

Contents characteristics of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in indoor household dust

Kyeo-Keun Kim[★]

Department of Environmental Engineering, Cheongju University, Cheongju 360-764, Korea

(Received August 7, 2012; Revised February 4, 2013; Accepted March 7, 2013)

실내 먼지 중 브롬화난연제 함유특성 연구

김 교 근[★]

청주대학교 환경공학과

(2012. 8. 7. 접수, 2013. 2. 4. 수정, 2013. 3. 7. 승인)

Abstract: The objective of this study was to understand the content characteristic of polybrominated biphenyl ethers in indoor household dust. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) are widely used as additive brominated flame retardants (BFR) in electrical and electronic equipment, and insulation in the indoor environment, and may be released indoors via volatilization or as dusts. The indoor household dust samples were collected from January to December in 2011 and measured for the concentrations, congener profiles and possible sources of PBDEs. The concentrations of 22 congeners of PBDEs (the sum of PBDEs 47, 49, 66, 71, 77, 85, 99, 100, 119, 126, 138, 153, 154, 156, 183, 184, 191, 196, 197, 206, 207 and 209) were 35.22~575.88 ng/g for apartment dust samples and 524.44 ng/g for laboratory dust sample. The eight congeners of BDE-47, 153, 183, 196, 197, 206, 207, and 209 are detected in the more than 1 ng/g. The three congeners of BDE-206, 207 and 209 in all dust samples were detected.

요 약: 본 연구에서는 전기전자제품에 브롬화난연제로 널리 사용되고 있는 폴리브롬화디페닐에테르가 우리의 생활에서 어떻게 배출되는지 파악하고자 가정에서 발생되는 먼지 시료를 2011년 1월부터 12월까지 채취·분석하여 이성체 함유특성을 조사하였다. 아파트와 실험실에서 채취한 실내 먼지 중 총 22종의 PBDEs (47, 49, 66, 71, 77, 85, 99, 100, 119, 126, 138, 153, 154, 156, 183, 184, 191, 196, 197, 206, 207, 209)를 분석하여 정량한 결과, 아파트 실내 먼지에서 검출된 PBDEs 농도는 35.22~575.88 ng/g으로 나타났으며, 실험실에서 겨울에 채취된 먼지 중에서는 PBDEs가 524.44 ng/g 검출되었다. 분석시료 중 1 ng/g 이상 검출된 이성체는 BDE-47, 153, 183, 196, 197, 206, 207, 209 등 8종으로 조사되었으며, 모든 시료에서는 BDE-206, 207, 209 3종의 이성체가 검출되었다.

Key words: PBDE, BFR, household dust

[★] Corresponding author

Phone : +82-(0)43-229-8574 Fax : +82-(0)43-229-8906

E-mail : kyeokim@cju.ac.kr

1. 서 론

잔류성 유기오염물질(POPs, persistent organic pollutants)은 환경 중에서 독성, 잔류성, 생물 농축성 및 장거리이동성 등의 특징을 가진 물질로서 인체 및 생태계에 독성을 나타내는 다이옥신, 폴리염화비페닐류(PCBs, polychlorinated biphenyls) 및 유기염소계 농약류 등이 있다. 이들 물질은 환경내에서 분해되지 않고 먹이사슬을 통하여 동물의 체내에 축적되며 면역 체계교란, 중추신경계 손상 등을 초래하는 물질로 알려져 있다. 이들 물질의 저감 또는 근절을 목표로 스톡홀름 협약이 2004년 발효되었고, 우리나라는 2007년에 비준하여 현재 잔류성유기오염물질관리법을 통하여 잔류성 유기오염물질의 생산, 사용 및 배출을 관리하고 있다.^{1,3} 또한, 스톡홀름 협약에서는 이들 12종(dioxins, PCBs 및 DDT, aldrin, hexachlorobenzene 등 유기염소계 농약류) 이외에 잔류성유기오염물질의 특성을 가지는 화학물질을 검토하여 2009년 제4차 스톡홀름협약 당사국 총회에서 추가로 9개 물질이 등재되어 2010년 5월부터 규제가 되고 있다. 새롭게 잔류성 유기오염물질로 등재된 화학물질은 클로로테콘(chlorodecone), 린단(lindane), 헥사클로로사이클로헥산(hexachlorocyclohexane, α -HCH 및 β -HCH), 펜타브로모디페닐에테르(pentabromodiphenyl ether), 옥타브로모디페닐에테르(octabromodiphenyl ether), 폴리브롬화비페닐(polybrominated biphenyl), 펜타클로로벤젠(pentachlorobenzene), 과불화합물(perfluoro compounds)이다.^{1,3}

최근 플라스틱의 용도가 건축용, 자동차용, 전기·전자제품, 항공기, 선박 등으로 광범위하게 확대됨에 따라, 화재발생시 안전을 고려하여 이들 제품의 난연화 필요성이 지속적으로 증대되고 있다. 플라스틱은 대부분 탄소, 수소, 산소로 구성된 유기물질로 연소하기 쉬운 성질을 가지고 있어서, 이와 같은 성질을 물리·화학적으로 개질하여 잘 타지 못하도록 첨가하는 물질을 난연제라고 한다.³⁻⁵ 신규 POPs 물질로 등재된 폴리브롬화디페닐이써(PBDEs, polybrominated diphenyl ethers)는 플라스틱, 전기·전자회로소자, TV, 건축자재, 섬유 등의 가연성 물질 또는 재료에 첨가하여 발화를 방지하거나 지연 시킬 목적으로 사용된 대표적인 브롬화난연제 중 하나이다. PBDEs는 브롬화탄화수소류 중의 하나로 비페닐기의 수소가 브롬으로 치환되어 형성된다. PBDEs는 자연적으로 발생되지 않는 것으로 알려져 있으나, $C_{12}H_{(10-x)}Br_{(x+y)}O$ 의 분자식을 가지

며 페닐기의 브롬원자의 위치와 수에 따라 209종의 동족체가 존재한다. PBDEs는 급성독성이 낮으며 결합된 브롬수에 따라 독성이 다르며 Deca-BDE는 미국 ATSDR (Agency for Toxic Substances and Disease Registry)에서 B2(인간에게 암을 일으킬 가능성이 있는 물질) 등급 물질로 관리하고 있다. 특히, 산업화에 따라 전기·전자 제품의 사용이 급격하게 증가되고 있으며, 이로 인한 난연제 화합물의 사용 및 생산량도 증가되고 있는 실정이다. 또한, 전기전자제품의 분리, 파쇄 등의 재활용 과정이나 소각 등의 폐기과정에서 공기중으로 배출되는 등의 환경오염도 점점 더 증대되고 있는 실정이다.^{4,6}

따라서, 스톡홀름 협약에서는 2010년부터 사용을 제한하는 규제가 시작되었으며, 유럽연합에서는 2006년부터 전기·전자제품에 함유된 브롬화난연제의 재활용을 규제하고자 RoHS (The Restriction of the use of certain Hazardous Substances in electrical and electronic equipment) 환경규제 대상물질로 관리하고 있다. 그러므로 본 연구에서는 국제적으로 관심의 대상이 되고 있는 브롬화난연제의 효율적인 관리를 위하여 가정 및 실험실 등의 실내공간에서 사용하고 있는 전기전자제품에 함유된 브롬화난연제가 우리의 생활에서 어떻게 배출되는지 파악하고자 가정에서 발생하는 먼지 시료를 계절별로 채취·분석하여 배출특성을 조사하였다. 또한, 우리나라에서 주로 사용되고 있는 전기·전자제품 중 브롬화난연제 함유특성을 토대로 향후 전기·전자제품 폐기물의 재활용 및 최종 처리시 적정처리 방안을 마련하기 위한 기초자료로 활용될 것이다.

2. 연구내용 및 실험방법

2.1. 시료채취 및 분석

경기도 소재의 아파트에서 2011년 1월부터 12월까지 집안에서 발생하는 먼지 시료를 채집하였다(Fig. 1). 가정에서 발생된 먼지는 Table 1과 같이 봄, 여름, 가을, 겨울로 구분하여 3개월 동안 채집된 청소기의 먼지를 수집하여 헤파물을 제거하고 500 mesh 체로 쳐서 분석 시료를 준비하였다. 또한, GC/ECD (Gas Chromatography/Electron Capture Detector) 등 8종의 분석기기가 설치된 실험실에서 먼지 시료를 채취하여 PBDEs 배출 특성을 비교하였다. 또한, 시판되고 있는 전기·전자제품에 사용된 난연제의 종류 및 양은 기업의 자료로 정확하게 확인되지 않아 제품에 주로 많이 사용되고 있는 제품으로 알려진 Penta-BDE (DE-71™,

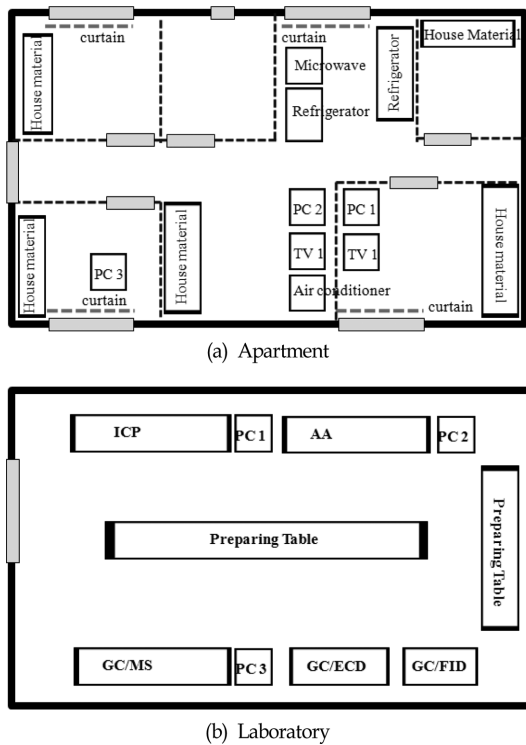


Fig. 1. Model room experiments to investigate BFR emission from products.

Bromkal 70-5DE™와 Deca-BDE (Saytex 102E™, Bromkal 82-OED™)의 구성성분과 비교·검토 하였다.

2.2. 시료분석

채취된 먼지 시료는 환경부 POPs 공정시험기준⁷의 토양 중 브롬화난연제 분석방법을 참고로하여 동위원소희석법과 HRGC/HRMS (High Resolution Gas Chromatography/High Resolution Mass Spectrometry)로 분석하였다. 채취된 먼지시료는 전량 톨루엔 500 mL로 24시간 동안 속실텯 추출하였다. 추출액은 약 2 mL까지 농축한 다음, 전량 헥산으로 용매전환 후 황산처리를 하였으며 다층실리카겔 컬럼(중성-염기성-중성-산

성-중성 순으로 충전), 알루미늄 컬럼 정제 작업을 수행하였다. 기기분석은 50 µL까지 농축한 시료에 실린지 첨가용 내부표준물질로 ¹³C-BDE-138을 2 ng 첨가하고 DB-5HT (15 m × 0.25 mm i.d., 0.1 µm, J&W Scientific) 컬럼을 이용하여 HRGC/HRMS로 분해능 10,000 이상 (10% valley)에서 EI-SIM (Electron impact-selected ion monitoring) 모드로 수행하였다.

2.3. 표준용액 및 정도관리

먼지 중 PBDEs 분석을 위해 Native(분석하고자 하는 대상 물질의 표준물질), Labeled(추출 및 정제 전에 일정한 농도로 주입하는 물질로 분석에 의한 손실정도를 확인하기 위한 표준물질), Syringe standards (Labelled 표준물질의 회수율을 확인하게 위해 분석직전에 주입하는 표준물질) 그리고 Calibration standard (CS, 정량용 표준물질)이 사용되었다. Native standard는 13종과 labelled standard 4,4'-dibromo-octafluorobiphenyl (DBOBFB) 이 50 ng/mL~450 ng/mL의 5단계 농도 범위로 검량선을 작성하여 정량하였으며, PCBs 209 (200 ng)이 syringe spike standard로 사용되었다. 다음 Table 2에 분석조건을 정리하였으며, 실험실에서 용매나 초차에 의한 오염 여부를 검토하기 위하여 바탕시료를 분석하였다. PBDEs 분석에 첨가된 13종의 ¹³C-labelled 이

Table 2. Analytical conditions of HRGC/HRMS

Item	HRGC/HRMS
Column	DB-5HT (15 m × 0.25 mm × 0.1 µm)
Injection volume	1 µL (splitless)
Carrier gas	Helium (99.9999%) at 1.0 mL/min.
Injection temp.	270 °C
Transfer line temp.	270 °C
Oven temp.	100 °C (5 min) → 4 °C/min to 200 °C (5 min) → 10 °C/min to 300 °C for 10 min
Ionization mode	EI
Detection	SIM
Ionization voltage	35 eV
Resolution	>10,000 (10% valley)

Table 1. Summary of samples

Sample No.	Sampling period	Sample amounts(g)	Comments	
House	Sample-1	January~March	Spring season	
	Sample-2	April~July	Summer season	
	Sample-3	July~October	Fall season	
	Sample-4	November~December	Winter season	
Laboratory	Sample-5	December	6.285	Winter season

성질체의 평균 회수율은 50~80% 범위로 POPs 공정 시험기준에서 제시한 25~150%를 만족하였다. 검출한계는 S/N비 3이상으로 하였으며, 각각 동족체별로 mono-, di-, tri-BDE는 1 pg/g, tetra-, penta-BDE는 10 pg/g, hexa-, hepta-BDEs는 20 pg/g, octa-, nona-BDEs 20 pg/g 그리고 deca-BDEs는 30 pg/g 이었다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 실내 먼지 중 PBDEs 분석결과

아파트에서 채취한 4건의 시료와 실험실에서 채취한 1건의 실내 먼지 중 PBDEs 분석결과를 다음의 Table 3에 정리하였다. 분석대상 항목은 Tetra-BDE에서 Deca-BDE까지 총 22종의 PBDEs (IUPAC (International Union of Pure and Applied Chemistry) No. 47, 49, 66, 71, 77, 85, 99, 100, 119, 126, 138, 153, 154, 156, 183, 184, 191, 196, 197, 206, 207, 209)를 분석하여 정량하였다.

Table 3에 나타난 바와 같이 실내 아파트의 먼지에서 검출된 PBDEs 농도는 35.22~575.88 ng/g으로 나타났으며, 이성체의 배출패턴을 비교하기 위해 실험실에서 겨울에 채취된 먼지 중에서는 PBDEs가 524.44 ng/g 검출되었다. PBDEs가 가장 높은 농도로 검출된 시료는 1월~3월까지 채취된 봄철시료로 575.88 ng/g으로 나타났으며, 다음으로 11월에서 12월에 채취된 시료에서 212.15 ng/g이 채취되었고, 8월에서 10월 중에 채취된 시료 86.46 ng/g으로 나타났다. 또한, 채취된 먼지 중 PBDEs가 가장 낮게 검출된 시료는 4월에서 7월에 채취된 시료로 35.22 ng/g이 검출되어, 환기가 비교적 잘되는 계절에 검출된 PBDEs의 농도가 낮은 것을 알 수 있었다.

본 연구에서 검출된 실내 먼지 중 PBDEs 검출농도를 발표된 연구결과와 비교해 보면 Table 4와 같다. Table 4에 나타난 바와 같이 영국은 927~54,628 ng/g 범위로 검출되었으며 다음으로 미국은 425~33,270 ng/g 범위로 나타났다. 또한 호주의 경우에는 79~19,159

Table 3. Concentrations of PBDEs in dust

(unit : ng/g)

Congener	House dust				Lab. dust sample-5
	Spring sample-1	Summer sample-2	Fall sample-3	Winter sample-4	
49-Tetra-BDE	0.69	0.00	0.04	0.26	0.50
71-Tetra-BDE	0.71	0.00	0.04	0.27	0.52
47-Tetra-BDE	6.98	0.02	0.45	1.40	2.72
66-Tetra-BDE	N.D.	0.00	0.02	0.04	0.11
77-Tetra-BDE	N.D.	0.01	0.00	0.01	N.D.
100-Penta-BDE	9.08	0.03	1.46	11.87	17.17
119-Penta-BDE	N.D.	N.D.	0.03	0.08	0.27
99-Penta-BDE	3.97	0.04	0.85	4.14	3.66
85-Penta-BDE	N.D.	0.01	N.D.	N.D.	N.D.
126-Penta-BDE	N.D.	0.01	N.D.	0.02	N.D.
154-Hexa-BDE	0.43	0.02	0.11	0.48	0.44
153-Hexa-BDE	1.03	0.03	0.21	0.85	1.20
138-Hexa-BDE	0.04	0.02	N.D.	N.D.	0.00
156-Hexa-BDE	N.D.	0.02	N.D.	0.01	N.D.
184-Hepta-BDE	0.21	0.01	0.02	0.20	0.53
183-Hepta-BDE	2.60	0.09	0.71	3.11	4.28
191-Hepta-BDE	0.50	0.02	0.02	0.10	0.28
196-Octa-BDE	3.46	0.11	0.22	0.43	0.71
197-Octa-BDE	4.32	0.15	0.47	1.67	2.79
206-Nona-BDE	67.72	1.52	6.10	13.99	30.00
207-Nona-BDE	76.32	2.87	5.76	13.38	32.56
209-Deca-BDE	397.81	30.23	69.93	159.82	426.68
Total	575.88	35.22	86.46	212.15	524.44

Table 4. Comparison the PBDEs concentration in house dust⁶⁻¹⁰

Country	Sample	Congeners	Concentration (ng/g)
		IUPAC No.	
Canada	House dust	PBDEs 17, 28, 47, 66, 100, 99, 85, 154, 153, 138, 183, 190, 209	123~182
China	House dust	PBDEs 28, 47, 66, 100, 99, 85, 154, 153, 183, 290	181~10,543
China	Office dust	PBDEs 28, 47, 66, 100, 99, 85, 154, 153, 183, 290	1,724~4,422
China	Outdoor dust	PBDEs 28, 47, 66, 100, 99, 85, 154, 153, 183, 290	95~3,332
Germany	House dust	PBDEs 47, 100, 99, 154, 153, 183, 290	N.D~339
Australia	House dust	PBDEs 47, 100, 99, 154, 153, 183, 290	79~19,159
Britain	House dust	PBDEs 47, 100, 99, 154, 153, 183, 290	927~54,628
USA	House dust	PBDEs 47, 100, 99, 154, 153, 183, 290	425~33,270
This study	House & Laboratory dust	PBDEs 47, 49, 66, 71, 77, 85, 99, 100, 119, 126, 138, 153, 154, 156, 183, 184, 191, 196, 197, 206, 207, 209	35.22~575.88

ng/g으로 보고되었으며, 중국은 181~10,543 ng/g 범위로 보고되었다. 반면에 독일은 339 ng/g 정도로 보고되었으며,⁸⁻¹² 본 연구결과에서 가장 높은 농도로 검출된 PBDEs 총합은 575.88 ng/g으로서 미국, 영국, 호주에 비해 낮은 수준으로 나타나, 난연제가 생산되기 시작한 초기에는 미국 등 선진국을 중심으로 사용되어 현재 미국이 가장 난연제에 많이 노출되어 있다는 연구결과와 일치하였다.¹³⁻¹⁵

3.2. 이성체 분포특성

본 연구에서는 분석대상 22종의 이성체의 분포특성

을 검토하고, 분석시료에서 주로 검출된 8종의 이성체를 중심으로 외국의 검출결과와 이성체 분포특성을 비교·검토하였다. 실내 먼지 중 22종의 PBDEs 분석 결과, 시료 중 1 ng/g 이상 검출된 이성체는 BDE-47, 153, 183, 196, 197, 206, 207, 209 등 8종으로 조사되었으며, 모든 분석 시료에서 BDE-206, 207, 209은 검출되었으며, 일부 이성체들은 불검출 되기도 하였다. Fig. 2에 나타난 바와 같이 시료별로 주요 3종의 이성체 (BDE-206, 207, 209)의 분포특성을 보면, BDE-209가 69.1~86%로 배출되었으며, BDE-207이 6~13%, 그리고 BDE-206이 4~12% 범위로 배출되었다. 또한,

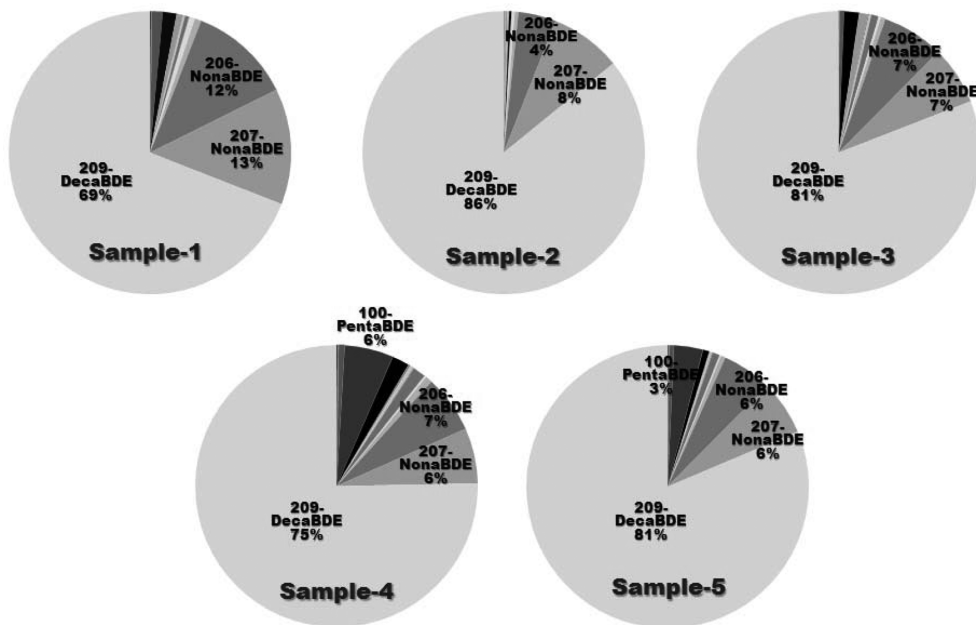


Fig. 2. Main congeners of collected samples.

Sample-1의 경우에는 주요 3종의 이성체이외에 BDE-47이 다음 순으로 1.2% 정도 차지하는 것으로 나타났다. 이는 기존에 분석한 국내 가전제품 중 함유 PBDEs의 대부분이 BDE-209인 것과 일치하는 결과이다.

외국의 실내 먼지 중 주요 이성체 분포특성을 살펴보면 다음 Fig. 3과 같다. 그림에 나타난 바와 같이 본 연구 결과가 기존의 연구결과에 비해 낮게 나타났다. 특히 미국의 실내 먼지에서는 BDE-209 다음으로

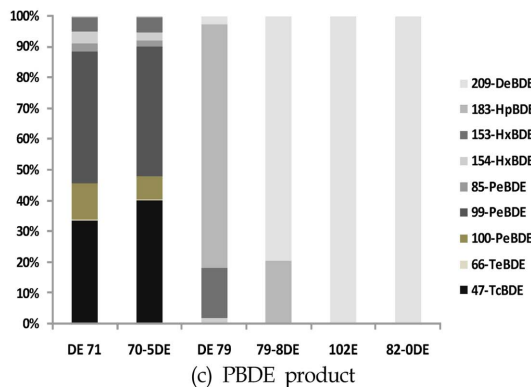
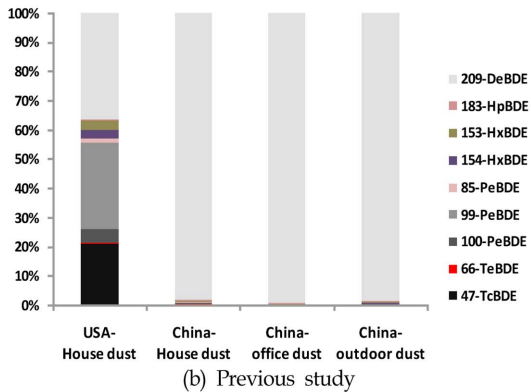
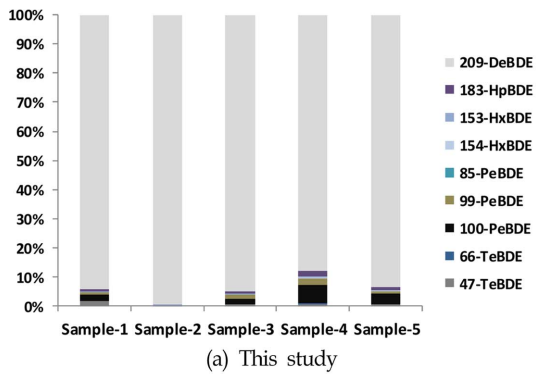


Fig. 3. Comparison the congener pattern of PBDEs technical products.

BDE-47이 차지하는 비율이 높은 것으로 조사되어 국내의 검출패턴과는 다른 것으로 조사되었으나, 중국의 실내 먼지의 배출패턴은 거의 대부분 BDE-209이 배출되는 것으로 조사되어 국내의 검출패턴과 일치하는 것으로 조사되었다. 그러므로 중국에서 채취하여 분석한 전기전자제품시료는 주로 Deca-BDE가 사용된 제품인 것으로 판단된다.

또한, Fig. 3에 나타난 바와 같이 상품으로 사용되는 Penta-BDE (DE 71, 70-5DE)의 주요 이성체는 BDE-47, 99, 100이며, Octa-BDE 제품의 주요 이성체는 BDE-183이다. 가장 많이 사용되고 있는 Deca-BDE는 95%이상 102E나 82-OED로 구성되어있다. 국내의 분석한 먼지 시료의 이성체 패턴은 BDE-209의 비율이 5개 시료 평균 78.4%를 차지하고 있어 대부분 Deca-BDE로 구성된 102E (96% 이상)나 82-OED (91% 이상)의 영향을 받은 것으로 판단되었으며, 미국의 먼지 시료는 IUPAC No. 99, 100의 분포 비율이 높아 주로 사용되는 난연제 제품 Penta-BDE (DE 71, 70-5DE)의 영향을 직접적으로 받은 것으로 보인다.¹²⁻¹⁴

3.3. 실내 먼지 중 PBDEs 함유특성 고찰

실내 먼지 중 PBDEs를 분석한 결과 주로 BDE-206, 207, 209 3종이 검출되었으며, 이 중에서 특히 BDE-209이 거의 대부분을 차지하고 있는 것으로 나타났다. 그러므로, 먼지 중에서 검출된 BDE-209 이외의 이성체에 대해서는 다른 상품의 사용에 의해서보다는 BDE-209의 환경 중 분해 결과로 판단된다. 현재 주로 사용되고 있는 Deca-BDE는 사용과정 중에 다음의 Fig. 4와 같이 시간이 경과됨에 따라 탈브롬화되어 다양한 이성체의 PBDEs가 먼지 중에서 검출될 수 있다. Hua 등¹⁵은 실제 태양광을 가지고 시간별로 분해 산물을 확인한 결과 최종적으로 삼브롬화물 또는 사브롬화물까지 분해된다고 보고한 바 있다. 이를 토대로 볼 때, 먼지 중에서 검출된 BDE-209 외의 이성체

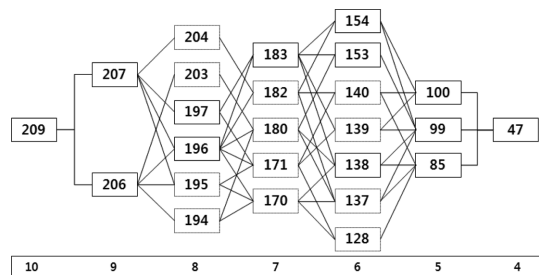


Fig. 4. Debromination of Deca-BDE.¹³

는 그 비율이 높지 않아서 직접적인 제품(Penta 또는 Octa)의 영향보다는 환경 중 분해의 결과로 판단된다.

4. 결 론

본 연구에서는 국제적으로 관심의 대상이 되고 있는 브롬화난연제의 효율적인 관리를 위하여 가정에서 사용하고 있는 전기전자제품에 함유된 브롬화난연제가 우리의 생활에서 어떻게 배출되는지 파악하고자 집에서 발생하는 먼지 시료를 채취·분석하여 배출특성을 조사하였다.

아파트에서 채취한 4건의 시료와 실험실에서 채취한 1건의 실내 먼지 중 총 22종의 PBDEs (BDE-47, 49, 66, 71, 77, 85, 99, 100, 119, 126, 138, 153, 154, 156, 183, 184, 191, 196, 197, 206, 207, 209)를 분석하여 정량한 결과, 아파트 실내 먼지에서 검출된 PBDEs 농도는 35.22~575.88 ng/g으로 나타났으며, 실험실에서 거울에 채취된 먼지 중에서는 PBDEs가 524.44 ng/g 검출되었다. 실내 먼지 중 22종의 PBDEs 분석결과, 시료 중 1 ng/g 이상 검출된 이성체는 BDE-47, 153, 183, 196, 197, 206, 207, 209 등 8종으로 조사되었으며, 모든 분석 시료에서 검출된 주요 3종의 이성체(BDE-206, 207, 209)의 분포특성을 보면, BDE-209가 69.1~86%로 배출되었으며, BDE-207이 6~13% 그리고 BDE-206이 4~12% 범위로 배출되었다. 특히 미국의 실내 먼지에서는 BDE-47이 차지하는 비율이 높아 국내의 검출패턴과는 다르게 나타났으나, 중국은 BDE-209가 주로 배출되어 국내의 검출패턴과 일치하는 것으로 조사되었다. 국내의 분석한 먼지 시료의 이성체 패턴은 BDE-209의 비율이 5개 시료 평균 78.4% 차지하고 있어 대부분 Deca-BDE로 구성된 102E(96% 이상)나 82-OED(91% 이상)의 영향을 받은 것으로 판단되었다. 그러므로 본 연구결과 먼지 중에서 검출된 BDE-209 외의 이성체는 그 비율이 높지 않아서 직접적인 제품(Penta 또는 Octa)의 영향보다는 환경 중 분해의 결과로 판단된다.

참고문헌

1. Ministry of environment, Persistent Organic Pollutant Management Law, 2012.
2. B.-H. Kim and J.-Y. Lee, *KIC News*, **13**(5), 1-10 (2010).
3. Ministry of environment, Regulation Status of Brominated Flame Retardant, 2005.
4. S. Batterman, C. Godwin, S. Chernyak, C. Jia and S. Charles, *Environ. Int.*, **36**(6), 548-556 (2010).
5. H. A. Jones-Otazo, J. P. Clarke, M. L. Diamond, J. A. Archbold, G. Ferguson, T. Harner, G. M. Richardson, J. J. Ryan and B. Wilford, *Environ Sci Technol.*, **39**(14), 5121-5130 (2005).
6. Y. W. Wang, G. B. Jiang, P. K. S. Lam and A. Li, *Environ. Int.*, **33**(7), 963-973 (2007).
7. Ministry of environment, Korean Official Test of POPs, 2011.
8. B. H. Wilford, M. Shoeib, T. Harner, J. Zhu and K. C. Jones, *Environ. Sci. Technol.*, **39**(18), 7027-7035 (2005).
9. Y. Huang, L. Chen, X. Peng, Z. Xu and Z. Ye, *Chemosphere*, **78**(2), 169-174 (2010).
10. A. Sjödin, O. Päpke, E. McGahee, J.-F. Focant, R. S. Jones, T. Pless-Mulloli, L.-M. L. Toms, T. Herrmann, J. Müller, L. L. Needham and D. G. Patterson Jr., *Chemosphere*, **73**, S131-S136 (2008).
11. H. M. Stapleton, N. G. Dodder, J. H. Offenberg, M. M. Schantz and S. A. Wise, *Environ. Sci. Technol.*, **39**(4), 925-931 (2005).
12. M. J. La Guardia, R. C. Hale and E. Harvey, *Environ. Sci. Technol.*, **40**(20), 6247-6254 (2006).
13. H. Stuart, C. Ibarra, M. A. Abdallah, R. Boon, H. Neels and A. Covaci, *Environ. Int.*, **34**(8), 1170-1175 (2008).
14. G. Suzuki, K. Nose, H. Takigami, S. Takahashi and S. Sakai, *Organohalogen Compounds*, **68**, 1843-1846 (2006).
15. J. Bezares-Cruz, C. T. Jafvert and I. Hua, *Environ. Sci. Technol.*, **38**(15), 4149-4156 (2004).