

环境介质中多溴联苯醚微生物降解影响因素及强化手段研究进展

黎媛萍¹, 贾舜尧¹, 邹斌², 陈耀宁^{*2}, 周天运¹, 刘政伟¹, 吴彦廷¹

1 湖南城市学院 市政与测绘工程学院, 湖南 益阳 413000

2 湖南大学 环境科学与工程学院 环境生物与控制教育部重点实验室, 湖南 长沙 410082

黎媛萍, 贾舜尧, 邹斌, 陈耀宁, 周天运, 刘政伟, 吴彦廷. 环境介质中多溴联苯醚微生物降解影响因素及强化手段研究进展[J]. 微生物学通报, 2024, 51(9): 3327-3347.

LI Yuanping, JIA Shun Yao, ZOU Bin, CHEN Yaoning, ZHOU Tianyun, LIU Zhengwei, WU Yanting. Research progress in influencing factors and intensifying approaches of microbial degradation of polybrominated diphenyl ethers in environmental media[J]. Microbiology China, 2024, 51(9): 3327-3347.

摘要: 多溴联苯醚是常用的阻燃剂, 在全球环境中广泛分布且难以降解, 因此严重危害生态环境。由于其潜在的毒性、耐久性和生物累积性, 如何高效降解多溴联苯醚备受关注, 其中, 微生物降解法因其成本低、效果好和二次污染小, 成为当前研究热点。本文介绍了水体、大气和土壤等多介质中多溴联苯醚的污染现状及毒性, 重点阐述了微生物降解过程的主要影响因素、厌氧和好氧降解方式的不同途径、多种强化手段及作用机制, 并对新材料和密度泛函理论等新兴研究方法在多溴联苯醚微生物原位降解中的应用提出了展望, 为多溴联苯醚污染治理提供了理论依据和技术支持。

关键词: 环境介质; 多溴联苯醚; 微生物降解; 强化; 作用机制

资助项目: 国家自然科学基金(51979104); 湖南省自然科学基金(2020JJ5019); 国家级大学生创新创业训练计划(S202311527019); 湖南省村镇饮用水水质安全保障工程技术中心项目(2019TP2079)

This work was supported by the National Natural Science Foundation of China (51979104), the Natural Science Foundation of Hunan Province (2020JJ5019), the National College Student Innovation and Entrepreneurship Training Program (S202311527019), and the Rural Drinking Water Quality Safety Assurance Engineering Technology Center Project of Hunan Province (2019TP2079).

*Corresponding author. E-mail: cyn@hnu.edu.cn

Received: 2024-01-04; Accepted: 2024-03-27; Published online: 2024-04-24

Research progress in influencing factors and intensifying approaches of microbial degradation of polybrominated diphenyl ethers in environmental media

LI Yuanping¹, JIA Shun Yao¹, ZOU Bin², CHEN Yaoning^{*2}, ZHOU Tianyun¹,
LIU Zhengwei¹, WU Yanting¹

1 School of Municipal and Geomatics Engineering, Hunan City University, Yiyang 413000, Hunan, China

2 Key Laboratory of Environmental Biology and Pollution Control, Ministry of Education, College of Environmental Science and Engineering, Hunan University, Changsha 410082, Hunan, China

Abstract: Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) are frequently used flame retardants. They are widely distributed in the global environment and difficult to be degraded, causing serious harm to the environment. Due to their potential toxicity, durability, and bioaccumulation, more and more attention has been paid to degrading PBDEs with high efficiency. The microbial degradation method has become a research hotspot because of the low cost, high efficiency, and low secondary pollution. This paper first introduces the pollution status of PBDEs in water, atmosphere, and soil and the toxicity of PBDEs to biological health. Then, it elaborates on the key factors influencing microbial degradation, the different pathways of anaerobic and aerobic degradation, and the intensifying approaches and mechanism of degradation. Finally, we prospect the application of new materials, density functional theory, and new research methods in the *in-situ* degradation of PBDEs, aiming to provide a theoretical foundation and technical support for treating the pollution of PBDEs.

Keywords: environmental media; polybrominated diphenyl ethers; microbial degradation; intensifying; mechanism

多溴联苯醚(polybrominated diphenyl ethers, PBDEs)是一种多溴代的芳香性化合物,根据其溴代数和在苯环上位置分布的不同,理论上具有 209 种同系物,其化学结构式如图 1 所示^[1]。PBDEs 具有良好的阻燃性能且经济性较好,因此作为溴化阻燃剂被广泛应用于电子产业、建筑材料和纺织物等领域;但是由于其自身在全球环境中广泛分布且难以降解,因此造成的环境污染日益严重;同时 PBDEs 具有强毒性和生物蓄积性,在生物体内经常可以检测到残留的 PBDEs^[2]。因此,如何有效降解 PBDEs 成为近年来众多学者关注的热点。目前已有的 PBDEs

降解研究主要为微生物降解法、光催化脱溴法、纳米零价金属脱溴法和芬顿(Fenton)高级氧化法等^[3-6]。其中,微生物降解法因其成本经济、效果显著和二次污染小而备受青睐^[7]。尽管在 2009 年《斯德哥尔摩公约》中已经将 PBDEs 在全球范围内予以禁止^[8],但近年来人们仍在水体、大气和土壤等介质中检测到 PBDEs^[3,9-10]。本文按照赋存的介质对目前 PBDEs 污染状况和毒性进行了阐述,并对近年来国内外备受青睐的微生物降解法、影响因素和强化手段进行了梳理,以期为 PBDEs 的降解研究提供理论依据和实践参考。

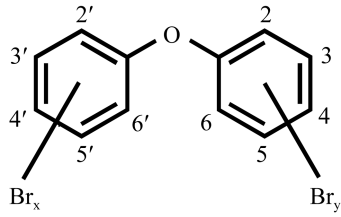


图 1 多溴联苯醚(PBDEs)的化学结构式

Figure 1 Chemical structure formula of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs).

1 多溴联苯醚在多介质中的污染现状及毒性

近年来,我国已成为亚洲阻燃剂消耗较多的国家,其中电子领域使用阻燃剂量涨幅较大,多溴联苯醚(PBDEs)也不断被投放到环境中,其

主要原因在于PBDEs与高分子材料之间无共价键连接,致使PBDEs容易在电子产品的生产、投入使用和废物回收处理等过程中进入环境之中而造成环境污染;研究表明,在水体、大气和土壤这3种介质中,PBDEs的含量均有增长的趋势^[7]。由于低蒸汽压、持久性和易迁移等特性,水体(含上覆水与沉积物)、大气与土壤是PBDEs发生迁移转化归趋行为的主要环境介质,如图2所示^[11-12]。此外,在北极和南极地区均检测到PBDEs,表明PBDEs还具有长距离迁移的能力^[13-15]。

1.1 PBDEs 在环境介质中的污染现状

1.1.1 PBDEs 在水体中的污染现状

水体是一种覆盖面积积极广的环境介质,极易受到人类活动和自然气候的影响,并且由于水

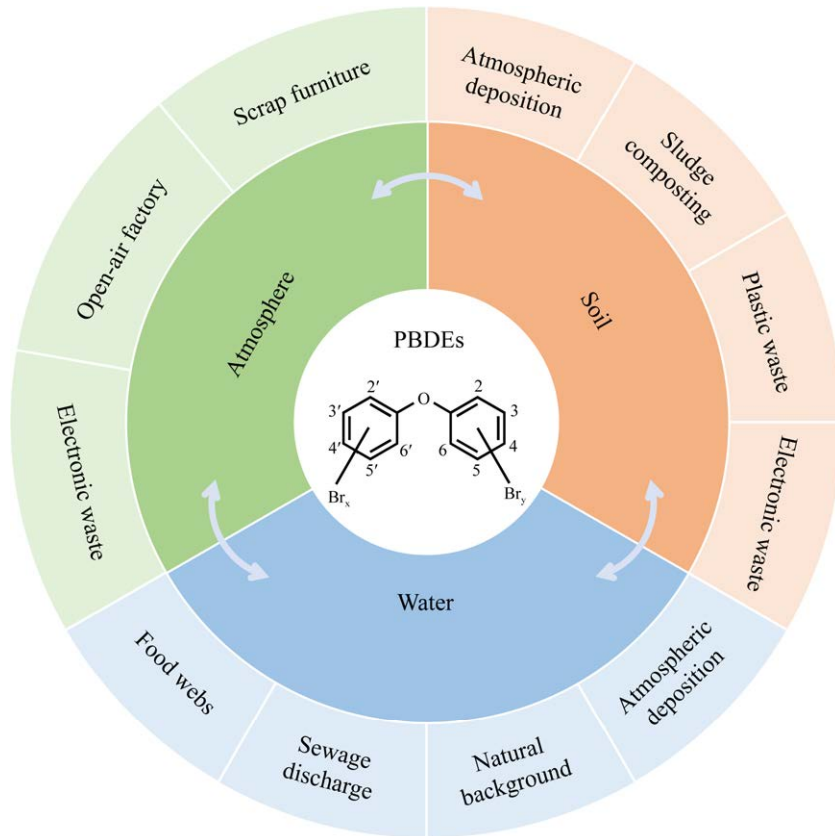


图 2 多溴联苯醚污染多介质现状图

Figure 2 Status of polybrominated diphenyl ethers contaminating multiple media.

体自身极高的流动性,使其成为许多污染物留存进而传播的地方,也是 PBDEs 污染的主要区域及传播介质^[16]。水体中 PBDEs 的来源有污水排放、大气沉降、食物网和天然背景值等^[17-18]。2015 年, Deng 等^[19]在中国香港的工业污水处理厂中检测到 PBDEs 存在,其中以 BDE-47 和 BDE-209 为主,其浓度范围分别为 0.11–149.00 ng/g 和 14–167 ng/g,如果处理不当或不达标排放将使收纳水体受到 PBDEs 污染。2020 年,韩文亮等^[20]发现闽南地区的泉州入库河流沉积物中 Σ PBDEs 的中值含量(1 072.1 ng/g)是山美水库(160.4 ng/g)的 6.7 倍,其根本原因是入库河流长时间收纳污水,水体受到 PBDEs 污染且短时间内无法自净,后通过水体之间相互流通传播至水库内。PBDEs 挥发性较强,极易进入大气介质中,基于其强持久性通过大气完成远距离迁移,最后经干湿沉降进入水体中,并有从水中向下层沉积物迁移的总体趋势,该途径使得 PBDEs 污染传播速度更快,传播区域更广^[9]。此外,船只航行和江河海洋中的垃圾等也会使水体受到 PBDEs 污染。Gu 等^[21]发现相较于其他未采用泡沫浮标的海域(海水中未检出 PBDEs),浮标等泡沫产品的使用提高了水体中 PBDEs 含量,PBDEs 浓度为 0.74 ng/L。除外部输入外,水体中也有天然 PBDEs 的存在,Agarwal 等^[22]研究发现海洋中部分海绵-蓝藻共生体具有 PBDEs 生物合成基因簇,是该海域内天然 PBDEs 的主要来源之一。因此,PBDEs 通过上述途径进入水体而造成水体污染并以其为介质迁移到其他环境中。

1.1.2 PBDEs 在大气中的污染现状

目前,大气环境中 PBDEs 污染日趋严重。Abbasi 等^[1]根据统计数据发现,从 1983 年开始,基于中国国内生产生活的需求,医疗电子设备和塑料产品等制造业快速发展,是中国工厂室

内灰尘中 PBDEs 浓度较快提升的主要原因。由于 PBDEs 具有较强的挥发性,易进入空气中,而造成大气环境污染。又因自身疏水性的限制,其多存在于灰尘中。Jin 等^[10]发现汽车空气和灰尘中 14 种 PBDEs 的总浓度平均值分别达到了 732 pg/m³ 和 4 913 pg/m³,其主要来源分别是座套和脚垫中的挥发性聚氨酯。此外,暴露在空气中的废旧家具、露天工厂、废旧电子产品中的 PBDEs 也极易释放到空气中从而产生污染;在产品制造过程中作为阻燃剂加入的 PBDEs 是半挥发性的,因为其与产品之间的化学键属于不稳定连接,使得其易被释放到空气中,后沉降至灰尘中,通过直接摄取或皮肤接触进入人体内^[23]。人类接触大气中 PBDEs 的主要地点是多人聚集且滞留较久的室内公共场所。金漫彤等^[24]在杭州市网咖、建材市场、电子市场、商场和图书馆等五类公共场所进行灰尘取样,研究并比较了各样品中 PBDEs 的含量,结果表明网咖和电子市场的 PBDEs 含量较高,而商场和图书馆的 PBDEs 含量极低,差异性可能与不同场所含有挥发强度系数较高的 PBDEs 的电线数量有关。Ibeto 等^[25]发现处于热带的尼日利亚地区,较高的室温及紫外光照射会致使家庭物品中高溴代 PBDEs 进入脱溴过程并挥发进入大气中,极大地提高了人类暴露于 PBDEs 中的风险。Portet-Koltalo 等^[26]分析并测定了回收站内废旧家具中的 PBDEs 含量,发现其可通过接触转移到其他家具,并会挥发到大气中。因此,大气作为 PBDEs 迁移的重要介质越来越受到研究者的关注。

1.1.3 PBDEs 在土壤中的污染现状

不同于水体的高流动性,土壤流动性极差,是除水体和大气环境外 PBDEs 传播的又一环境介质^[5]。PBDEs 的疏水性,使其几乎不存在于土壤水分中,而土壤中存在许多吸附性能极强

的化合物,致使 PBDEs 与土壤颗粒紧密结合,并且土壤中存在的大量有机物质也使得 PBDEs 更易汇集;由于土壤的低流动性, PBDEs 在土壤环境中进行归趋并长时间存在,继而产生污染,程度与土壤类型及人类活动具有极大相关性^[3]。土壤中 PBDEs 来源有大气沉降、污泥堆肥、废旧电子产品和塑料垃圾等^[13-15]。张可等^[27]在高海拔区域土壤中检测到较低浓度的 PBDEs。Hao 等^[13]和 Xiong 等^[14]分别在北极和南极地区的土壤样品中检测到 PBDEs,这极大可能是大气远距离传输和干湿沉降的结果。污泥堆肥造成土壤污染的主要原因为堆肥过程中 PBDEs 从污泥中脱离进入土壤。Wu 等^[28]从广州市 5 个污水处理厂污泥样品中检测到 18 种 PBDEs。

电子垃圾处理地是 PBDEs 污染最重的点污染源。在我国广东省汕头市贵屿镇、广东省清远市和浙江省台州市等典型电子垃圾拆解地的土壤中, PBDEs 浓度呈增加趋势并以点污染源为中心向周围扩散^[29]。Zhou 等^[30]通过分析杭州市电子垃圾处理场土壤中多种有机污染物分布状况,发现 Σ_{10} PBDEs 浓度最高,为 343–69 306 ng/kg。张胜军等^[31]对电子垃圾拆解区周边 66 个土壤样品中 25 种 PBDEs 进行了分析,认为低溴代联苯醚在土壤中具有一定的迁移能力,能够从高浓度地区向低浓度地区迁移,而高溴代联苯醚在土壤中相对迁移能力较弱。魏抱楷等^[32]发现浙江省台州市峰江工业区和滨海工业区的拆解园区、农田和居住区土壤中 Σ_{12} PBDEs 含量范围分别为 21.8–1 310.0 ng/g 和 6.19–220.00 ng/g, PBDEs 单体分布无显著差异。Oloruntoba 等^[33]在两年时间里持续研究了尼日利亚拉各斯的 3 个电子垃圾处理厂土壤中的 Σ_7 PBDEs,发现 PBDEs 在表层土壤中不断积累并向下层土壤迁移,并且迁移量不断增加;其在 0–15 cm 表层土的浓度范围为 141–302 ng/g,在 15–30 cm 土层的浓

度范围为 25.1–62.7 ng/g,在 30–45 cm 土层的浓度范围为 0–6.48 ng/g。PBDEs 不仅存在于电子拆解厂附近土壤中,其在城区内部也普遍存在,造成这种现象的原因是工业上废旧电子产品和塑料制品的不合理处理与回收。Han 等^[34]对天津市内工业区、居民区、混合区、新城区等 4 个功能区土壤中的 PBDEs 浓度进行了测定,研究表明这 4 个区内均存在 BDE-209、BDE-207、BDE-206 等 PBDEs 同系物,其可能经水体和大气传播至土壤中。

PBDEs 除了在水体、大气和土壤等环境介质中以物理化学的方式迁移,其在食物链中的分布和富集引起了研究者的关注^[35]。Wu 等^[36]通过揭示华南地区某污染点青蛙体内 PBDEs 的组织分配、生物放大和代际传递规律,在国际上较早证实一些早期认为“生物不可利用”的大分子 PBDEs 会在食物链中降解、传递与累积。而进入水环境中的 PBDEs 虽然受到自身疏水性的限制,但亲脂性能够使其存在于水中生物的体脂内进而蓄积,并通过食物链进一步传播至其他生物体内,甚至进入人体,这也是除相互流通水体外 PBDEs 的又一传播途径^[17]。Lu 等^[37]研究发现中国南方典型水鸟(翠鸟)主要通过猎食鱼类摄入 PBDEs,体内的中值浓度为 130 ng/g,营养放大系数(biomagnification factors, BMFs)和生物放大系数(trophic magnification factors, TMFs)与正辛醇-水分配系数常用对数值(logK_{ow})呈抛物线关系,峰值均约为 7。Wu 等^[38]研究了 PBDEs 在水生和河岸食物网中的生物放大作用,获得河岸样本中 PBDEs 浓度范围分别为 0–65.1 ng/g,水生样本中的浓度范围为 0–187 ng/g,这 2 种食物网的 BMFs 和 TMFs 均相近。PBDEs 在食物链中的分布和富集受多种因素影响。任子贺等^[39]通过分析鲶鱼和家鸽中 PBDEs 的富集模式,发现陆生生物比水生生物更易富集亲脂性

强的 PBDEs, 这种差异性富集现象可能与同系物的不同物理化学性质导致的环境迁移行为有关。Xie 等^[18]首次报道了超深渊哈达尔海沟的片脚类动物中 BDE-209 是通过食物链以动物腐肉为食而积累的; 脂质含量和体长是影响甲壳和肌肉中 BDE-209 浓度变化的潜在重要因素, 而内脏污染水平主要受性别和脂质含量的影响。江逸野等^[40]对比了鱼体脂肪含量较高的组织(如肝脏、脂肪和鱼卵)和脂肪含量较低的组织或器官(如肌肉和鱼鳞)中的 PBDEs 含量, 发现前者显著高于后者, 分析认为 PBDEs 通过被动扩散机制分布于各个组织中, 主要影响因素是脂肪含量。由于通过食物链的迁移和归趋, 目前, PBDEs 在海产品类、蛋制品类和肉类中均被检出, 甚至赋存于母乳、人体血液、脂肪和肝脏组织中^[41-45]。PBDEs 污染已成为环境科学领域持续关注的重要问题。

1.2 PBDEs 的毒理性

PBDEs 对生物体具有严重的生物毒性, 且可以通过食物链进行生物累积和生物浓缩, 造成更大危害^[46]。2023 年, 王鑫格等^[47]首次将 PBDEs 和多氯联苯(polychlorinated biphenyls, PCBs)、多环芳烃(polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs)等物质定义为类二噁英物质(dioxin-like compounds, DLCs)。当 PBDEs 暴露在阳光或紫外线时, PBDEs 会被分解为另一种可以大量积累在水体的有毒类二噁英物质——多溴二苯并呋喃(polybrominated dibenzofurans, PBDFs), 其毒性比 PBDEs 更强^[48]。PBDEs 通过生物或非生物转化途径也会被分解为羟基化或甲氧基化多溴联苯醚(hydroxylated polybrominated diphenyl ethers, OH-PBDEs 或 methoxylated polybrominated diphenyl ethers, MeO-PBDEs), OH-PBDEs 在环境中表现出了较 PBDEs 更大的生物毒性^[49-51]。PBDEs 与其分解的毒性更强的副产物会造成甲

状腺稳态的破坏、毒害神经发育甚至致癌等一系列问题损害生物健康^[52-54]。2023 年, Abafe 等^[55]首次评估了微塑料中含有的 PBDEs 与人体皮肤表面膜液接触后所产生的影响, 研究表明 PBDEs 在皮肤中的暴露量较大, 首次突出了皮肤途径作为人类暴露于微塑料中 PBDEs 的主要途径的重要性。因此, PBDEs 的毒理性研究备受关注。

2 微生物降解 PBDEs 的影响因素

PBDEs 的微生物降解是一个复杂的过程。受微生物自身特性的影响, 不同菌株对 PBDEs 降解效果各不相同, 其主要受到内部因素如菌种自身疏水性、菌龄和菌群结构等, 以及外部因素如温度、pH、PBDEs 浓度、同系物或其他芳香族化合物的加入等的影响(表 1)。

由于自身疏水性, PBDEs 的生物可利用性低, 导致生物降解性受到限制。Tang 等^[60]在广东省汕头市贵屿镇电子拆解厂附近河流沉积物中筛选驯化得到一株降解 PBDEs 的铅黄肠球菌(*Enterococcus casseliflavus*), 具有较高的疏水性, 较其他亲水降解菌更具有天然优势, 能够与 PBDEs 充分接触。另外, 对于高浓度 PBDEs, 菌株通过自身细胞凋亡的变化来表现出相应耐受性, 对降解效果提升较大。Tang 等^[57]利用铜绿假单胞菌(*Pseudomonas aeruginosa*)降解 BDE-47, 发现 2 mg/L Cr(VI)刺激菌株分泌表面活性剂鼠李糖脂, 改变细胞表面疏水性和细胞膜通透性, 促进 BDE-47 在细胞内积累, 从而提高 BDE-47 的生物转化率。不同菌龄的微生物对 PBDEs 降解效果也不同。谢苗苗等^[61]研究发现在兼性肠杆菌(*Enterobacter* sp. XM)的对数增长期, BDE-47 降解率迅速上升, 后续降解率趋于平稳, 可能因为菌种的生长受到了抑制。Zhang 等^[66]利用寡养单胞菌(*Stenotrophomona* sp. WZN-1)降解 BDE-47, 动力学研究表明, 在前 4 天的细菌生长

对数期, 降解速率急剧上升; 细菌数量在第 4 天达到最高值后有所下降, BDE-47 的降解速率相应减慢, 其机理可能是脱溴作用和羟基化产物的形成; 相较于纯菌株对 PBDEs 的降解, 菌群对 PBDEs 的降解更为彻底, 因此菌群结构及相关影响因素的探究在微生物群落原位降解过程中逐渐受到关注。Wang 等^[69]利用自然湿地土壤微生物原位降解 BDE-153 (初始浓度分别为 1.0 $\mu\text{g/g}$ 和 5.0 $\mu\text{g/g}$), 经过 45 d 培养, 未灭菌土壤样品中 BDE-153 的残留率分别为 67.9%和 73.6%, 这两个残留率均远低于灭菌土壤对照样品的残留率(96.0%和 97.2%), 表明微生物群落可加速 BDE-153 的降解; 同时, 单体稳定同位素分析结果表明, 未灭菌土壤中的 BDE-153 的生物利用度随培养时间逐渐降低, 而灭菌土壤样品中 BDE-153 生物利用度无变化。Yu 等^[68]分离出高效降解 BDE-209 的微生物菌群 GY1, 其中优势菌属为丝微菌属(*Hyphomicrobium*)、假单胞菌属(*Pseudomonas*)、氨基菌属(*Aminobacter*)、鞘氨醇菌属(*Sphingopyxis*)、金黄杆菌属(*Chryseobacterium*)、芽孢杆菌属(*Bacillus*)、假单胞菌属(*Pseudaminobacter*)、寡养单胞菌属(*Stenotrophomonas*)、鞘氨醇杆菌属(*Sphingobacterium*)和微杆菌属(*Microbacterium*), 当 BDE-209 初始浓度为 0.5 mg/L 时, 在 7 d 内降解率达到 57.2%; GY1 菌群的高效降解能力有效地促进了 BDE-209 在实际水体和水-沉积物体系中的降解。在利用菌群原位降解 PBDEs 的研究中, 人们发现红树林也具有促进效果。Chen 等^[62]发现红树林能加速沉积物中 BDE-47 的去除, 其根本原因是红树林改变了沉积物中细菌群落结构并选择性地富集 PBDEs 降解菌来提高降解率。

随着 PBDEs 菌群原位降解研究的深入, 脱离实验室限制在受污染环境进行微生物原位修复 PBDEs 污染意义重大。然而上述内部因素受

时空影响较大且要求苛刻, 难以在短期内人为调控。因此早期的 PBDEs 微生物降解研究主要集中于探究外部因素对降解效率的影响。在常温下微生物常常表现出较高降解率, 这是由于它们大多是在室温条件下筛选分离培养出来的。温度对微生物降解 PBDEs 的影响主要体现在影响降解过程中微生物体内相关酶的表达。黄婷等^[64]探究了温度对伯克霍尔德菌(*Burkholderia cepacia*) GYP1 降解 BDE-47 的影响, 结果表明酶活性随着温度发生动态变化, 当温度为 15–35 $^{\circ}\text{C}$ 时降解性能较好, 在 30 $^{\circ}\text{C}$ 降解率达到最大值 85.4%, 而当温度过低或者过高时, 降解率均会出现大幅下降。郭浩等^[63]考察温度对长野雷夫松氏菌(*Leifsonia shinshuensis*) GH10 降解十溴联苯醚(decabromodiphenyl ether)效果的影响, 获得跟黄婷类似的结论。而另一外部因素 pH 通过干扰微生物的生长曲线来影响降解效果。pH 的变化会导致细胞膜电位和营养物质的离子化发生改变, 进而阻碍微生物对营养物质的吸收, 致使降解效率降低^[63]。不同微生物对降解环境的 pH 要求各不相同。黄婷等^[64]从电子拆解厂附近分离得到一株 BDE-47 降解菌伯克霍尔德菌(*Burkholderia cepacia*), pH 4.0–7.0 时表现出良好的降解性, 在 pH 7.0 时达到最高降解率 84.29%, 表现出弱碱抑制性。张可等^[65]获得一株降解 BDE-99 的产碱杆菌(*Alcaligenes cupidus*), 其在 pH 8.0 时降解率最高, 表现出酸性抑制。除温度和 pH 外, PBDEs 的初始浓度同样会对降解效果产生影响。经严格筛选后的降解菌具有一定的 PBDEs 耐受性, 但当 PBDEs 的浓度很高时, 微生物的生长繁殖和酶活性受到抑制, 对降解极为不利^[68–69]。此外, 才满等^[71]还发现在周期较长的厌氧降解过程中, PBDEs 同系物或其他芳香族化合物的加入有利于降解的进行。

表 1 微生物降解 PBDEs 的影响因素

Table 1 Factors affecting microbial degradation of PBDEs

降解菌 Degrading bacterial strain	菌株来源 Source	影响因素 Influencing factor	最高降解率 Highest degraded rate (%)	参考文献 Reference
变形假单胞菌 <i>Pseudomonas plecoglossida</i>	广东清远电子拆解厂附近土壤 E-waste contaminated soil in Qingyuan, Guangdong Province	营养情况、种群竞争、酶活性、生物炭 Nutritional status, interspecific competition, enzyme activity, biochar	42.30	[3]
	广东清远电子垃圾拆解厂附近土壤 E-waste dismantling site in Qingyuan, Guangdong Province	初始浓度、诱导剂、酶活性 Initial concentration, inducer, enzyme activity	63.20	[56]
假单胞菌 <i>Pseudomonas</i> sp.	污水处理厂污泥 Sludge from sewage treatment plant	菌种活性、pH、固定方式、搅动频率 Bacterial activity, pH, immobilized method, overturn frequency	85.20	[27]
铜绿假单胞菌 <i>Pseudomonas aeruginosa</i>	广东贵屿电子拆解厂附近土壤 E-waste dismantling area in Guiyu, Guangdong Province	表面疏水性、细胞膜通透性、碳源、电子供体、辅助金属离子 Cu ²⁺ Surface hydrophobicity, cell membrane permeability, carbon source, electron donors, metal ions Cu ²⁺	44.00	[57]
	山东潍坊溴化阻燃剂生产厂土壤 Brominated flame retardant production site soil in Weifang, Shandong Province	温度、pH、初始浓度、超声提取功率、提取时间、料液比 Temperature, pH, initial concentration, ultrasonic power, extraction time, solid-liquid ratio	92.77	[58]
施氏假单胞菌 <i>Pseudomonas stutzeri</i>	美国典型培养物保藏中心 American Type Culture Collection	培育时间、电子供体 Incubation time, electron donors	95.00	[59]
铅黄肠球菌 <i>Enterococcus casseliflavus</i>	广东贵屿电子拆解厂附近河流沉积物 Sediment samples from an e-waste dismantling area in Guiyu, Guangdong, Province	表面疏水性、菌龄、细胞膜通透性、酶活性、碳源 Surface hydrophobicity, bacterial age, cell membrane permeability, enzyme activity, carbon source	52.20	[60]
	天津电子拆解厂土壤 Soil collected from an e-waste recycling area in Tianjin	电子受体 Electron acceptor	67.30	[61]
有机卤呼吸菌 <i>Organohalide-respiring</i>	滨海沉积物 Marina sediment	菌群结构、微生物活性和丰度、酶活性 Bacterial community structure, bacterial activity and abundances, enzyme activity	83.20	[62]

(待续)

(续表 1)

降解菌 Degrading bacterial strain	菌株来源 Source	影响因素 Influencing factor	最高降解率 Highest degraded rate (%)	参考文献 Reference
长野雷夫松氏菌 <i>Leifsonia shinshuensis</i>	上海松东污水处理厂 Songdong sewage purification plant in Shanghai	温度、pH、接种量、碳源 Temperature, pH, inoculum rate, carbon source	90.08	[63]
伯克霍尔德菌 <i>Burkholderia cepacia</i>	广东贵屿电子拆解厂附近土壤 Soil of the e-waste recycling area in Guiyu, Guangdong Province	温度、pH、初始浓度、酶活性、碳源 Temperature, pH, initial concentration, enzyme activity, carbon source	84.29	[64]
产碱杆菌 <i>Alcaligenes cupidus</i>	四川阿坝州土壤 Soil in Aba, Sichuan Province	表面疏水性、温度、pH、碳源、辅助金属离子 Surface hydrophobicity, temperature, pH, carbon source, metal ions	86.10	[65]
寡养单胞菌 <i>Stenotrophomonas</i> sp.	天津电子废物回收区 E-waste recycling area in Tianjin	菌龄、酶活性 Bacterial age, enzyme activity	43.00	[66]
红球菌属 <i>Rhodococcus</i> sp.	农业固体废物 Agricultural solid waste	自身疏水性、温度、堆肥时间 Surface hydrophobicity, temperature, composting time	49.60	[67]
GY1	广东贵屿电子拆解厂附近土壤 Soil from the e-waste polluted farmland in Guiyu, Guangdong Province	菌落结构、初始浓度 Bacterial community structure, initial concentration	57.20	[68]
硫化螺旋菌、脱卤素杆菌 <i>Sulfurospirillum</i> spp. and <i>Dehalococcoides</i> spp.	辽河滨海湿地土壤 Soil from the Liaohe coastal wetland	菌落结构、初始浓度 Bacterial community structure, initial concentration	73.60	[69]
嗜甲基菌属、假单胞菌属、梭菌属、脱卤球菌属 <i>Methylophilus</i> spp., <i>Pseudomonas</i> spp., <i>Clostridium</i> spp. and <i>Dehalococcoides</i> spp.	甘蔗渣/粪肥肥料 Bagasse/manure composting	菌落结构、pH、氧气、电子供体 Bacterial community structure, pH, oxidation, electron donors	89.57	[70]

3 微生物降解 PBDEs 的途径

PBDEs 的微生物降解以厌氧降解和好氧降解两种方式为主，这两者之间的具体途径有较大差异^[72-73]。其中，厌氧降解的主要途径为还原脱溴，高溴代 PBDEs 苯环上的溴原子逐渐被取代生成溴代程度更低的产物^[72]。高溴代 PBDEs 如 BDE-209 的还原降解是一个脱溴难度逐渐升

高且较为缓慢的过程，在此过程中，溴原子在苯环上的位置不同使得其脱溴难易程度不同，具体表现为邻位最难，对位次之，间位最易；同时，随着溴代程度降低，PBDEs 毒性和生物蓄积性越高，并且难以彻底还原脱溴，对生态环境和人类身体健康具有巨大威胁^[70]。

不同于厌氧降解途径的单一性，好氧降解在对 PBDEs 脱溴的基础上对脱溴产物进一步开

环,完全降解为无二次污染的化合物,并且反应速度更快。PBDEs的好氧降解是一种特异性酶催化作用,脱卤酶、水解酶、双加氧酶、P450单加氧酶和水杨酸羟化酶等已被证实在PBDEs酶促降解过程中起关键作用;在降解过程中PBDEs不能被直接吸收,而是先通过单/双加氧反应羟基化或通过甲基化使其开环,再以开环产物作为底物被好氧降解菌吸收利用,进行TCA循环或产生CO₂和H₂O,达到完全降解的效果^[71,74]。高溴代PBDEs如BDE-47的好氧降解过程复杂,需进行多步降解,最终转化为CO₂、H₂O和2-吡喃酮-6-羧脂酸(图3)^[71]。

在PBDEs微生物降解途径的研究中,根据相关降解产物对具体的降解过程进行推导的做法较为简便实用,是如今使用最广泛的研究方法之一^[71-74]。在厌氧和好氧这2种既定降解途径下,具体的降解过程及产物是丰富多样的,原因在于不同降解菌的基因表达、酶作用和相关蛋白质水平不同,因此分子生物学技术的加入对PBDEs微生物降解途径的研究增益良多^[73-78]。Yang等^[75]利用GeoChip 4.0检测生物燃料电池降解BDE-209过程中群落基因变化动态,发现闭路生物燃料电池(c-MFC)中功能基因的多样性和丰度均显著高于开路生物燃料电池(o-MFC),大部分为还原脱卤、羟基化、甲氧基化和芳烃降解的基因,并且与PBDEs的去除率显著正相关,表明BDE-209的降解不仅涉及还原脱卤基因途径,还可能涉及羟基化和甲氧基化基因途径;同时,在c-MFC中,碳、氮、磷和硫循环以及能量转化过程中的各种功能基因也显著增加,其中超过75.5%的基因与芳香族化合物降解有关,这些基因被显著激活表明其可能参与PBDEs的转化过程。Tang等^[57]发现铜绿假单胞菌(*Pseudomonas aeruginosa*)在降解BDE-47过程中,细胞内包括脱卤酶、氧化酶和水杨酸羟

化酶等在内的13种氧化还原酶的基因表达显著上调。Li等^[76]通过转录组测序技术发现皮不动杆菌(*Acinetobacter pittii*) GB-2在降解BDE-47过程中,主要与物质转运、降解和细胞应激有关的159个差异表达基因上调;进一步分析认为1,2-双加氧酶、苯酚羟化酶和单加氧酶参与了BDE-47的降解。Zhang等^[66]利用寡单胞菌(*Stenotrophomonas* sp.)降解BDE-47,发现部分氧化酶和还原酶基因被诱导转录翻译,同时,更多与降解相关的特异性功能酶被分泌出来,例如单加氧酶、氧化还原酶、裂解酶和ATP酶等。Cao等^[77]分别提取了黄孢原毛平革菌(*Phanerochaete chrysosporium*)胞内和胞外粗酶液,发现其在降解BDE-47过程中起主要作用的是胞外酶中的木质素过氧化酶(LiP)和锰过氧化物酶(MnP)。由于蛋白质与细胞内物质转运、合成和催化作用等活动密切相关,因此它的存在水平可以反映相关基因表达和酶作用水平,从而获得微生物降解PBDEs的具体途径。Tang等^[60]通过二维凝胶电泳对细胞内蛋白质进行分析,发现在BDE-209的降解过程中,存在50种蛋白质差异性表达,其中25种蛋白质的表达水平得到提高,其余25种蛋白质表达水平下降,证明有利于BDE-209降解的ATP合成酶作用得到增强。细胞内蛋白质的差异性表达,是细胞对于营养缺乏或外界环境恶化如PBDEs浓度升高状况的应激作用,当蛋白质表达水平提高时可能意味着微生物对PBDEs的抵抗能力增强,而蛋白质表达水平降低时可能意味着微生物减少无关PBDEs降解的细胞活动营养能量消耗^[78]。

4 微生物降解PBDEs的强化手段

在PBDEs的微生物降解研究中,人们从未停止探究提高降解效果的脚步。通过筛选获得降解菌之后,如何有效应用并增强其对PBDEs

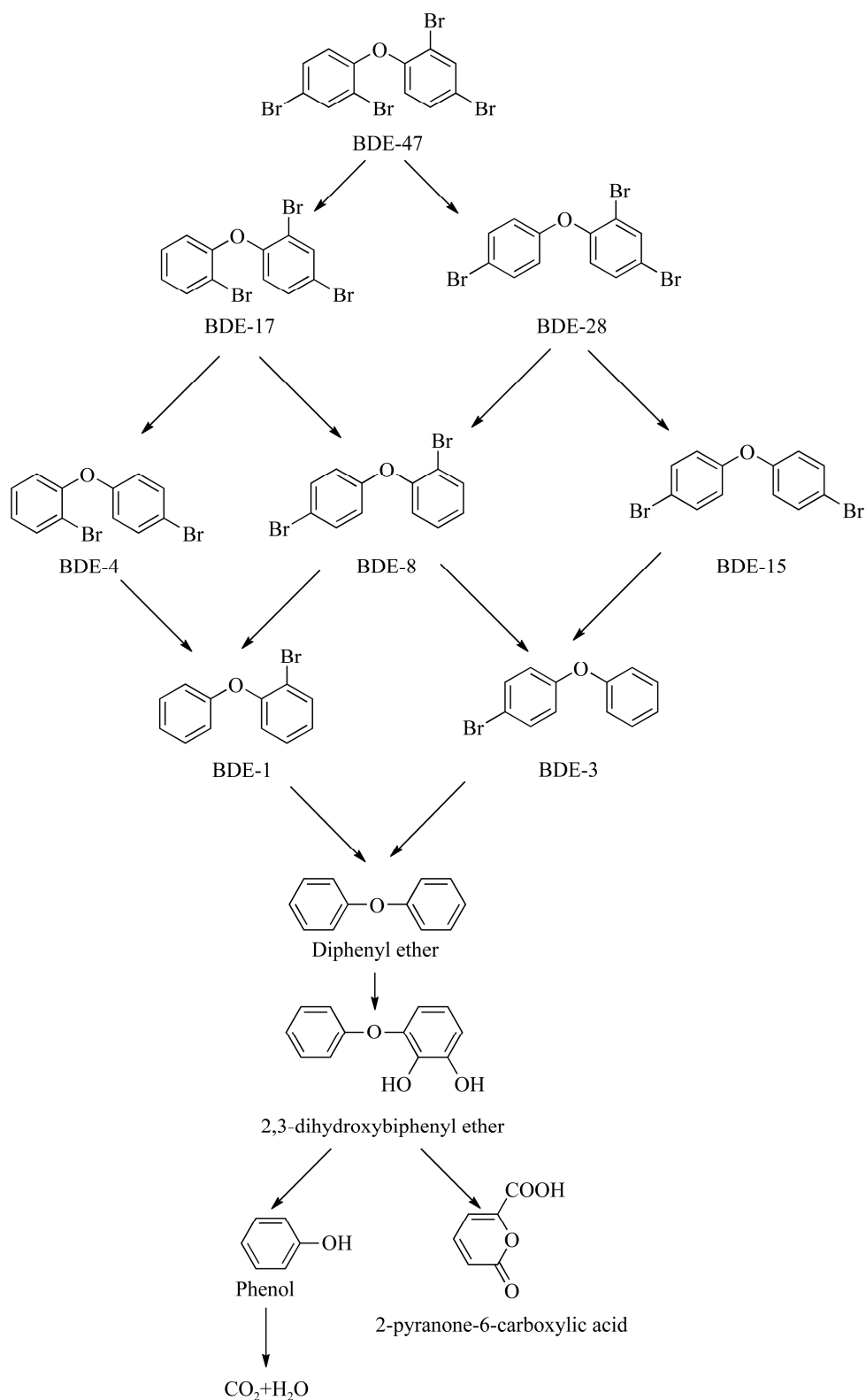


图 3 微生物好氧降解 BDE-47 的途径

Figure 3 Pathways of microbial aerobic degradation BDE-47.

的降解效果的研究引起了广泛关注，其中之一是在降解体系中添加合适的试剂，如载体、氮(碳)源、辅助金属离子、电子供体、诱导剂和表面活性剂等，这些添加剂的作用机制各不相同(图4)。

在微生物降解 PBDEs 过程中添加载体，一是为了吸附和负载菌体从而增加其与 PBDEs 的接触面积，二是发挥稳固作用提高菌株对不良环境的缓冲能力从而促进反应。张可等^[27]以玉米芯为载体吸附 BDE-209 降解菌，联合海藻酸钠包埋材料制备成的复合固定化菌剂对土壤中 BDE-209 降解率达到 85.2%，显著高于其他单载体固定化菌剂和游离菌剂的降解率。由于氮源是细胞原生质和酶蛋白的主要组成部分，因

此在微生物降解 PBDEs 过程中，添加氮源有利于促进降解菌的生长和繁殖。Chen 等^[79]发现在 BDE-47 污染土壤微生物降解体系中加入氮源后的 BDE-47 去除率由加入前的 47.3% 变为 58.5%，土壤营养水平、脲酶和脱氢酶活性以及总细菌和脱卤细菌的丰度大大提高，证明添加氮源显著促进了土壤微生物对 BDE-47 的降解。

在 PBDEs 微生物降解体系的添加剂队伍中，重金属离子是一个须审慎对待的角色。因为许多重金属离子是造成严重环境污染问题的罪魁祸首，对微生物而言，某些重金属离子产生的毒害作用甚至是致命的^[80]。然而在一定低浓度范围内，部分重金属离子却可以增强微生物降解作用，因为某些重金属离子如 Cu^{2+} 等不

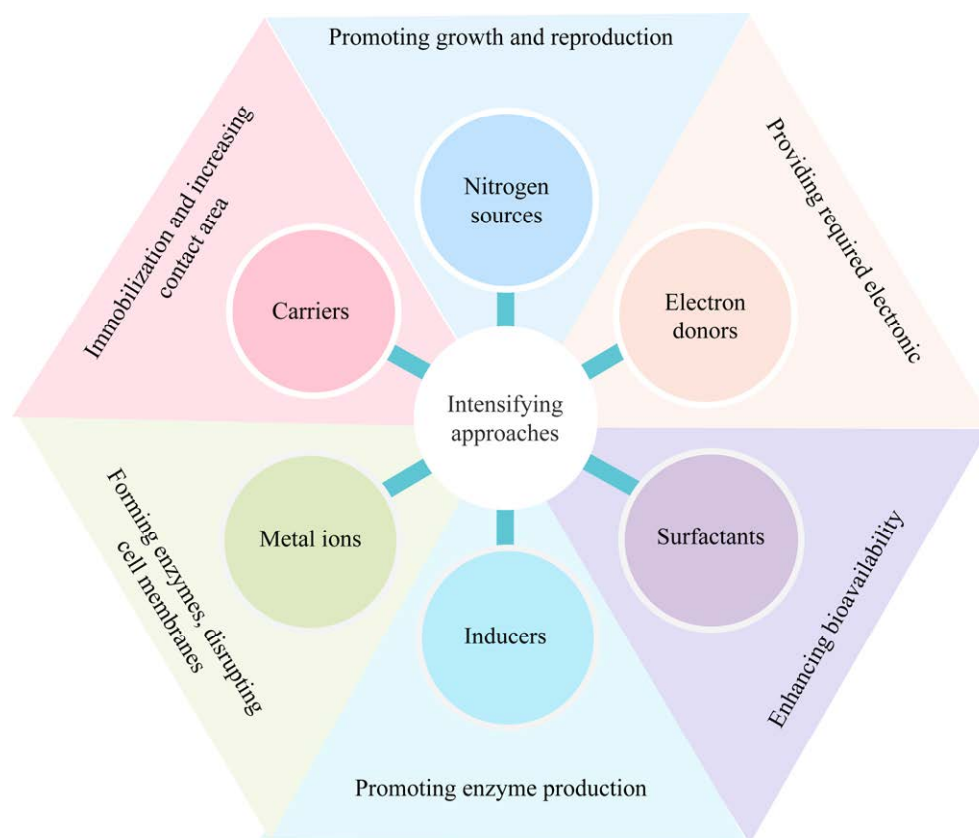


图4 微生物降解 PBDEs 的强化手段

Figure 4 Intensifying approach of PBDEs microbial biodegradation.

仅是细胞代谢的必需元素或是多酚氧化酶等物质的组成,还可对细胞膜产生一定的破坏作用从而利于吸收进而降解 PBDEs;当重金属离子浓度升高到一定程度时,会对菌种产生毒害作用从而抑制降解;最优浓度取决于不同菌种对不同重金属离子的耐受性^[81]。因此,要想用好重金属离子这把“双刃剑”,需对种类加以严格甄选并控制添加量。Tang 等^[57]利用 2 mg/L Cr(VI)刺激铜绿假单胞菌分泌表面活性剂促进 BDE-47 降解的研究,为重金属和 PBDEs 复合污染的微生物原位降解提供了一种参考思路。此外,微生物的降解过程大多为涉及电子传递的氧化还原反应,因此添加电子供体有利于提高降解效率。刘莉莉等^[82]发现铁碳微电解与微生物共作用体系能促进 BDE-209 的降解中间产物进一步降解,其原因是加入的还原性铁粉提供了更多电子,使还原脱溴效果得到提升。能够产生电子供体的堆肥体系也进入了研究者的视野。Chang 等^[70]发现厌氧堆肥过程中产生的各种碳副产物(胡敏素、腐殖酸和富里酸等)作为电子供体参与微生物降解 BDE-209 的过程,提高了去除率。

由于酶促反应是 PBDEs 的微生物降解过程中极其重要的一环,因此添加诱导剂可促进更多酶的产生从而提高降解率。Li 等^[83]在 BDE-47 的降解实验中加入可以刺激微生物自噬的化学诱导剂雷帕霉素,发现其促进 BDE-47 降解菌细胞凋亡和死亡,作用强度可能与诱导剂的结构相关。另外, PBDEs 降解菌的粗酶提取物被发现具有更强的降解作用。Liu 等^[58]用粗酶提取物与铜绿假单胞菌(*Pseudomonas aeruginosa*)分别降解 BDE-209,粗酶提取物表现出更好的降解效果,其降解时间也更短。在 PBDEs 的微生物降解过程中添加表面活性剂,主要是为了利用其增溶作用提高 PBDEs 的生物可利用性,

改善因 PBDEs 自身疏水性而降解率受限制的现状。Ti 等^[84]发现一定浓度的表面活性剂蔗糖脂肪酯提高了 BDE-47 的生物利用度,但其胞外吸附量几乎不变;而胞内积累量随着表面活性剂浓度的增加而不断增加,当表面活性剂浓度较高时, PBDEs 的可溶性虽有所提高,但其生物可利用性可能会降低,甚至对降解过程产生抑制作用如氧化应激、细胞形态变形和细菌膜破裂。Tang 等^[85]在 BDE-209 的降解实验中加入茶皂素作为表面活性剂,极大提高了 BDE-209 的降解率,但随着茶皂素浓度的提高也逐渐表现出对降解过程的抑制。陈耀宁等^[67]发现在接种了红球菌(*Rhodococcus* sp.) RAH1 的土壤中加入表面活性剂脂肪醇聚氧乙烯醚后, BDE-47 在土壤中的溶解度和生物可利用性大大增加, BDE-47 的去除效率大大提高。

近年来,一些功能材料被应用于 PBDEs 的微生物降解过程中(表 2)。零价纳米铁(nZVI)被发现对 PBDEs 具有一定的降解能力。基于这一特性,Huang 等^[59]利用 nZVI 和菌株联合作用降解 BDE-47,通过类芬顿反应实现了降解率由 91% 提升到 95%,nZVI 的加入小幅度促进了 BDE-47 的生物降解。为了大幅提升降解率,Yang 等^[75]构建微生物燃料电池并结合功能基因芯片 GeoChip 4.0 技术,通过特异性刺激生成微生物功能基因来增强 BDE-209 的降解,研究结果表明,电极的刺激有利于更多与 BDE-209 降解相关功能基因的表达,微生物群落结构也发生了显著变化。Ma 等^[86]研发了土壤-生物燃料电池系统用于降解 BDE-209,降解率达到了 85.5%;在燃料电池工作过程中形成的电场促进 BDE-209 厌氧降解菌的代谢活动,增强了生物活性;同时,研究表明该系统有助于 BDE-209 厌氧降解菌和产电菌的生长。PBDEs 在环境介质中有很多共存物质,如果能把共存物质运用

表 2 功能材料在 PBDEs 微生物降解中的应用

Table 2 Application of functional materials in the microbial degradation of PBDEs

材料	去除对象	作用机制	促进效果	参考文献
Material	Removing object	Mechanism	Enhancement effect	Reference
零价纳米铁 nZVI	BDE-47	类芬顿反应 Fenton-like reaction	降解率由 91% 提升到 95%	[59]
生物燃料电池 Microbial fuel cell	BDE-209	产生电流 Microbial electricity generation 促进厌氧降解菌代谢 Promoting metabolism of anaerobic microbes	生成更多功能基因, 群落结构发生显著变化 Generating more functional genes, significant changes of bacterial community structure 降解率达到 85.5% Degraded rate reached 85.5%	[75,86]
腐殖酸 Humic acid	BDE-209	介导电子传递 Play a mediation role in electrons transfer	4 h 内, 90% 以上的 BDE-209 被降解 More than 90% of BDE-209 is degraded within 4 h	[87]
生物炭 Biochar	BDE-47	表面吸附 Surface adsorption 孔隙填充 Pore filling π - π 相互作用 π - π interaction 电子传递 Electrons transfer	刺激胞外聚合物分泌 Stimulating the secretion of extracellular polymeric substances 促进降解菌生长 Promoting the growth of bacteria 群落相对丰度显著增加 Significant increase of bacterial abundance	[3,56,88]
堆肥 Compost	BDE-47	氧化还原 Redoxidation 介导胞外电子传递 Play a mediation role in extracellular electrons transfer	促进还原转化 Promoting reductive transformations 增强生物降解性 Enhancing biodegradability 群落组成发生变化 Change of bacterial community	[89-90]

于 PBDEs 高效降解不失为一种有益尝试。其中, 广泛存在于自然水体、土壤有机质和海洋沉积物中的腐殖酸引起了研究者的关注。Yang 等^[87]在 PBDEs 光催化降解中引入腐殖酸(humic acid, HA)来促进高溴代 PBDEs 转为更容易被自然氧化的低溴化产物; 由于在自然光照下 PBDEs 转化为激发态的 PBDEs*, 随后通过电子转移反应实现脱溴, 但该反应发生在仅占太阳光不到 5% 的紫外线区域, 降解效率受到限制; 在腐殖酸的介导下, 其与 PBDEs 形成的卤键络合物有利于电子转移, 从而能够更高效利用太阳能实现对 PBDEs 的厌氧还原; 在可见光照射下, BDE-209 在含 HA 的缺氧条件下发生了非常迅速的降解,

4 h 内 90% 以上的 BDE-209 被 HA 光解。

与腐殖酸有类似官能团的生物炭是一种高度芳香化且稳定性较高的固体物质, 表面具有丰富的孔隙结构及较大的比表面积, 使其具有良好的吸附性。生物炭可通过吸附作用降低 PBDEs 在土壤中的生物有效性和生态风险, 还可以通过影响微生物群落结构和多样性而影响降解效果^[88]。Qi 等^[56]发现生物炭在 BDE-47 微生物降解过程中发挥着“庇护所”的作用: 一是生物炭吸附作用使得 BDE-47 毒性减轻; 二是生物炭刺激胞外聚合物(EPS)分泌, 保护降解菌免受 BDE-47 毒性伤害而死亡。Qi 等^[3]在进一步的研究中制成生物炭基菌剂修复 BDE-47 污

染土壤,发现一些潜在有机污染物降解菌的相对丰度显著增加,其可能也参与了 BDE-47 的降解;同时,生物炭通过表面吸附、孔隙填充、 π - π 相互作用等方式促进了 BDE-47 在炭基上的固定,从而提高降解率。生物炭还具有介导电子传递的能力和较好的催化性能,能极大促进微生物对有机污染物的去除,将其应用于 PBDEs 微生物降解具有巨大潜力^[91]。跟生物炭类似,堆肥体系也具有良好的介导电子传递的能力。Xiang 等^[89]利用堆肥体系中的各种基因及氧化还原能力促进土壤中微生物生长及代谢,通过增强胞外电流和电子介导传递作用,促进了 BDE-47 还原转化,增强了 BDE-47 的生物降解性。Chen 等^[90]利用农业废弃物堆肥化产生的微生物降解污染土壤中的 BDE-47,发现细菌能以 BDE-47 作为唯一碳源进行生长繁殖,降解率提高了近 15%;与此同时,将 DGGE 图谱数据和堆体理化参数结合起来,经过冗余分析及热图聚类分析发现,堆体中细菌和真菌群落的变化分别受不同环境因子影响,BDE-47 对细菌群落的影响大于真菌群落,高温可能抑制真菌的生长。

5 结论与展望

PBDEs 由于持久性、毒性和易迁移性一直是环境污染中难以解决的问题。微生物降解法因为成本低、效果优良和环境友好,被广泛用于降解 PBDEs 的研究和实践中。优化菌种筛选、施用方式、温度、pH、PBDEs 浓度和同系物或其他芳香族化合物添加等影响因素可以促进微生物持续高效降解 PBDEs。与此同时,选择合适的强化手段如添加载体、氮(碳)源、辅助金属离子、电子供体、诱导剂和表面活性剂等可以使降解效果事半功倍。然而,在环境中 PBDEs 微生物降解的研究仍存在一些不足,因

此提出 5 点展望。

(1) 在探究 PBDEs 的微生物降解过程中,对 PBDEs 进行快速、精确、便捷的检测是一个重要环节。传统的 PBDEs 检测方法往往依赖于大型且昂贵的检测设备及复杂的操作过程。因此,开发和运用高灵敏度和小型低廉的检测手段,如光电化学(photoelectrochemical, PEC)传感器等,有望推动 PBDEs 微生物降解的快速发展。

(2) 在微生物降解法中由于不同菌种的生化特性、来源和驯化方法等方面的不同,导致不同菌种对于不同浓度的 PBDEs 同系物耐受度和降解效果不同,因此选择合适的菌种去降解特定的 PBDEs 尤为重要。未来开展包括从 PBDEs 污染的更多介质中选育、利用基因工程等手段人工培育,以及针对性挑选表面疏水性菌株等方面的研究可以为可控的 PBDEs 污染高效微生物修复提供更多的菌株选择。

(3) 目前对于 PBDEs 微生物降解过程中相关蛋白质的分析研究极为有限,致使我们对菌种细胞在保持活性的同时进行高效降解的机制了解甚少,极大限制了 PBDEs 降解技术的未来发展。因此,运用分子生物学技术深入研究降解过程中蛋白质的差异性表达,探究基因表达水平和酶的作用,有望为未来 PBDEs 的创新降解技术提供帮助。

(4) 合适的强化手段有助于改善微生物降解环境中 PBDEs 的效率。目前已有使用纳米零价铁(nZVI)、生物燃料电池、腐殖酸、生物炭和堆肥等强化手段的报道,然而这些手段与降解方式结合的研究尚不深入和完善。因此需不断完善和更新已有的强化手段,并持续探究新颖的可与微生物降解方式相结合的环境友好新材料。

(5) 目前,密度泛函理论(density functional theory, DFT)和定量构效模型在新型污染物的

高效降解领域的应用逐渐引起研究者的关注,将其运用于对复杂环境中PBDEs转化为具有更高毒性PBDFs的风险评估,可以精准探究PBDFs生成的关键控制因素。这些新兴高效的研究方法的加入有望成为环境介质中多溴联苯醚微生物原位降解研究的革新方向之一。

REFERENCES

- [1] ABBASI G, LI L, BREIVIK K. Global historical stocks and emissions of PBDEs[J]. *Environmental Science & Technology*, 2019, 53(11): 6330-6340.
- [2] GUO Y, LU N, HE Q, WANG BY, CAO S, WANG Y. Autophagy: a newly discovered protective mechanism in the marine rotifer *Brachionus plicatilis* in response to BDE-47 exposure[J]. *Aquatic Toxicology*, 2023, 259: 106536.
- [3] QI X, ZHU M, YUAN Y, DANG Z, YIN HJJOHM. Bioremediation of PBDEs and heavy metals co-contaminated soil in e-waste dismantling sites by *Pseudomonas plecoglossicida* assisted with biochar[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2023, 460: 132408.
- [4] WANG R, TANG T, WEI YC, DANG D, HUANG KB, CHEN XW, YIN H, TAO XQ, LIN Z, DANG Z, LU GN. Photocatalytic debromination of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) on metal doped TiO₂ nanocomposites: mechanisms and pathways[J]. *Environment International*, 2019, 127: 5-12.
- [5] ZHANG XX, CHEN R, LI ZH, YU JX, CHEN JY, ZHANG YY, CHEN JH, YU QQ, QIU XH. The influence of various microplastics on PBDEs contaminated soil remediation by nZVI and sulfide-nZVI: impedance, electron-accepting/-donating capacity and aging[J]. *Science of the Total Environment*, 2023, 880: 163233.
- [6] PANDA D, MANICKAM S. Heterogeneous Sono-Fenton treatment of decabromodiphenyl ether (BDE-209): debromination mechanism and transformation pathways[J]. *Separation and Purification Technology*, 2019, 209: 914-920.
- [7] QI X, ZHU MH, YUAN YB, RONG XF, DANG Z, YIN H. Integrated toxicology, metabolomics, and transcriptomics analyses reveal the biodegradation and adaptation mechanisms to BDE-47 in *Pseudomonas plecoglossicida*[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2023, 454: 140412.
- [8] STAPLETON HM, EAGLE S, ANTHOPOLOS R, WOLKIN A, MIRANDA ML. Associations between polybrominated diphenyl ether (PBDE) flame retardants, phenolic metabolites, and thyroid hormones during pregnancy[J]. *Environmental Health Perspectives*, 2011, 119(10): 1454-1459.
- [9] WANG YL, FENG YY, CHEN YL, LI TY, TAN Y, MA YF, ZHANG ZL. Annual flux estimation and source apportionment of PCBs and PBDEs in the middle reach of Yangtze River, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2023, 885: 163772.
- [10] JIN MT, ZHANG SF, HE JQ, LU ZH, ZHOU SS, YE NX. Polybrominated diphenyl ethers from automobile microenvironment: occurrence, sources, and exposure assessment[J]. *Science of the Total Environment*, 2021, 781: 146658.
- [11] 薛南冬, 陈宣宇, 杨兵, 秦普丰, 龙雨. 应用环境多介质逸度模型研究废旧电器拆解区多溴联苯醚的迁移及归趋[J]. *环境科学*, 2016, 37(11): 4326-4332.
- XUE ND, CHEN XY, YANG B, QIN PF. Transfer and fate of polybrominated diphenyl ethers in an electrical equipment dismantling area using a multimedia fugacity model[J]. *Environmental Science*, 2016, 37(11): 4326-4332 (in Chinese).
- [12] 殷梦菲, 李静, 王翠苹, 孙红文. 多溴联苯醚污染土壤的新型强化修复技术[J]. *中国环境科学*, 2017, 37(10): 3853-3860.
- YIN MF, LI J, WANG CP, SUN WH. A novel technology for enhanced remediation of soils contaminated by PBDEs[J]. *China Environmental Science*, 2017, 37(10): 3853-3860 (in Chinese).
- [13] HAO YF, MENG WY, LI YM, HAN X, LU HL, WANG P, YANG RQ, ZHANG QH, JIANG GB. Concentrations and distribution of novel brominated flame retardants in the atmosphere and soil of Ny-alesund and London Island, Svalbard, Arctic[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2020, 97: 180-185.
- [14] XIONG SY, HAO YF, LI YM, YANG RQ, PEI ZG, ZHANG QH, JIANG GB. Accumulation and influencing factors of novel brominated flame retardants in soil and vegetation from Fildes Peninsula, Antarctica[J]. *Science of the Total Environment*, 2021, 756: 144088.
- [15] DUAN L, YING YQ, ZHONG JY, JIANG CJ, CHEN W. Key factors controlling colloids-bulk soil distribution of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) at an e-waste recycling site: implications for PBDE mobility in subsurface environment[J]. *Science of the Total Environment*, 2022, 819: 153080.

- [16] 胡俊杰, 兰善红, 康耿, 高圆圆, 温志良, 吕小梅, 张小磊, 余应新. 东江流域典型毒害有机污染物的污染特征、来源及生态风险[J]. 环境科学学报, 2022, 42(12): 147-155.
HU JJ, LAN SH, KANG G, GAO YY, WEN ZL, LÜ XM, ZHANG XL, YU YX. Pollution, source and ecological risk assessment of typical toxic organic pollutants in the Dongjiang River[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 42(12): 147-155 (in Chinese).
- [17] XIE Q, LIU F, ZHANG XY, WU YP. Fatty acids and organohalogen contaminants in seafood from the Pearl River Estuary, China: risk-benefit analyses of seafood consumption[J]. Science of the Total Environment, 2023, 900: 165725.
- [18] XIE J, ZHANG G, WU Q, LUO M, CHEN D, ZHANG Y, HE L, LI Y, ZHANG Q, LIN T, JIANG G. First evidence and potential sources of novel brominated flame retardants and BDE 209 in the deepest ocean[J]. Journal of Hazardous Materials, 2023, 448: 130974.
- [19] DENG D, CHEN HX, TAM NFY. Temporal and spatial contamination of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in wastewater treatment plants in Hong Kong[J]. Science of the Total Environment, 2015, 502: 133-142.
- [20] 韩文亮, 刘豫, 冯凯文. 泉州山美水库及入库河流沉积物中多溴二苯醚的时空分异和降解分析[J]. 环境科学, 2020, 41(10): 4525-4538.
HAN WL, LIU Y, FENG KW. Spatiotemporal differentiation and degradation analysis of polybrominated diphenyl ethers in Sediments of Shanmei reservoir and its inflowing river, Quanzhou, China[J]. Environmental Science, 2020, 41(10): 4525-4538 (in Chinese).
- [21] GU SY, EKPEGHERE KI, KIM HY, LEE IS, KIM DH, CHOO G, OH JE. Brominated flame retardants in marine environment focused on aquaculture area: occurrence, source and bioaccumulation[J]. Science of the Total Environment, 2017, 601: 1182-1191.
- [22] AGARWAL V, BLANTON JM, PODELL S, TATON A, SCHORN MA, BUSCH J, LIN ZJ, SCHMIDT EW, JENSEN PR, PAUL VJ, BIGGS JS, GOLDEN JW, ALLEN EE, MOORE BS. Metagenomic discovery of polybrominated diphenyl ether biosynthesis by marine sponges[J]. Nature Chemical Biology, 2017, 13(5): 537-543.
- [23] BERISTAIN-MONTIEL E, VILLALOBOS-PIETRINI R, NUNEZ-VILCHIS A, ARIAS-LOAIZA GE, HERNANDEZ-PANIAGUA IY, AMADOR-MUNOZ O. Polybrominated diphenyl ethers and organochloride pesticides in the organic matter of air suspended particles in Mexico valley: a diagnostic to evaluate public policies[J]. Environmental Pollution, 2020, 267: 115637.
- [24] 金漫彤, 陆朱豪, 郇林军, 沈学优, 张顺飞. 典型室内公共场所灰尘中 PBDEs 污染特征及源解析[J]. 中国环境科学, 2021, 41(4): 1878-1885.
JIN M T, LU ZH, LI LJ, SEN XY, ZHANG SF. Pollution characteristics and source analysis of PBDEs in dust in typical public places[J]. China Environmental Science, 2021, 41(4): 1878-1885 (in Chinese).
- [25] IBETO C, AJU E, IMAFIDON B, OKONGWU D. Exposure evaluation and risk assessment of polybrominated diphenyl ethers in dust from microenvironments in Nsukka, Nigeria[J]. Environmental Science and Pollution Research, 2021, 28(25): 32374-32385.
- [26] PORTET-KOLTALO F, GUIBERT N, MORIN C, DE MENGIN-FONDRAGON F, FROUARD A. Evaluation of polybrominated diphenyl ether (PBDE) flame retardants from various materials in professional seating furnishing wastes from French flows[J]. Waste Management, 2021, 131: 108-116.
- [27] 张可, 刘福义, 陈伟, 陈佳, 黄俊, 陈强. 玉米芯吸附-海藻酸钠固定微生物对十溴联苯醚的降解[J]. 应用与环境生物学报, 2016, 22(5): 904-910.
ZHANG K, LIU FY, CHEN W, CHEN J, HUANG Q. Degradation of decabromodiphenyl ether by corn-cob-sodium alginate immobilized bacteria[J]. Chinese Journal of Applied and Environmental Biology, 2016, 22(5): 904-910 (in Chinese).
- [28] WU Q, LI H, KUO DT, CHEN S, MAI B, LI H, LIU Z, DENG M, ZHANG H, HU XJEP. Occurrence of PBDEs and alternative halogenated flame retardants in sewage sludge from the industrial city of Guangzhou, China[J]. Environmental Pollution, 2017, 220: 63-71.
- [29] SUN Y, TENG Y, ZHAO L, LI R, REN WJ. Non-negligibly negative role of e-waste-derived pyrogenic carbon in the soil washing of copper and polybrominated diphenyl ethers[J]. Journal of Hazardous Materials, 2023, 458: 131841.
- [30] ZHOU YX, SUN JJ, WANG L, ZHU GH, LI MF, LIU JS, LI ZG, GONG HP, WU CW, YIN G. Multiple classes of chemical contaminants in soil from an e-waste disposal site in China: occurrence and spatial distribution[J]. Science of the Total Environment, 2021, 752: 141924.

- [31] 张胜军, 周欣, 李沐霏, 朱国华, 巩宏平, 王玲, 刘劲松. 电子垃圾拆解区周边农田土壤中多溴联苯醚污染特征及其环境迁移行为研究[J]. 环境污染与防治, 2018, 40(7): 819-823.
ZHANG SJ, ZHOU X, LI MF, ZHU GH, GONG HP, WANG L, LIU JS. Pollution characteristics and environmental transport behavior of PBDEs in agriculture soil around an electronic waste dismantling venue[J]. Environmental Pollution & Control, 2018, 40(7): 819-823 (in Chinese).
- [32] 魏抱楷, 柳晨, 王英, 金军. 浙江省台州市电子垃圾拆解地多溴联苯醚浓度水平分布特征和迁移趋势[J]. 环境科学, 2020, 41(10): 4740-4748.
WEI BK, LIU C, WANG Y, JIN J. Polybrominated diphenyl ether in e-waste dismantling sites in taizhou city, Zhejiang Province: concentration, distribution, and migration trend[J]. Environmental Science, 2020, 41(10): 4740-4748 (in Chinese).
- [33] OLORUNTOBA K, SINDIKU O, OSIBANJO O, WEBER R. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) concentrations in soil, sediment and water samples around electronic wastes dumpsites in Lagos, Nigeria[J]. Emerging Contaminants, 2022, 8: 206-215.
- [34] HAN Y, CHENG JL, HE L, ZHANG MN, REN S, SUN JZ, XING XY, TANG ZW. Polybrominated diphenyl ethers in soils from Tianjin, North China: distribution, health risk, and temporal trends[J]. Environmental Geochemistry and Health, 2021, 43(3): 1177-1191.
- [35] 郑晓波, 罗孝俊, 麦碧娴. 持久性卤代有机污染物(PHCs)在食物网中的生物放大研究进展[J]. 矿物岩石地球化学通报, 2020, 39(1): 30-43.
ZHEN XB, LUO XJ, MAI BX. Research progress on biomagnification of persistent halogenated compounds (PHCs) in food webs[J]. Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry, 2020, 39(1): 30-43 (in Chinese).
- [36] WU JP, LUO XJ, ZHANG Y, CHEN SJ, MAI BX, GUAN YT, YANG ZY. Residues of polybrominated diphenyl ethers in frogs (*Rana limnocharis*) from a contaminated site, South China: tissue distribution, biomagnification, and maternal transfer[J]. Environmental Science & Technology, 2009, 43(14): 5212-5217.
- [37] LU R, CAO X, ZHENG X, ZENG Y, JIANG Y, MAI B. Biomagnification and elimination effects of persistent organic pollutants in a typical wetland food web from South China[J]. Journal of Hazardous Materials, 2023, 457: 131733.
- [38] WU X, CHEN L, LI X, CAO X, ZHENG X, LI R, ZHANG JE, LUO X, MAI B. Trophic transfer of methylmercury and brominated flame retardants in adjacent riparian and aquatic food webs: ¹³C indicates biotransport of contaminants through food webs[J]. Environmental Pollution, 2022, 306: 119433.
- [39] 任子贺, 曾艳红, 唐斌, 罗孝俊, 黄晨晨, 麦碧娴. 水生和陆生生物体中卤系阻燃剂的差异性富集研究: 以鲢鱼和家鸽为例[J]. 生态毒理学报, 2018, 13(1): 163-168.
REN ZH, ZENG YH, TANG B, LUO XJ, HUANG CC, MAI BX. Bioaccumulative characteristics of halogenated flame retardants in aquatic and terrestrial biotas: a case study of catfish and pigeons[J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2018, 13(1): 163-168 (in Chinese).
- [40] 江逸野, 曾艳红, 张艳婷, 唐斌, 罗孝俊, 麦碧娴. 卤代有机污染物的组织差异性生物富集研究[J]. 生态毒理学报, 2022, 17(4): 141-149.
JIANG YY, ZENG YH, ZHANG YT, TANG B, LUO XJ, MAI BX. Tissue-specific bioaccumulation of halogenated organic pollutants in fish[J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2022, 17(4): 141-149 (in Chinese).
- [41] CHAI MW, LI RL, SHI C, SHEN XX, LI RY, ZAN QJ. Contamination of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in urban mangroves of Southern China[J]. Science of the Total Environment, 2019, 646: 390-399.
- [42] ZHANG YQ, TANG CX, DONG Y, WU CC, BAO LJ, ZENG EY. Effects of cooking on oral bioaccessibility of PBDEs, MeO-PBDEs, and OH-PBDEs in fish (tilapia) and chicken egg[J]. Science of the Total Environment, 2020, 748: 142310.
- [43] PIETRON W, PAJUREK M, MIKOLAJCZYK S, MASZEWSKI S, WARENIK-BANY M, PISKORSKA-PLISZCZYNSKA J. Exposure to PBDEs associated with farm animal meat consumption[J]. Chemosphere, 2019, 224: 58-64.
- [44] CHARLES D, BERG V, NOST TH, WILSGAARD T, BERGDAHL IA, HUBER S, AYOTTE P, AVERINA M, SANDANGER T, RYLANDER C. Polybrominated diphenyl ethers in type 2 diabetes mellitus cases and controls: repeated measurements prior to and after diagnosis[J]. International Journal of Hygiene and Environmental Health, 2023, 249: 114148.
- [45] CHEN YR, LV JY, FU L, WU Y, ZHOU S, LIU SW, ZHENG LJ, FENG WR, ZHANG L. Metabolome-wide association study of four groups of persistent organic pollutants and abnormal blood lipids[J]. Environment International, 2023, 173: 107817.

- [46] QIU YW, ZENG EY, QIU HL, YU KF, CAI SQ. Bioconcentration of polybrominated diphenyl ethers and organochlorine pesticides in algae is an important contaminant route to higher trophic levels[J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 579: 1885-1893.
- [47] 王鑫格, 李娜, 韩颖楠, 马梅, 吴兴华, 李翀, 王殿常. 二噁英及类二噁英污染物致免疫毒性作用机制研究进展[J]. *生态毒理学报*, 2023, 18(1): 138-148.
WANG XG, LI N, HAN YN, MA M, WU XH, LI C, WANG DC. Research progress on immunotoxic mechanism of dioxins and dioxin-like pollutants[J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2023, 18(1): 138-148 (in Chinese).
- [48] DU XD, LI HL, LIANG JH, WANG R, HUANG KB, HAYAT W, CAI LM, TAO XQ, DANG Z, LU GN. Hydrogen-donor-controlled polybrominated dibenzofuran (PBDF) formation from polybrominated diphenyl ether (PBDE) photolysis in solutions: competition mechanisms of radical-based cyclization and hydrogen abstraction reactions[J]. *Environmental Science & Technology*, 2023, 57(20): 7777-7788.
- [49] MIZUKAWA H, NOMIYAMA K, NAKATSU S, IWATA H, YOO J, KUBOTA A, YAMAMOTO M, ISHIZUKA M, IKENAKA Y, NAKAYAMA SMM, KUNISUE T, TANABE S. Organohalogen compounds in pet dog and cat: do pets biotransform natural brominated products in food to harmful hydroxylated substances?[J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(1): 444-452.
- [50] XU XH, WANG GQ, LI YJ, ZHANG YF. Biotransformation kinetics and pathways of 2,2',4,4'-tetrabromodiphenyl ether (BDE-47) and its hydroxylated and methoxylated derivatives (6-OH-BDE-47 and 6-MeO-BDE-47) in earthworms (*Eisenia fetida*)[J]. *Science of the Total Environment*, 2023, 855: 158934.
- [51] LIU HL, TANG S, ZHENG XM, ZHU YT, MA ZY, LIU CS, HECKER M, SAUNDERS DMV, GIESY JP, ZHANG XW, YU HX. Bioaccumulation, biotransformation, and toxicity of BDE-47, 6-OH-BDE-47, and 6-MeO-BDE-47 in early life-stages of zebrafish (*Danio rerio*)[J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, 49(3): 1823-1833.
- [52] LI P, GAO H, DONG LX, LIU LM, ZHOU GY, LUO C, TIAN ZY, XIA T, WANG AG, ZHANG S. Perinatal low-dose PBDE-47 exposure hampered thyroglobulin turnover and induced thyroid cell apoptosis by triggering ER stress and lysosomal destabilization contributing to thyroid toxicity in adult female rats[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, 392: 122265.
- [53] JI FF, SREENIVASMURTHY SG, WEI JT, SHAO XJ, LUAN HM, ZHU L, SONG JX, LIU LF, LI M, CAI ZW. Study of BDE-47 induced Parkinson's disease-like metabolic changes in C57BL/6 mice by integrated metabolomic, lipidomic and proteomic analysis[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2019, 378: 120738.
- [54] WEI JT, LI XN, XIANG L, SONG YY, LIU YC, JIANG YY, CAI ZW. Metabolomics and lipidomics study unveils the impact of polybrominated diphenyl ether-47 on breast cancer mice[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, 390: 121451.
- [55] ABAFE OA, HARRAD S, ABDALLAH MA. Novel insights into the dermal bioaccessibility and human exposure to brominated flame retardant additives in microplastics[J]. *Environmental Science & Technology*, 2023, 57(29): 10554-10562.
- [56] QI X, YIN H, ZHU MH, SHAO PL, DANG Z. Understanding the role of biochar in affecting BDE-47 biodegradation by *Pseudomonas plecoglossicida*: an integrated analysis using chemical, biological, and metabolomic approaches[J]. *Water Research*, 2022, 220: 118679.
- [57] TANG SY, YIN H, ZHOU S, CHEN SN, PENG H, LIU ZH, DANG Z. Simultaneous Cr(VI) removal and 2,2',4,4'-tetrabromodiphenyl ether (BDE-47) biodegradation by *Pseudomonas aeruginosa* in liquid medium[J]. *Chemosphere*, 2016, 150: 24-32.
- [58] LIU Y, GONG AJ, QIU LN, LI JR, LI FK. Biodegradation of decabromodiphenyl ether (BDE-209) by crude enzyme extract from *Pseudomonas aeruginosa*[J]. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2015, 12(9): 11829-11847.
- [59] HUANG ZP, CHEN YC, HU YY. The role of nanoscale zerovalent iron particles in the biosorption and biodegradation of BDE-47 by *Pseudomonas stutzeri* under aerobic conditions[J]. *International Biodeterioration & Biodegradation*, 2016, 112: 51-58.
- [60] TANG SY, YIN H, CHEN SN, PENG H, CHANG JJ, LIU ZH, DANG Z. Aerobic degradation of BDE-209 by *Enterococcus casseliflavus*: isolation, identification and cell changes during degradation process[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2016, 308: 335-342.
- [61] 谢苗苗, 吴志能, 王曦, 顾捷, 陈林, 王莹莹. 一株 2,2',4,4'-四溴联苯醚(BDE-47)厌氧降解菌的筛选鉴定及降解特性[J]. *应用与环境生物学报*, 2018, 24(4): 915-920.

- XIE MM, WU ZN, WANG X, GU J, CHEN L, WANG YY. Isolation, identification, and the degradation characteristics of a BDE-47 degrading strain[J]. Chinese Journal of Applied and Environmental Biology, 2018, 24(4): 915-920 (in Chinese).
- [62] CHEN J, WANG C, SHEN ZJ, GAO GF, ZHENG HL. Insight into the long-term effect of mangrove species on removal of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) from BDE-47 contaminated sediments[J]. Science of the Total Environment, 2017, 575: 390-399.
- [63] 郭浩, 夏慧丽, 王书琪, 赵晓祥. 多溴联苯醚好氧降解菌 GH10 的筛选及降解特性研究[J]. 安全与环境学报, 2015, 15(4): 216-221.
- GUO H, XIA HL, WANG SQ, ZHAO XY. Isolation of an aerobic bacterial strain GH10 capable of PBDEs-degradation and its bio-degradation behaviors[J]. Journal of Safety and Environment, 2015, 15(4): 216-221 (in Chinese).
- [64] 黄婷, 段星春, 陶雪琴, 谢莹莹, 党志, 卢桂宁. 2,2',4,4'-四溴联苯醚高效好氧降解菌的鉴定及其降解路径[J]. 环境科学学报, 2017, 37(12): 4705-4714.
- HUANG T, DUAN XC, TAO XQ, XIE YY, DANG Z, LU GN. Identification of an aerobic strain efficiently degrading 2,2',4,4'-tetrabromodiphenyl ether and its biodegradation pathway[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2017, 37(12): 4705-4714 (in Chinese).
- [65] 张可, 关允, 罗鸿兵, 陈伟, 陈佳, 格桑. 一株五溴联苯醚(BDE-99)降解菌的分离、鉴定及降解特性[J]. 环境工程学报, 2017, 11(5): 3287-3294.
- ZHANG K, GUANG Y, LUO HB, CHEN W, CHEN J, GE S. Isolation, identification and degradation characteristics of decabromo diphenylethers (BDE-99)-degrading strain[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2017, 11(5): 3287-3294 (in Chinese).
- [66] ZHANG YD, MAO GN, LIU RD, ZHOU XZ, BARTLAM M, WANG YY. Transcriptome profiling of *Stenotrophomonas* sp. strain WZN-1 reveals mechanisms of 2,2',4,4'-tetrabromodiphenyl ether (BDE-47) biotransformation[J]. Environmental Science & Technology, 2022, 56(16): 11288-11299.
- [67] 陈耀宁, 陈艳容, 黎媛萍, 曾光明, 马骥, 袁兴中, 晏铭, 伍艳馨, 张嘉超. 修复 2,2',4,4'-四溴联苯醚污染土壤的方法: CN106424129B[P]. 2019-12-06.
- CHEN YN, CHEN YR, LI YP, ZENG GM, MA S, YUAN XZ, YAN M, WU YX, ZHANG JC. Remediation methods for 2,2',4,4'-tetrabromodiphenyl ether contaminated soil: CN106424129B[P]. 2019-12-06 (in Chinese).
- [68] YU YY, YIN H, PENG H, LU GN, DANG Z. Biodegradation of decabromodiphenyl ether (BDE-209) using a novel microbial consortium GY1: cells viability, pathway, toxicity assessment, and microbial function prediction[J]. Science of the Total Environment, 2019, 668: 958-965.
- [69] WANG GG, LIU Y, TAO W, ZHAO XD, WANG HX, LOU YD, LI N, LIU YX. Assessing microbial degradation degree and bioavailability of BDE-153 in natural wetland soils: implication by compound-specific stable isotope analysis[J]. Environmental Pollution, 2020, 260: 114014.
- [70] CHANG YT, LO T, CHOU HL, LAIO YF, LIN CC, CHEN HT. Anaerobic biodegradation of decabromodiphenyl ether (BDE-209)-contaminated sediment by organic compost[J]. International Biodeterioration & Biodegradation, 2016, 113: 228-237.
- [71] 才满, 杜克久. 多溴联苯醚降解的代谢途径[J]. 材料导报, 2016, 30(11): 97-102, 109.
- CAI M, DU KJ. Catabolic pathways for the degradation of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs)[J]. Materials Reports, 2016, 30(11): 97-102, 109 (in Chinese).
- [72] WANG GG, GUO PX, LIU Y, LI CY, WANG X, WANG HX. Mechanistic characterization of anaerobic microbial degradation of BTBPE in coastal wetland soils: implication by compound-specific stable isotope analysis[J]. Journal of Environmental Management, 2023, 335: 117622.
- [73] GU CG, WANG L, JIN ZH, FAN XL, GAO ZY, YANG XL, SUN C, JIANG X. Congener-specificity, dioxygenation dependency and association with enzyme binding for biodegradation of polybrominated diphenyl ethers by typical aerobic bacteria: experimental and theoretical studies[J]. Chemosphere, 2023, 314: 137697.
- [74] WU Z, XIE M, LI Y, GAO G, BARTLAM M, WANG YJAE. Biodegradation of decabromodiphenyl ether (BDE 209) by a newly isolated bacterium from an e-waste recycling area[J]. AMB Express, 2018, 8: 1-12.
- [75] YANG YG, XU MY, HE ZL, GUO J, SUN GP, ZHOU JZ. Microbial electricity generation enhances decabromodiphenyl ether (BDE-209) degradation[J]. PLoS One, 2013, 8(8): e70686.
- [76] LI ZW, WANG JH. Analysis of the functional gene of

- degrading BDE-47 by *Acinetobacter pittii* GB-2 based on transcriptome sequencing[J]. *Gene*, 2022, 844: 146826.
- [77] CAO YJ, YIN H, PENG H, TANG SY, LU GN, DANG Z. Biodegradation of 2,2',4,4'-tetrabromodiphenyl ether (BDE-47) by *Phanerochaete chrysosporium* in the presence of Cd²⁺[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2017, 24(12): 11415-11424.
- [78] WANG LL, TANG LT, WANG R, WANG XY, YE JS, LONG Y. Biosorption and degradation of decabromodiphenyl ether by *Brevibacillus brevis* and the influence of decabromodiphenyl ether on cellular metabolic responses[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, 23(6): 5166-5178.
- [79] CHEN J, ZHOU HC, WANG C, ZHU CQ, TAM NFY. Short-term enhancement effect of nitrogen addition on microbial degradation and plant uptake of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in contaminated mangrove soil[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2015, 300: 84-92.
- [80] SU Q, YU J, FANG KQ, DONG PY, LI ZY, ZHANG WZ, LIU MX, XIANG LJ, CAI JX. Microbial removal of petroleum hydrocarbons from contaminated soil under arsenic stress[J]. *Toxics*, 2023, 11(2): 143.
- [81] WANG Y, CHEN SY, YANG X, HUANG XF, YANG YH, HE EK, WANG SQ, QIU RL. Degradation of 2,2',4,4'-tetrabromodiphenyl ether (BDE-47) by a nano zerovalent iron-activated persulfate process: the effect of metal ions[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2017, 317: 613-622.
- [82] 刘莉莉, 刘瑞红, 陈轶伦, 林匡飞. 铁碳微电解与微生物共作用降解 BDE-209[J]. *环境工程学报*, 2015, 9(12): 6161-6166.
- LIU LL, LIU RH, CHEN YL, LIN KY. Microbial degradation of BDE-209 coupled with Fe/C electrolysis[J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2015, 9(12): 6161-6166 (in Chinese).
- [83] LI P, MA RL, DONG LX, LIU LM, ZHOU GY, TIAN ZY, ZHAO Q, XIA T, ZHANG S, WANG AG. Autophagy impairment contributes to PBDE-47-induced developmental neurotoxicity and its relationship with apoptosis[J]. *Theranostics*, 2019, 9(15): 4375-4390.
- [84] TI QQ, GU CG, CAI J, FAN XL, ZHANG YP, BIAN YR, SUN C, JIANG X. Understanding the role of bacterial cellular adsorption, accumulation and bioavailability regulation by biosurfactant in affecting biodegradation efficacy of polybrominated diphenyl ethers[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, 393: 122382.
- [85] TANG SY, BAI JQ, YIN H, YE JS, PENG H, LIU ZH, DANG Z. Tea saponin enhanced biodegradation of decabromodiphenyl ether by *Brevibacillus brevis*[J]. *Chemosphere*, 2014, 114: 255-261.
- [86] MA J, ZHANG Q, CHEN F, LU SJ, WANG YF, LIANG HG. Simultaneous removal of copper and biodegradation of BDE-209 with soil microbial fuel cells[J]. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 2021, 9(4): 105593.
- [87] YANG MY, JIN XQ, HUANG WN, SHEN Q, SUN CY. Humic acid induced indirect photolysis of polybrominated diphenyl ethers under visible light irradiation[J]. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 2022, 10(3): 108002.
- [88] XIANG LL, HARINDINTWALI JD, WANG F, BIAN YR, ZHAO ZL, WANG ZQ, WANG Y, MEI Z, JIANG X, SCHAFFER A, XING BS. Manure- and straw-derived biochars reduce the ecological risk of PBDE and promote nitrogen cycling by shaping microbiomes in PBDE-contaminated soil[J]. *Chemosphere*, 2023, 312: 137262.
- [89] XIANG LL, SHENG HJ, GU CG, MARC RG, WANG Y, BIAN YR, JIANG X, WANG F. Biochar combined with compost to reduce the mobility, bioavailability and plant uptake of 2,2',4,4'-tetrabrominated diphenyl ether in soil[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2019, 374: 341-348.
- [90] CHEN YN, MA S, LI YP, YAN M, ZENG GM, ZHANG JC, ZHANG J, TAN XB. Microbiological study on bioremediation of 2,2',4,4'-tetrabromodiphenyl ether (BDE-47) contaminated soil by agricultural waste composting[J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2016, 100(22): 9709-9718.
- [91] LUO HY, WAN Y, LI J, CAI YH, DANG Z, YIN H. MgxCu-biochar activated peroxydisulfate triggers reductive species for the reduction and enhanced electron-transfer degradation of electron-deficient aromatic pollutants[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2023, 452: 131267.