進行粉塵重量測定。

二、標準濾紙與樣本濾紙秤重之確認
備製標準濾紙並重複測量 10 次取得其標準差

三、採樣流量之校正

每次採樣前後皆使用一級乾式校正器進行流量校正。

(四) 分析方法的品保品管

一、空白樣本分析

每批實驗樣本中會包含一個空白樣本及採樣之現場空白，避免背景污染。樣本分析之結果均扣除該次之空白樣本，以得實際之濃度值。

二、標準品之備製

備製檢量線 BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183 範圍自 0.5 μ g/L-2000 μ g/L 及 BDE-209 範圍自 5 μ g/L-20000 μ g/L 之標準品，其 r 值皆高於 0.995。

三、添加標準品分析

分別添加 5 μ g/L、50 μ g/L、250 μ g/L 之 PBDEs 標準品溶液 100 μ L 於濾紙上，經相同分析方法後，以此評估濾紙樣本 PBDEs 前處理及測定方法之回收率。

四、精確度

配置 PBDEs 標準溶液以 GC/MS 進行分析，以計算及變異係數 (coefficient of variation, CV)。

五、儀器偵測極限

將檢量線最低點濃度重複進行三次分析，取得平均數及標準差，選擇三倍標準差做其儀器之偵測極限。

(五) 統計分析

使用 SPSS 17.0 進行數據資料之分析。

肆、結果

一、分析方法以及採樣方法之品保品管結果

表一為 PBDEs 分析方法之品保品管。本研究分析空氣中之 PBDEs 濃度，包括 BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183 和 BDE-209。BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183 之檢量線濃度範圍為 0.5–2000 $\mu\text{g/L}$ ，BDE-209 則為 5–20000 $\mu\text{g/L}$ ，相關係數皆在 0.995 以上；而滯留時間分別為 4.80、5.63、6.23、6.39、6.86、7.09、7.74、10.27 分鐘，而 PBDEs 標準品層析圖譜如圖 1 所示。

於濾紙樣本分析時，進行標準添加分析，圖所示，及濾紙樣本添加 PBDEs 標準溶液，其平均回收率為於 BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183 為 77.4%±9.4% 及 BDE-209 為 121.6±46%。儀器之精確度介於 2.7% 至 5.3%。儀器之偵測極限於 BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183 及 BDE-209 分別為 0.65 $\mu\text{g/L}$ 、0.819 $\mu\text{g/L}$ 、0.63 $\mu\text{g/L}$ 、0.82 $\mu\text{g/L}$ 、1.24 $\mu\text{g/L}$ 、2.13 $\mu\text{g/L}$ 、0.66 $\mu\text{g/L}$ 及 10 $\mu\text{g/L}$ 。

二、空氣樣本中 PBDEs 之濃度

本研究採集之空氣樣本為方便選擇台灣一般室內辦公室 13 個樣本、住家 9 個樣本、電器賣場 3 個樣本及戶外 21 個樣本，共計個 46 個樣本，圖二為其中一住家之層析圖譜。

表二及表三為室內空氣中 PBDEs 濃度及檢出率。以平均空氣濃度而言，室內辦公室之空氣平均 ΣPBDEs 濃度範圍為 105.17 至 74079.67 pg/m^3 其顯著高於住家之濃度範圍 0.56 至 446.26 pg/m^3 。另外四個採樣類別地點，其顯著的有差別。最高為辦公室，而後為電器大賣場、戶外，最後為住家。

辦公室中，濃度最高的地點為大型辦公大樓，採樣空間為一大型之辦公室，電腦數量及密度很高並無開窗；在辦公室濃度最低的地點為一住商兩用華廈，其通風方式使用自然配合人工之空調(非中央式)。於住家之空氣樣本，最高濃度的在舊型之公寓的客廳 0.56 pg/m^3 ，該空間只含有一台電視及電冰箱，且使用自然風通；而在最高多溴二苯醚之住家室內濃度之地點為相近之舊式公寓之客廳 446.26 pg/m^3 ，含有電視、冰箱及三台以上之桌上型及筆記型電腦。而在各個環境樣本中，室內空氣中濃度以 BDE-209 為主要 (>78.6%)；室外也為 BDE-209 佔主要部分(排除未檢出為>74.3%)。

表四為空氣中粉塵之 PBDEs 濃度。就粉塵與採樣地點之差別，發現依然是室內辦公室之粉塵中 PBDEs 濃度為最高，其濃度平均為 477.39±909.94 ng/g ，依序為電器大賣場、戶外，最後才是住家。

此趨勢與空氣中四種場所之濃度高低相同。其在粉塵中之辦公室、電子賣場、室外及住家多溴二苯醚濃度分別為 477.39±909.94 ng/g 、51.90±44.48 ng/g 、51.94±95.61 ng/g 及 5.90±10.78 ng/g 。而在同源物比例部分，BDE-209 占各採樣地點平均 97.8%。

空氣中 PBDEs 之個別同源物而言，室內辦公室之八種同源物之檢出率除 BDE-154 外皆高於 69%。於電子賣場中之所有同源物皆檢出。而住家及戶外之同源物之檢出率較室內工作場所低。比較工作場所與住家、戶外之空氣多溴二苯醚濃度結果，室內辦公室與電子產品賣場之濃度相近且明顯高於室外與住家濃度且達到統計上之顯著差異。而住家之室內多溴二苯醚濃度較室外之空氣之平均濃度低。

室外之空氣樣本包含台北市都市密集區及都市區之山區以及台北縣北

海岸之鄉村地區。如表二及表三(續)所示，都市之交通密集區、都市區之山區及台北縣北海岸之鄉村地區濃度分別為 $1104.22 \pm 1263.50 \text{ pg/m}^3$ 、 $365.36 \pm 757.36 \text{ pg/m}^3$ 以及 $79.92 \pm 111.72 \text{ m}^3 \text{ pg/g}$ 。

三、每日吸入量之估算方法

結合本研究分析之空氣 PBDEs 濃度，並綜合國外四篇研究之每日室內外停留時間，主要取得室外之平均停留時間。假設 PBDEs 經由呼吸暴露後完全吸收。將一天時間減去室外及室內辦公室、電器大賣場之工作時間，取得於住家之停留時間。室外每日停留時間佔每日之 15.3%。辦公室選取八小時為 35.4%，其住家停留時間為 49.3%。而在電器大賣場之工作時間為 12 小時，則其住家停留時間為 32.7%。

辦公室工作之每日暴露劑量之中位數推估為 2080.45 pg/day ；電器大賣場工作之每日暴露劑量中位數推估為 $4.150.41 \text{ pg/day}$ 。

四、整合食物攝取及每日吸入之 PBDEs 總暴露量

結合本研究第二年之國人經食物攝取 PBDEs 之研究結果，其由兩種問卷推估，分別為 368.295 ng/day 之國民營養調查結果推估及 71.803 ng/day 之國家科學委員會計畫問卷推估。

使用國民營養調查之結果於辦公室工作之每日暴露為 370.38 ng/day ，電器大賣場為 372.45 ng/day ；依國家科學委員會問卷調查之結果於辦公室為 73.88 ng/day ；於電器大賣場為 75.95 ng/day 。

伍、討論

一、分析方法之品保品管

本研究空氣樣本分析方法為參考本研究第一二年計畫之食物樣本方法

並酌加修改。本研究使用超音波震盪槽進行兩次的震盪萃取，大幅縮短過去使用索式萃取方法所耗費之過長時間。於 8 種 PBDEs 同源物之回收率平均為 $82.9 \pm 14.1\%$ 。另以 GC/MS 取代昂貴之 HRGC/HRMS 進行分析，可節省分析成本，適合進行空氣樣本分析。

二、空氣樣本中 PBDEs 濃度

本研究針對四種室內場所及戶外場所進行分析發現，室內之平均 PBDEs 濃度以無母數分析顯示，工作場所之濃度高於戶外及住家，可能因為辦公室現今皆以電子化作業或是使用傢俱之密度甚大，此類物品所添加之多溴二苯醚阻燃劑可能較大量。另外通風類型對其室內濃度也有影響。而電子賣場許多電器用品並未開啟使用且有固定清掃方式及產品較新而沒有添加多溴二苯醚。在住家方面方便選擇採樣點並記錄其室內裝潢及電子產品使用量以及地板表面積。而在辦公室最高濃度之高密度電子產品及住家之低密度電子產品及通風影響可看出對室內環境濃度之影響。

在空氣中多溴二苯醚之濃度與懸浮微粒粉塵之多溴二苯醚濃度，皆以 BDE-209 為主要之同源物，且其濃度分布都相似為辦公室、電子賣場、戶外、住家。雖然之間沒有達到統計上的顯著關係，但可以推論空氣中濃度與粉塵間的關係以利進一步推論對環境中空氣清淨機之使用之建議。

本研究採集台北市區室外空氣樣本進行分析，進行以交通流量不同之地點進行採樣，取得一都市鄉村之空氣中多溴二苯醚下降趨勢，遠離都會密集區之濃度隨著遠離都市而下降如表二所示 ($1104.2-365.36-79.92 \text{ pg/m}^3$)。

於本研究中，所採集為空氣中之粉塵，並未採集小於 $1.0 \mu\text{m}$ 之極細微

粒粉塵及氣狀之 PBDEs。再與相似研究 Mandalakis et al.,(2009)比較中，本研究之室外之空氣濃度大多低於此研究。而在室內空氣之比較中，國內鮮少有相似之研究。

三、整合食物攝取及每日吸入之 PBDEs 總暴露量

於空氣吸入之暴露推估，本研究推估每日暴露與 Toms et al.,(2009)於澳洲之研究每日空氣暴露劑量值為 1.5ng/day 相比，本研究之每日空氣暴露劑量為 3.11 ng/day 略高於此研究。另外與 Johnson-Restrepo et al.,(2009)相比，取此研究之成人空氣暴露量推回其每日平均暴露劑量值約為 9.1ng/day，本研究低於此研究。

於推估每日由空氣吸入之暴露劑量，所使用估計值中，每日每地點停留時間使用為國外多研究之平均值取得室外之停留時間，而後取得室內辦公室及電器大賣場之平均上班時間，最後得到住家之停留時間。推估之每日吸入暴露量由中位數做推估，配合不同問卷之營養調查。結合國民營養調查中，吸入之每日暴露於兩種場所皆低於 1%；結合國家科學委員會之飲食研究調查中，空氣吸入站約 3%。另外，如使用平均之空氣中 PBDEs 濃度及國科會之飲食問卷，吸入暴露可佔總暴露量之 21%，而於國外研究中大多使用中位數做暴露推估。與 Johnson-Restrepo et al.,(2009)之研究相比，此研究之食物攝取與空氣吸入 PBDEs 暴露中，空氣吸入約佔 11%，比本研究高。但其為綜合 15 種同源物之氣、粒狀 PBDEs。

本研究之採樣分析方法取得人於室內活動時環境之空氣粒狀粉塵樣本進行分析，取得其空氣平均濃度。雖可能因缺少氣狀物質低估濃度，但本研究之結果足夠推論室內之物質濃度製人體暴露，以利後續法規或相關研究之利用。

六、結論

本研究建立一套空氣中 PBDEs 之分析方法，共分析 8 種主要之同源物，包括 BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183 包括 BDE-209。

本研究方便選擇台北地區之辦公室及住家和電器賣場中發現，室內工作場所空氣中 PBDEs 濃度高於室外且達到統計上之顯著。而其中同源物比較中，BDE-209 佔大部分，室內辦公室空氣中濃度，與室內使用電腦之數量有關。在本研究中最高濃度之空氣樣本為一電腦數量密集之辦公室，其濃度為 74079.68 pg/m³。而呼吸暴露貢獻之每日暴露量，約佔 3%。但隨著市內電器使用數量越高、電器使用年份越長，可能造成室內 PBDEs 濃度上升，使呼吸暴露到的 PBDEs 劑量明顯上升。

柒、參考文獻

- Allen, J., M. McClean, et al. (2007). "Personal exposure to polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in residential indoor air." Environ. Sci. Technol **41**(13): 4574-4579.
- Breslin, W., H. Kirk, et al. (1989). "Teratogenic evaluation of a polybromodiphenyl oxide mixture in New Zealand White rabbits following oral exposure." Fundamental and Applied Toxicology **12**(1): 151-157.
- Eriksson, P., P. Jakobsson, et al. (1998). "Developmental neurotoxicity of brominated flame-retardants, polybrominated diphenyl ethers and

- tetrabrom-bis-phenol A." Organohalogen Compounds **35**: 375-378.
- Eriksson, P., H. Viberg, et al. (2002). "A brominated flame retardant, 2, 2, 4, 4, 5-pentabromodiphenyl ether: uptake, retention, and induction of neurobehavioral alterations in mice during a critical phase of neonatal brain development." Toxicological Sciences **67**(1): 98.
- Ferro, A., R. Kopperud, et al. (2004). "Elevated personal exposure to particulate matter from human activities in a residence." Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology **14**: S34-S40.
- Fowles, J., A. Fairbrother, et al. (1994). "Immunologic and endocrine effects of the flame-retardant pentabromodiphenyl ether (DE-71) in C57BL/6J mice." Toxicology **86**(1-2): 49-61.
- Hallgren, S. and P. Darnerud (1998). "Effects of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs), polychlorinated biphenyls (PCBs) and chlorinated paraffins (CPs) on thyroid hormone levels and enzyme activities in rats." Organohalogen Compounds **35**: 391-394.
- Hallgren, S. and P. Darnerud (2002). "Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs), polychlorinated biphenyls (PCBs) and chlorinated paraffins (CPs) in rats--testing interactions and mechanisms for thyroid hormone effects." Toxicology **177**(2-3): 227-243.
- Harrad, S. and S. Hunter (2006). "Concentrations of Polybrominated Diphenyl Ethers in Air and Soil on a Rural- Urban Transect Across a Major UK Conurbation." Environ. Sci. Technol **40**(15): 4548-4553.
- Harrad, S., C. Ibarra, et al. (2008). "Polybrominated diphenyl ethers in domestic indoor dust from Canada, New Zealand, United Kingdom and United States." Environment International **34**(2): 232-238.
- Harrad, S., R. Wijesekera, et al. (2004). "Preliminary assessment of UK human dietary and inhalation exposure to polybrominated diphenyl ethers." Environ. Sci. Technol **38**(8): 2345-2350.
- Johnson-Restrepo, B. and K. Kannan (2009). "An assessment of sources and pathways of human exposure to polybrominated diphenyl ethers in the United States." Chemosphere **76**(4): 542-548.
- Mandalakis, M., V. Atsarou, et al. (2008). "Airborne PBDEs in specialized occupational settings, houses and outdoor urban areas in Greece." Environmental Pollution **155**(2): 375-382.
- Mandalakis, M., A. Basis, et al. (2009). "Particle-size distribution and gas/particle partitioning of atmospheric polybrominated diphenyl ethers in urban areas of Greece." Environmental Pollution

- 157**(4): 1227-1233.
- Norris, J., R. Kociba, et al. (1975).
"Toxicology of octabromobiphenyl
and decabromodiphenyl oxide."
Environmental Health Perspectives
11: 153.
- Toms, L., M. Bartkow, et al. (2009).
"Assessment of polybrominated
diphenyl ethers (PBDEs) in
samples collected from indoor
environments in South East
Queensland, Australia."
Chemosphere **76**(2): 173-178.
- Viberg, H., A. Fredriksson, et al. (2001).
"Brominated flame-retardant:
uptake, retention and
developmental neurotoxic effects of
decabromo-diphenyl ether
(PBDE209) in the neonatal mouse."
Toxicologist **61**: 1034.
- Zhou, T., D. Ross, et al. (2001). "Effects
of short-term in vivo exposure to
polybrominated diphenyl ethers on
thyroid hormones and hepatic
enzyme activities in weanling rats."
Toxicological Sciences **61**(1): 76.
- Zhou, T., M. Taylor, et al. (2002).
"Developmental exposure to
brominated diphenyl ethers results
in thyroid hormone disruption."
Toxicological Sciences **66**(1): 105.
- 楊凱淇，2010，國人食物中多溴二苯
醚濃度與暴露之研究，國立陽明
大學環境與職業衛生研究所，碩
士論文。

表一、PBDEs 分析方法之品保品管

Unit:pg/m³

	BDE-28	BDE-47	BDE-99	BDE-100	BDE-153	BDE-154	BDE-183	BDE-209
Calibration standard								
Retention time (mins)	4.80	5.63	6.23	6.39	6.86	7.09	7.74	10.27
Calibration curve range ^a	0.5-2000	0.5-2000	0.5-2000	0.5-2000	0.5-2000	0.5-2000	0.5-2000	5-200000
Recovery(%)	82.4±10.9%	67.7±12.0%	79.9±8.0%	75.3±6.8%	70.9±6.3%	75.1±9.3%	90.4±12.4%	121.6±46.9%
r	0.999	0.996	0.999	0.999	0.999	0.999	0.999	0.995
CV(%) ^b	2.9%	4.3%	3.5%	2.7%	2.7%	5.1%	3.6%	5.3%
IDL ^a	0.65	0.819	0.63	0.82	1.24	2.13	0.66	10

^a ng/mL ; ^b for instrument

表二、空氣濾紙樣本中PBDEs之濃度

Unit:pg/m³

		ΣPBDEs	BDE-28	BDE-47	BDE-99	BDE-100	BDE-153	BDE-154	BDE-183	BDE-209
	n	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd
Offices	13	9496.31±20806.86	0.14±0.11	1.36±0.91	0.69±0.75	3.01±5.35	0.59±0.78	1.12±1.04	3.19±2.91	9485.74±20805.72
Home	9	128.05±168.24	0.04±0.06	1.18±2.46	1.33±2.62	8.82±17.0	1.18±2.40	1.50±2.63	4.25±8.35	109.71±157.54
Electronic device stores	3	974.38±322.60	0.39±0.07	2.76±1.93	0.64±0.42	5.10±3.32	1.15±0.74	4.15±2.72	6.66±4.08	953.52±322.22
outdoor	21	565.28±928.45	0.02±0.03	0.23±0.26	0.07±0.09	0.48±0.51	0.12±0.27	0.13±0.29	0.49±0.74	563.45±928.58
urban	8	1104.22±1263.50	0.02±0.03	0.38±0.35	0.12±0.10	0.77±0.71	n.d.	n.d.	0.39±0.43	1102.29±1263.65
suburban	7	365.36±575.36	0.03±0.03	0.09±0.08	0.07±0.09	0.18±0.13	0.05±0.12	0.08±0.20	0.13±0.22	364.66±575.37
Rural	6	79.92±111.72	0.02±0.02	0.18±0.15	n.d.	0.44±0.19	0.37±0.41	0.38±0.42	1.06±1.13	76.92±110.78

表三、空氣樣本之濃度範圍及檢出率

Unit:pg/m³

		ΣPBDEs	BDE-28	BDE-47	BDE-99	BDE-100	BDE-153	BDE-154	BDE-183	BDE-209
	n		Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd
Offices (Median)	13	613.36	0.10	0.99	0.48	1.41	0.47	0.76	2.19	602.12
Detection rate			76.92%	100%	69.23%	100%	92.31%	30.77%	100%	100%
Range		105.17~74079.67	0.05~0.44	0.24~2.84	0.16~3.05	0.50~20.58	n.a.~2.79	n.a.~3.27	0.83~11.12	232.466~32225.1

Home (Median)	9	11.82	0.01	0.07	0.03	0.48	0	0	0.83	10.05
Detection rate			55.56%	55.56%	44.44%	55.56%	100%	22.2%	88.89%	55.56
Range		0.56~446.26	n.a.~0.16	n.a.~7.2	n.a.~6.87	n.a.~39.90	n.a.~6.36	n.a.~6.23	0.06~25.94	n.a.~445.43

Electronic device stores (Median)	3	917.07	0.35	1.69	0.58	3.21	0.99	3.08	6.12	881.51
Detection rate			100%	100%	100%	100%	100%	100%	100%	100%
Range		684.28~1321.79	1.60~0.48	1.60~4.98	0.26~1.09	3.17~8.94	0.50~1.97	2.13~7.24	2.88~10.99	673.39~1305.65

表三(續)、空氣樣本之濃度範圍及檢出率

Unit:pg/m³

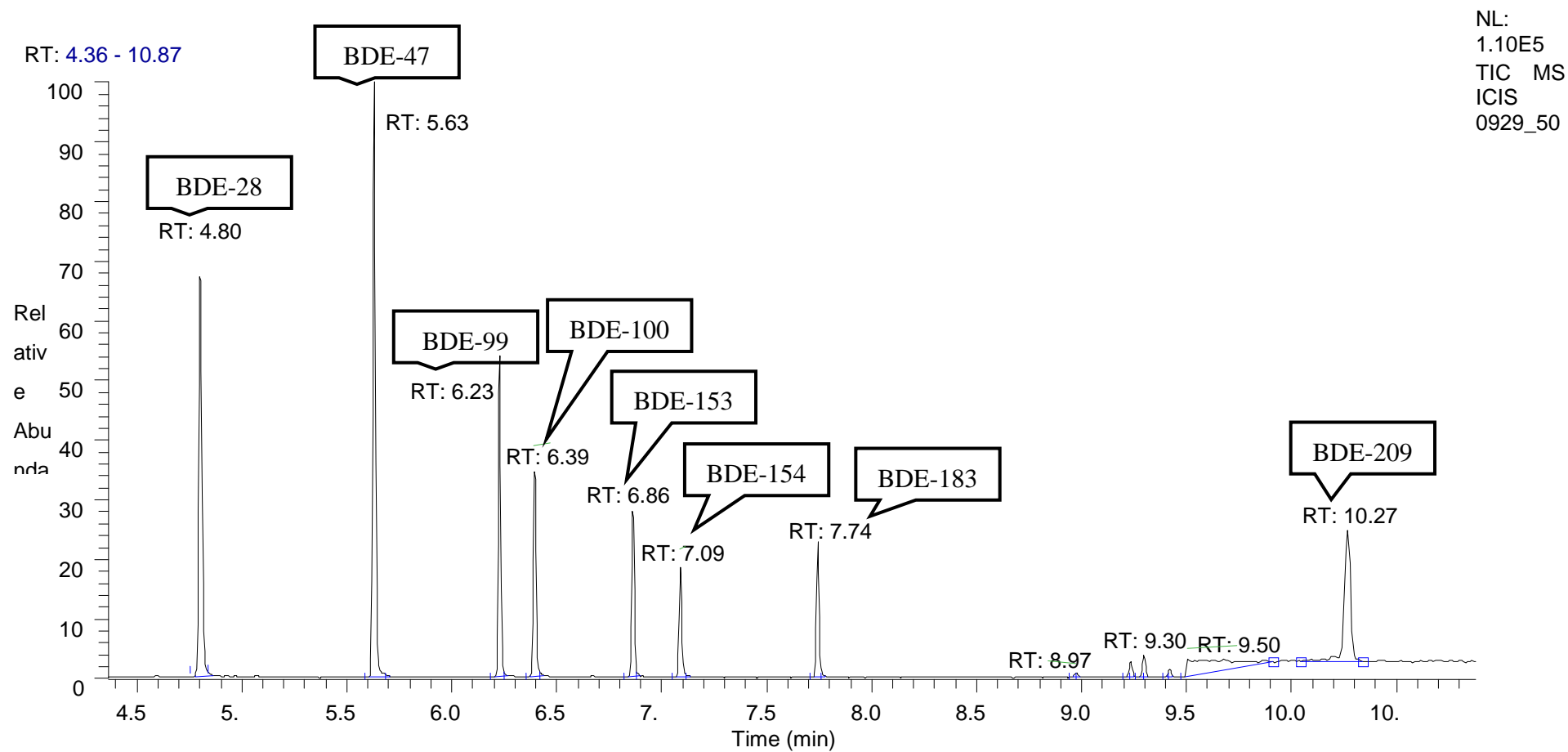
		ΣPBDEs	BDE-28	BDE-47	BDE-99	BDE-100	BDE-153	BDE-154	BDE-183	BDE-209
	n		Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd
outdoor (Median)	21	115.76	0.003	0.15	0.28	0	0	0	0.08	114.87
Detection rate			57.14%	85.71%	0%	42.86%	71.43%	0%	47.62%	76.19%
Range		n.a.~3260.59	n.a.~0.07	n.a.~0.86	n.a.~0.20	n.a.~1.99	n.a.~0.79	n.a.0.76	n.a.~2.13	n.a.~3258.35
Urban (Median)	8	438.610.02	0.004	0.21	0.19	0.35	0	0	0.25	435.73
Detection rate			62.5%	87.5%	0%	75.00%	100%	0%	62.5%	78.5%
Range		0.66~3260.59	n.a.~0.06	n.a.~0.86	n.a.~0.20	0.25~2.0	n.a.	n.a.	0.07~1.26	n.a.~3258.35
Suburban (Median)	7	102.20	0	0.08	0	0.23	0	0	0.07	100.38
Detection rate			42.86%	71.43%	0%	0%	75.14%	0%	14.29%	71.43%
Range		n.a.~1513.60	n.a.~0.07	n.a.~0.24	n.a.~0.18	n.a.~0.28	n.a.~0.33	n.a.~0.54	n.a.~0.62	n.a.~1512.77
Rural (Median)	6	36.71	0.02	0.20	0	0.41	0.34	0.38	1.07	32.66
Detection rate			66.67%	100%	0%	50.0%	50.0%	0%	66.67%	66.67%
Range		0.48~288.46	n.a.~0.06	0.01~0.42	n.a.	0.28~0.70	n.a.~0.79	n.a.~0.76	n.a.~2.13	n.d.~283.20

表四、空氣粉塵上 PBDEs 濃度

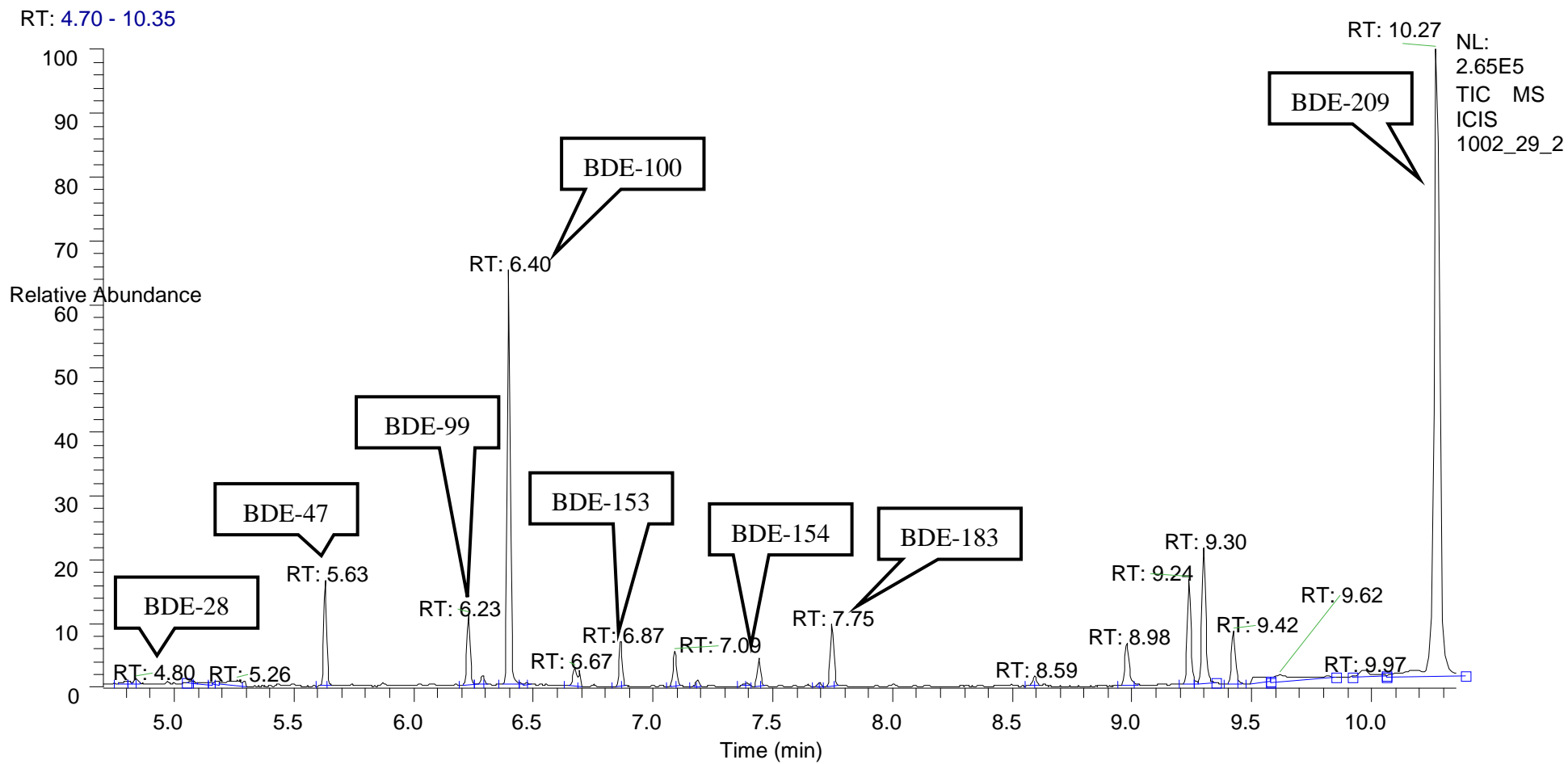
Unit:pg/mg

		ΣPBDEs	BDE-28	BDE-47	BDE-99	BDE-100	BDE-153	BDE-154	BDE-183	BDE-209
	n	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd	Mean±sd
Offices	13	477392.07±909944.63	8.26±9.34	70.51±50.02	41.63±34.28	147.29±229.28	33.88±39.06	72.62±57.57	178.69±153.92	476839.2±909899.3
Electronic device stores	3	51897.39±44679.589	23.78±24.36	123.66±100.63	24.54±12.04	238.09±203.30	45.59±25.54	176.00±122.73	263.92±142.57	51001.8±44091.7
Home	9	5904.47±10776.42	0.99±1.48	29.44±56.76	33.74±63.73	227.92±434.39	30.45±63.83	41.67±66.39	113.85±184.97	5426.4±10806.8
outdoor	21	51839.69±95607.08	4.04±11.78	25.35±31.83	20.59±52.99	52.27±66.90	26.17±70.97	50.69±126.68	61.06±80.38	51599.51±95598.45
urban	8	94668.86±141580.12	1.22±3.11	39.34±42.34	19.42±24.17	88.83±92.25	n.a.	n.a.	44.23±20.88	94475.83±141603.8
Suburban	7	40369.67±49208.32	9.27±19.92	15.53±23.08	39.58±88.50	17.85±33.27	44.03±116.49	75.25±199.09	34.80±57.97	40133.66±49002.45
rural	6	8115.46±13450.68	1.69±2.89	18.16±19.83	n.a.	43.70±27.87	40.24±45.67	89.63±99.23	114.15±128.07	7807.90±13258.56

圖一、PBDEs 標準品之層析圖譜



圖二、住家空氣樣本中 PBDEs 之層析圖譜



國科會補助計畫衍生研發成果推廣資料表

日期:2011/01/31

國科會補助計畫	計畫名稱: 我國多溴二苯醚環境荷爾蒙之環境流佈及暴露研究(III)
	計畫主持人: 毛義方
	計畫編號: 98-2621-M-040-001- 學門領域: 永續發展研究-工程技術
無研發成果推廣資料	

98 年度專題研究計畫研究成果彙整表

計畫主持人：毛義方		計畫編號：98-2621-M-040-001-					
計畫名稱：我國多溴二苯醚環境荷爾蒙之公共衛生及管理策略研究--我國多溴二苯醚環境荷爾蒙之環境流佈及暴露研究(III)							
成果項目		量化			單位	備註（質化說明：如數個計畫共同成果、成果列為該期刊之封面故事...等）	
		實際已達成數（被接受或已發表）	預期總達成數(含實際已達成數)	本計畫實際貢獻百分比			
國內	論文著作	期刊論文	0	0	100%	篇	
		研究報告/技術報告	0	0	100%		
		研討會論文	0	0	100%		
		專書	0	0	100%		
	專利	申請中件數	0	0	100%	件	
		已獲得件數	0	0	100%		
	技術移轉	件數	0	0	100%	件	
		權利金	0	0	100%	千元	
	參與計畫人力 (本國籍)	碩士生	0	0	100%	人次	
		博士生	0	0	100%		
		博士後研究員	0	0	100%		
		專任助理	0	0	100%		
國外	論文著作	期刊論文	0	0	100%	篇	
		研究報告/技術報告	0	0	100%		
		研討會論文	0	0	100%		
		專書	0	0	100%		章/本
	專利	申請中件數	0	0	100%	件	
		已獲得件數	0	0	100%		
	技術移轉	件數	0	0	100%	件	
		權利金	0	0	100%	千元	
	參與計畫人力 (外國籍)	碩士生	0	0	100%	人次	
		博士生	0	0	100%		
		博士後研究員	0	0	100%		
		專任助理	0	0	100%		

<p>其他成果 (無法以量化表達之成果如辦理學術活動、獲得獎項、重要國際合作、研究成果國際影響力及其他協助產業技術發展之具體效益事項等，請以文字敘述填列。)</p>	<p>完成我國多溴二苯醚在國人各種食物中的含量，並由常用食物的含量及國民食物營養調查結果計算出國人每日食物攝取量；另經由室內外各種不同場所之空氣採樣，測量出家庭、辦公室、大賣場、屋外之空氣濃度，進而測量出國人每日平均空氣 PBDEs 攝取量，完成我國人每日 PBDEs 之攝取量。並可進行國際比較，作為我國環保署及衛生署管制 PBDEs 環境荷爾蒙對國民危害之重要參考資料。</p>
--	---

	成果項目	量化	名稱或內容性質簡述
科教處計畫加填項目	測驗工具(含質性與量性)	0	
	課程/模組	0	
	電腦及網路系統或工具	0	
	教材	0	
	舉辦之活動/競賽	0	
	研討會/工作坊	0	
	電子報、網站	0	
	計畫成果推廣之參與(閱聽)人數	0	

國科會補助專題研究計畫成果報告自評表

請就研究內容與原計畫相符程度、達成預期目標情況、研究成果之學術或應用價值（簡要敘述成果所代表之意義、價值、影響或進一步發展之可能性）、是否適合在學術期刊發表或申請專利、主要發現或其他有關價值等，作一綜合評估。

1. 請就研究內容與原計畫相符程度、達成預期目標情況作一綜合評估

達成目標

未達成目標（請說明，以 100 字為限）

實驗失敗

因故實驗中斷

其他原因

說明：

2. 研究成果在學術期刊發表或申請專利等情形：

論文： 已發表 未發表之文稿 撰寫中 無

專利： 已獲得 申請中 無

技轉： 已技轉 洽談中 無

其他：（以 100 字為限）

3. 請依學術成就、技術創新、社會影響等方面，評估研究成果之學術或應用價值（簡要敘述成果所代表之意義、價值、影響或進一步發展之可能性）（以 500 字為限）