

浙江省嘉善地区孕妇全氟化合物暴露水平及影响因素

牛金波¹, 方广虹², 梁红³, 纪红蕾³, 杨岚³, 宋秀霞³, 苗茂华³

1. 浙江省嘉兴市嘉善人民医院妇产科, 浙江 嘉兴 314100

2. 上海计生所医院, 上海 200237

3. 上海市计划生育科学研究所流行病与社会医学研究室, 上海 200237

摘要:

[背景] 全氟化合物 (PFASs) 被广泛应用于工业生产和日常生活用品, 有报道称孕妇及胎儿体内可检测到 PFASs, 但检出水平结果不一致。

[目的] 了解浙江省嘉兴市嘉善地区孕妇外周血中 PFASs 的暴露水平, 探讨孕妇外周血 PFASs 暴露水平与社会人口学特征及膳食因素的关系。

[方法] 基于 2016 年 9 月—2018 年 4 月开展的嘉善出生队列, 以 942 例孕妇为研究对象, 在孕妇怀孕 16~24 周产前检查时收集其外周肘静脉血, 应用高效液相色谱-串联质谱法检测孕妇外周血中 13 种常见 PFASs 的质量浓度 (后称浓度), 使用结构式问卷调查孕妇的社会人口学特征、生活方式、健康状态、饮食方式以及怀孕期间环境污染物接触史等信息。采用多因素线性回归, 以自然对数转换后的 PFASs 浓度为应变量, 分析孕妇人口学特征、生活方式及膳食因素对外周血 PFASs 浓度的影响。计算影响 PFASs 浓度相关因素的 β 值及其 95% 可信区间, 并对估计值进行指数转换, 以代表自变量每变化一个单位后 PFASs 浓度几何均数的比值 (GM ratio)。

[结果] 孕妇外周血中共检测到 11 种 PFASs, 包括全氟辛烷磺酸 (PFOS)、全氟己烷磺酸 (PFHxS)、全氟辛酸 (PFOA)、全氟十一烷酸 (PFUdA)、全氟壬酸 (PFNA)、全氟癸酸 (PFDA)、全氟庚酸 (PFHpA)、全氟十二烷酸 (PFDoA)、全氟十三烷酸 (PFTrDA)、全氟十四烷酸 (PFTeDA)、十一氟己烷磺酸 (PFHxA)、全氟癸烷磺酸 (PFDS) 和全氟十六烷酸 (PFHxDA) 未检出。其中前 9 种检出率高达 90% 以上。总的 PFASs 中位浓度为 $37.95 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 各类 PFASs 中 PFOA 的中位浓度最高, 为 $11.99 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 其次为 PFOS、PFHxS、PFDA、PFUdA、PFNA、PFDoA、PFTrDA 和 PFHpA。孕妇外周血中 PFOS、PFHxS、PFOA、PFDA、PFNA、PFHpA、PFUdA、PFDoA 和 PFTrDA 的浓度之间呈不同程度的相关性 ($r=0.35\sim 0.94$); 其中 PFDA 和 PFUdA 之间的相关性最强 ($r=0.94$), 其次是 PFOS 和 PFDA ($r=0.90$)。孕妇 PFASs 暴露水平随着孕妇年龄、孕前体重指数 (BMI)、受教育程度的增加而增加至 1.42 (95% CI: 1.05~1.93)~10.06 (95% CI: 5.01~20.20) 倍, 经产妇外周血中 PFOA 的浓度低于初产妇 (GM ratio=0.73, 95% CI: 0.57~0.93)。孕期摄入鱼类、蛋类、动物内脏和豆制品频率较高的孕妇外周血中某些 PFASs 浓度增加至 1.56 (95% CI: 1.01~2.43)~5.28 (95% CI: 2.40~11.58) 倍, 而摄入粗粮频率较高的孕妇外周血中 PFOA 浓度降低 (GM ratio=0.67, 95% CI: 0.46~0.99), 主要饮用桶装纯净水的孕妇外周血中各种 PFASs 的浓度均降低 (GM ratio: 0.15~0.50)。

[结论] 嘉善地区孕妇广泛暴露于多种 PFASs。除传统 PFOA、PFOS 的暴露外, 各种新型的 PFASs 在该地区暴露水平也较高。孕妇年龄、孕前 BMI、受教育程度、产次和膳食因素与体内的 PFASs 暴露水平有关。

关键词: 全氟化合物; 孕妇; 出生队列; 全氟辛酸; 全氟辛烷磺酸; 外周血

Concentrations and influencing factors of perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances in plasma of pregnant women from Jiashan, Zhejiang Province NIU Jinbo¹, FANG Guanghong², LIANG Hong³, JI Honglei³, YANG Lan³, SONG Xiuxia³, MIAO Maohua³ (1.Department of Obstetrics and Gynecology, Jiashan People's Hospital, Jiashan, Zhejiang 314100, China; 2.Hospital of Shanghai Institute of Planned Parenthood Research, Shanghai 200237, China; 3.Department of Epidemiology and Social Medicine, Shanghai Institute of Planned Parenthood Research, Shanghai 200237, China)

DOI 10.13213/j.cnki.jeom.2021.20529

基金项目

浙江省科技计划项目 (2018KY812, 2020KY320); 上海市卫生健康委员会面上项目 (201840184)

作者简介

牛金波 (1975—), 女, 学士, 主任医师; E-mail: 8547328@qq.com

通信作者

宋秀霞, E-mail: xxsong1212@163.com

伦理审批 已获取

利益冲突 无申报

收稿日期 2020-11-15

录用日期 2021-02-04

文章编号 2095-9982(2021)04-0368-11

中图分类号 R17

文献标志码 A

引用

牛金波, 方广虹, 梁红, 等. 浙江省嘉善地区孕妇全氟化合物暴露水平及影响因素 [J]. 环境与职业医学, 2021, 38 (4): 368-378.

本文链接

www.jeom.org/article/cn/10.13213/j.cnki.jeom.2021.20529

Funding

This study was funded.

Correspondence to

SONG Xiuxia, E-mail: xxsong1212@163.com

Ethics approval Obtained

Competing interests None declared

Received 2020-11-15

Accepted 2021-02-04

To cite

NIU Jinbo, FANG Guanghong, LIANG Hong, et al. Concentrations and influencing factors of perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances in plasma of pregnant women from Jiashan, Zhejiang Province[J]. Journal of Environmental and Occupational Medicine, 2021, 38(4): 368-378.

Link to this article

www.jeom.org/article/en/10.13213/j.cnki.jeom.2021.20529

Abstract:

[Background] Perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances (PFASs) are widely used in industrial production and the manufacture of consumer products and are reported to have been detected in pregnant women's blood, placenta, and fetal cord blood. However, data on PFASs concentrations in pregnant women are inconsistent.

[Objective] This study is designed to measure PFASs concentrations in peripheral blood in pregnant women and evaluate sociodemographic and dietary factors as potential determinants of PFASs concentrations.

[Methods] The present study was based on the Jiashan Birth Cohort from September 2016 to April 2018. Maternal peripheral venous blood samples ($n=942$) were collected from 942 pregnant women during prenatal examination at 16-24 weeks of pregnancy, and were analyzed for 13 PFASs using high-performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry (HPLC-MS/MS). A structured questionnaire was used to investigate the social demographic characteristics, lifestyle, health status, dietary style, and exposure history of environmental pollutants during pregnancy. Multiple linear regression was used to examine the associations of ln-transformed PFASs concentrations with maternal sociodemographics, lifestyles, and dietary factors. The β values and 95% confidence intervals (CI) of factors associated with PFASs were calculated, and the log transformed estimates indicated the geometric mean ratio (GM ratio) of PFASs associated with per unit change of independent variables.

[Results] A total of 11 PFASs were detected in the peripheral blood of pregnant women, including perfluorooctane sulfonic acid (PFOS), perfluorohexane sulfonate (PFHxS), perfluorooctanoic acid (PFOA), perfluoroundecanoic acid (PFUdA), perfluorononanoic acid (PFNA), perfluorodecanoic acid (PFDA), perfluoroheptanoic acid (PFHpA), perfluorododecanoic acid (PFDoA), perfluorotridecanoic acid (PFTTrDA), perfluorotetradecanoic acid (PFTeDA), and perfluorohexanoic acid (PFHxA), of which the detection rates of former 9 PFASs were more than 90%. Perfluorodecane sulfonate (PFDS) and perfluorhecadecanoic acid (PFHxDA) were not detected in the present study. The median concentration of total PFASs was $37.95 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$. Among selected PFASs, the median concentration of PFOA was the highest ($11.99 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$), followed by PFOS, PFHxS, PFDA, PFUdA, PFNA, PFDoA, PFTTrDA, and PFHpA. Varying degrees of correlations were shown among the concentrations of PFOS, PFHxS, PFOA, PFDA, PFNA, PFHpA, PFUdA, PFDoA, and PFTTrDA ($r=0.35-0.94$); PFDA and PFUdA were most strongly correlated ($r=0.94$), followed by PFOS and PFDA ($r=0.90$). PFASs concentrations increased 1.42 times (95% CI: 1.05-1.93) to 10.06 times (95% CI: 5.01-20.20) in pregnant women who were older, well educated, and with higher pre-pregnancy body mass index (BMI). The concentration of PFOA in parous women was lower than that of nulliparous women (GM ratio=0.73, 95% CI: 0.57-0.93). The concentrations of some PFASs in pregnant women with a higher intake frequency of fish, eggs, animal offal, or soy products during pregnancy increased by 1.56 times (95% CI: 1.01-2.43) to 5.28 times (95% CI: 2.40-11.58), while concentration of PFOA in pregnant women with a higher intake frequency of whole grains was lower (GM ratio=0.67, 95% CI: 0.46-0.99), and the concentrations of PFASs in pregnant women who mainly drank bottled water were lower (GM ratio: 0.15-0.50).

[Conclusion] Pregnant women in Jiashan are widely exposed to PFASs. Besides PFOA and PFOS, the concentrations of some emerging PFASs are also higher in pregnant women's peripheral blood. Maternal age, pre-pregnancy BMI, education level, parity, and dietary factors may affect the levels of PFASs exposure.

Keywords: perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances; pregnant woman; birth cohort; perfluorooctanoic acid; perfluorooctane sulfonic acid; peripheral blood

全氟化合物 (perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances, PFASs) 是一类主要由人工合成的碳原子与氟原子组成的有机化合物, 包括氟烷烃类、氟醚类、氟叔胺、氟胺次氟酸盐、氟烯烃类等。这类化合物作为表面防污处理剂和表面活性剂等, 被广泛应用于工业生产和日常生活用品, 如纺织品、皮革制品、家具、地毯、家用洗涤剂、纸制食品包装材料、不粘锅涂层等。PFASs 疏水疏油, 具有高稳定性、环境持久性、显著的生物富集和生物链累积效应。人群可通过污染的食物^[1-2]、饮用水、空气以及灰尘等^[3]多种途径广泛暴露于 PFASs。PFASs 可通过胎盘屏障, 使胎儿直接暴露于 PFASs^[4]。动物实验和人群研究提示 PFASs 对生物具有肝脏毒性、发育毒性、生殖毒性和免疫毒性等多种毒性作用。孕期 PFASs 暴露可导致子代出生体重降低^[5]、免疫力低^[6]、神经行为问题等^[7], 并与子代成年后多种疾病风险的增加有关, 包括高血压、肥胖^[8-9]、心血

管疾病和糖尿病^[10], 严重威胁人类健康。

因长链 PFASs 的这些危害性逐渐被发现和证实, 国内外工业企业和监管机构采取了一系列措施以减少全氟辛烷磺酸 (perfluorooctane sulfonic acid, PFOS) 和全氟辛酸 (perfluorooctanoic acid, PFOA) 及相关化合物的使用^[11]。2000 年 3M 公司开始逐步淘汰 PFOS 及相关材料的生产, 2009 年 PFOS 和全氟辛基磺酰氟 (perfluorooctane sulfonyl fluoride, PFOSF) 被列入斯德哥尔摩公约附件 B, 2013 年我国宣布到 2020 年将淘汰 PFOS 及其相关化合物^[12-13]。但因工业和生活需求, 一些新型的 PFASs 作为其替代品被广泛生产和使用, 例如全氟壬酸 (perfluorononanoic acid, PFNA)、全氟庚酸 (perfluoroheptanoic acid, PFHpA)、十一氟己烷磺酸 (perfluorohexanoic acid, PFHxA) 等^[13]。

了解孕妇 PFASs 暴露水平及影响因素是科学防控 PFASs 宫内暴露的前提。国内此类研究尚在开始阶段,

且不同研究报道的 PFASs 暴露水平存在明显地区差异,如江苏金湖地区 PFASs 浓度低于上海或唐山地区^[4, 14-17]。食物和饮水是普通人群 PFASs 暴露的主要来源,识别 PFASs 暴露的膳食来源,可有针对性地制定孕期膳食指导,从而进一步降低 PFASs 暴露及潜在健康风险。

嘉善县位于浙江省嘉兴市,属于沿海经济开发区,其工业格局以轻纺、服装、机械、电子、化工、建材、仪表、塑料和食品行业为主,潜在 PFASs 污染不可忽视。本研究旨在利用浙江嘉善出生队列,了解嘉善地区孕妇外周血中 PFASs 的暴露水平,探讨孕妇外周血 PFASs 暴露与社会人口学特征及膳食因素的关系,为科学防控孕妇 PFASs 暴露提供依据。

1 对象与方法

1.1 研究设计和研究对象

本研究基于 2016 年 9 月—2018 年 4 月在嘉善开展的嘉善出生队列。以 2016 年 9 月—2018 年 4 月所有在嘉善县第一人民医院和嘉善县妇幼保健院进行第一次产前检查且符合纳入标准的孕妇为研究对象。纳入标准:①长期居住在嘉善县者(不限户籍),未来 5 年内无计划离开嘉善县;②无医院诊断的重大慢性病史:高血压、高脂血症、胆囊疾病、甲状腺疾病、糖尿病、肝炎、心脏病等;③拟在嘉善县第一人民医院分娩;④在怀孕期间和分娩后愿意接受预定的问卷调查并提供血样,同意其婴儿出生后接受体格检查;⑤怀孕未满 16 周。排除标准:非单胎活产。研究期间共有 1 398 名符合条件的孕妇纳入嘉善出生队列,其中 942 名(67.38%)妇女在纳入时提供了足够的血样进行 PFASs 测量,被纳入本次分析。该研究通过上海市计划生育科学研究所伦理委员会的批准(编号:PJ2018-19),每位参与的孕妇均自愿签订知情同意书。

1.2 问卷调查

研究对象纳入时,由经过培训的接诊医生发放结构式问卷并指导研究对象填写问卷,获得研究对象的社会人口学特征、生活方式、健康状态、饮食方式以及怀孕期间环境污染物接触史等信息。调查内容包括:①孕妇的年龄、受教育程度、职业、身高、体重等一般人口学特征;②孕妇既往生育史、疾病史、被动吸烟情况、生活中其他毒物接触情况;③通过食物频率问卷了解研究对象过去 3 个月内食用某类食物的频率(5~7 次·周⁻¹、3~4 次·周⁻¹、1~2 次·周⁻¹、1~3 次·月⁻¹

和从不),包括红肉(猪、牛、羊肉)、动物内脏(肝、肾、心脏和血)、禽肉(鸡、鸭)、鱼类、蛋类、油炸食品、小麦、粗粮(高粱、小米和玉米等)、薯类(马铃薯、红薯、山药等)、豆制品、坚果及饮用水来源等。942 名研究对象的基本人口学特征问卷均收集到;因完成整个问卷调查用时较长,出于可行性的考虑,在 2017 年 6 月之后纳入的研究对象没有再调查食物频率,本次研究共收集到 330 份食物频率问卷。

1.3 相关定义

孕前主动吸烟:怀孕前孕妇本人每天至少吸 1 支烟,连续 6 个月以上。孕前被动吸烟:怀孕前孕妇在家庭和/或工作场所与其他吸烟者共处至少每天 15 min。孕期饮酒:孕妇本人在怀孕期间每周至少饮酒 3 次。职业:将研究对象分为 4 组,即脑力劳动为主(机关、事业单位人员,专业技术人员等)、体力劳动为主(农林牧渔业生产人员和生产运输设备操作人员)、自由职业/个体老板和全职在家。

1.4 PFASs 检测

在研究对象孕 16~24 周来医院产前检查时收集其外周肘静脉血,将采集到的血样以 4 000 r·min⁻¹ 离心 10 min(离心半径为 14 cm),分离血浆, -80℃ 保存备用。进行 PFASs 检测前,用干冰将血浆运送至湖北省疾病预防控制中心二噁英参比实验室检测。

本研究在孕妇外周血中共检测了 13 种常见的 PFASs,包括 PFOS、全氟己烷磺酸(perfluorohexane sulfonate, PFHxS)、PFOA、全氟十一烷酸(perfluoroundecanoic acid, PFUdA)、PFNA、全氟癸酸(perfluorodecanoic acid, PFDA)、PFHpA、全氟十二烷酸(perfluorododecanoic acid, PFDoA)和全氟十三烷酸(perfluorotridecanoic acid, PFTrDA)、全氟十四烷酸(perfluorotetradecanoic acid, PFTeDA)、PFHxA、全氟癸烷磺酸(perfluorodecane sulfonate, PFDS)和全氟十六烷酸(perfluorohexadecanoic acid, PFHxDA)。所有 PFASs 标准原液(PFACMXB0913)和定量内标溶液(MPFACMXA0214)购自 Wellington 实验室(加拿大 Guelph)。血浆前处理、PFASs 萃取方法及高效液相色谱-串联质谱分析严格按照已建立方法步骤进行,详见 Tian 等^[17]和 Liu 等^[18]已发表文献。

PFASs 质量浓度(后称“浓度”)检测的质量控制:使用同位素内标法对 PFASs 检测进行定量分析。在每批样品中使用超纯水作为空白对照,检测到的同源物数量应超过空白数量的 3 倍,通过检测到的同源物的浓度减去本批样本中空白对照的水平来校正同源物的浓

度。使用五点标准曲线(浓度范围为 $0.02\sim 20.00\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)对每种分析物进行定量,且所有化合物的校准曲线在浓度范围内表现出良好的线性,相关系数均大于等于0.99。PFASs的回收率范围为71.50%~112.30%。PFASs的检测限(limits of detection, LOD)定义为信噪比等于或大于3的浓度,范围为 $0.01\sim 0.02\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

1.5 统计学分析

利用EpiData 3.1进行数据双录入,SAS9.4进行统计分析。分析时使用几何均值(标准差) $[GM(GSD)]$ 和百分位数来描述母亲孕期外周血中13种PFASs的浓度及其分布。对检出率超过90%的9种PFASs及它们的浓度之和(ΣPFASs)进行统计分析;在PFASs浓度低于LOD时,采用 $\text{LOD}/\sqrt{2}$ 代替。由于PFASs的浓度属于偏态分布,因此对其进行自然对数转换,实现近似正态分布后再行统计分析。在分析影响PFASs浓度的膳食因素时,将每个食物组的原始频率($5\sim 7$ 次·周 $^{-1}$ 、 $3\sim 4$ 次·周 $^{-1}$ 、 $1\sim 2$ 次·周 $^{-1}$ 、 $1\sim 3$ 次·月 $^{-1}$ 和从不)重新分组为 $\geq 1\sim 2$ 次·周 $^{-1}$ 和 $\leq 1\sim 3$ 次·月 $^{-1}$,以确保每组中都有足够的样本且具有可比性。采用Pearson相关分析检出率超过90%的9种PFASs浓度的相关性,采用单因素方差分析和 t 检验比较不同社会人口学特征、生活方式以及膳食因素组别的对数转换后的PFASs浓度的差异。采用多因素线性回归,以对数转换后的PFASs浓度为应变量,计算影响PFASs浓度的相关因素的 β 值及其95%可信区间,并对估计值(β)进行指数转换(e^β),以代表自变量每变化一个单位后PFASs浓度几何均数的比值(GM ratio)。在分析膳食因素与孕妇外周血PFASs浓度关系时,结合本研究的统计分析结果和文献^[16-17]报道的影响孕妇外周血PFASs浓度的因素,选择孕妇年龄、受教育程度、孕前体重指数(body mass index, BMI)和产次纳入模型进行调整。

2 结果

2.1 研究对象基本情况

本研究共纳入942名研究对象,纳入时的年龄为(28.31 ± 4.38)岁,孕前BMI为(21.43 ± 3.17) $\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}$ 。43.84%的研究对象接受过大学及以上教育,29.09%的研究对象为体力劳动者。391例为初产妇,438例为经产妇。孕前主动吸烟者较少(9例),但290例研究对象有被动吸烟史。不同年龄、孕前BMI、受教育程度、职业和工作场所孕妇组间外周血中 ΣPFASs 浓度差异有统计学意义。见表1。

表1 研究对象的基本特征($n=942$)

Table 1 Demographic characteristics of study subjects ($n=942$)

基本特征 Characteristic	n (%)	ΣPFASs^* [GM (GSD)]
怀孕年龄/岁 (Pregnancy age/years) #		
<25	227 (24.10)	28.70 (2.06)
25~	641 (68.05)	40.81 (1.92)
35~	71 (7.54)	47.38 (2.02)
缺失 (Missing)	3 (0.32)	—
孕前BMI/ ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}$) [Pre-pregnancy BMI/ ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}$)] #		
<18.5	130 (13.80)	34.87 (1.90)
18.5~	582 (61.78)	38.55 (2.01)
25~	95 (10.08)	44.44 (2.13)
缺失 (Missing)	135 (14.33)	—
受教育程度 (Education) #		
初中及以下 (Middle school and below)	292 (31.00)	28.58 (1.87)
高中或中专 (High school or technical secondary school)	209 (22.19)	34.39 (2.07)
大学及以上 (College and above)	413 (43.84)	48.08 (1.91)
缺失 (Missing)	28 (2.97)	—
职业 (Occupation) #		
体力劳动者 (Manual labor)	274 (29.09)	36.18 (1.93)
脑力劳动者 (Mental labor)	89 (9.45)	46.81 (1.93)
自由职业/个体老板 (Freelance/self-employed)	130 (13.80)	33.73 (1.97)
全职在家 (Full-time work at home)	114 (12.10)	28.57 (2.03)
缺失 (Missing)	335 (35.56)	—
民族 (Ethnic group)		
汉族 (Han)	833 (88.43)	38.9 (1.99)
其他 (Others)	26 (2.76)	17.34 (1.73)
缺失 (Missing)	83 (8.81)	—
婚姻状况 (Marital status)		
无配偶 (No spouse)	22 (2.33)	16.89 (1.80)
有配偶 (Have a spouse)	584 (62.00)	36.55 (1.96)
缺失 (Missing)	336 (35.67)	—
家庭人均月收入/元 Monthly household income per capita/yuan		
<4000	179 (19.00)	34.54 (1.96)
4000~	290 (30.79)	35.61 (1.98)
8000~	126 (13.38)	36.73 (2.01)
缺失 (Missing)	347 (36.84)	—
产次 (Parity)		
初产妇 (Nulliparous)	391 (41.51)	37.63 (2.04)
经产妇 (Parous)	438 (46.50)	38.57 (2.01)
缺失 (Missing)	113 (12.00)	—
工作场所 (Workplace) #		
纺织、纽扣厂 (Textile and button factories)	12 (1.27)	52.74 (1.66)
其他工厂 (Other factories)	104 (11.04)	35.77 (1.93)
不在工厂 (Not in factories)	230 (24.42)	45.48 (1.90)
缺失 (Missing)	596 (63.27)	—
孕前主动吸烟 (Active smoking before pregnancy)		
是 (Yes)	9 (0.96)	35.17 (1.90)
否 (No)	591 (62.74)	35.35 (1.99)
缺失 (Missing)	342 (36.31)	—
孕前被动吸烟 (Passive smoking before pregnancy)		
是 (Yes)	290 (33.12)	32.73 (1.97)
否 (No)	312 (30.79)	38.69 (1.97)
缺失 (Missing)	340 (36.09)	—

续表 1

基本特征 Characteristic	n (%)	ΣPFASs* [GM (GSD)]
孕期饮酒 (Drinking during pregnancy)		
是 (Yes)	17 (1.80)	41.07 (1.80)
否 (No)	369 (39.17)	40.67 (1.95)
缺失 (Missing)	556 (59.02)	—
新生儿性别 (Sex of newborn)		
男孩 (Boy)	488 (51.80)	37.81 (1.99)
女孩 (Girl)	453 (48.09)	38.05 (2.02)
缺失 (Missing)	1 (0.11)	—

[注] #: $P < 0.05$; *: ΣPFASs 为血浆中 PFHxS、PFOS、PFOA、PFUdA、PFNA、PFDA、PFHpA、PFDoA、PFTTrDA 的浓度总和。
[Note] #: $P < 0.05$. *: ΣPFASs refers to the sum of plasma concentrations of PFHxS, PFOS, PFOA, PFUdA, PFNA, PFDA, PFHpA, PFDoA, and PFTTrDA.

2.2 孕妇外周血中 PFASs 的主要种类、检出率及浓度

13 种 PFASs 检出率及浓度如表 2 所示, 共检出 11 种 PFASs。PFHxS、PFOS、PFOA 和 PFUdA 在全部研究对象中均有检出, PFNA、PFDA、PFHpA、PFDoA 和 PFTTrDA 的检出率均超过 90%, PFTeDA 和 PFHxA 的检出率分别为 29.19% 和 9.24%, PFDS 和 PFHxDA 未检出。ΣPFASs 的中位浓度为 $37.95 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 各类 PFASs 中, PFOA 的中位浓度最高, 为 $11.99 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 其次为 PFOS、PFHxS、PFDA、PFUdA、PFNA、PFDoA、PFTTrDA 和 PFHpA。

表 2 浙江省嘉兴市嘉善地区孕妇外周血中 PFASs 的检出情况
Table 2 Detection of PFASs in peripheral blood of pregnant women in Jiashan, Zhejiang Province

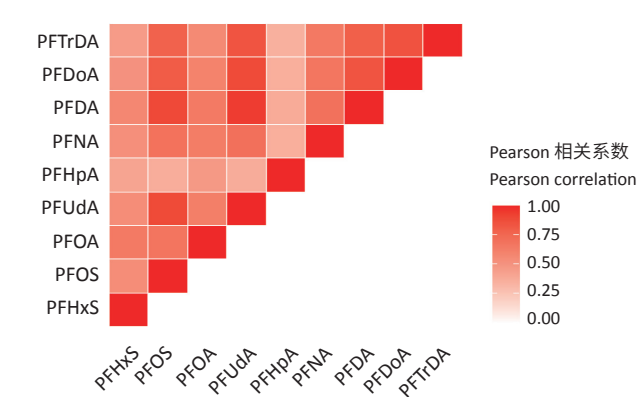
PFASs	检出 (Detected)		浓度 / ($\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$) [Concentration / ($\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)]								
	n	%	LOD	GM (GSD)	Min	P_5	P_{25}	P_{50}	P_{75}	P_{95}	Max
PFHxS	942	100.00	0.015	5.44 (1.83)	0.25	2.00	3.92	5.44	7.78	14.95	31.65
PFOS	942	100.00	0.02	7.87 (2.42)	0.33	1.70	4.39	8.71	14.93	30.25	168.73
PFOA	942	100.00	0.01	11.57 (1.76)	0.15	4.51	8.50	11.99	16.67	26.96	60.04
PFUdA	942	100.00	0.01	2.83 (3.38)	0.03	0.37	1.20	3.07	7.17	16.64	58.05
PFNA	938	99.58	0.02	2.23 (2.92)	LOD	0.51	1.22	2.36	4.65	10.11	30.47
PFDA	940	99.79	0.01	3.96 (3.31)	LOD	0.53	1.73	4.42	9.83	21.93	71.06
PFHpA	907	96.28	0.015	0.10 (2.50)	LOD	0.02	0.06	0.10	0.18	0.43	1.63
PFDoA	881	93.52	0.015	0.21 (4.03)	LOD	LOD	0.08	0.27	0.62	1.50	6.91
PFTTrDA	863	91.61	0.02	0.14 (3.30)	LOD	LOD	0.06	0.17	0.35	0.79	13.19
PFTeDA	275	29.19	0.02	— [§]	LOD	LOD	LOD	LOD	0.03	0.07	0.23
PFHxA	87	9.24	0.02	— [§]	LOD	LOD	LOD	LOD	LOD	0.03	0.99
PFDS [#]	—	—	0.01	—	—	—	—	—	—	—	—
PFHxDA [#]	—	—	0.02	—	—	—	—	—	—	—	—
ΣPFASs*	—	—	—	37.90 (2.00)	2.65	12.63	23.85	37.95	61.44	114.52	275.68

[注] *: ΣPFASs 为血浆中 PFHxS、PFOS、PFOA、PFUdA、PFNA、PFDA、PFHpA、PFDoA、PFTTrDA 的浓度总和; #: 此类 PFASs 低于 LOD, 本次没有检测出; §: 检出率低于 50%, 未计算几何均数。
[Note] *: ΣPFASs refers to the sum of plasma concentrations of PFHxS, PFOS, PFOA, PFUdA, PFNA, PFDA, PFHpA, PFDoA, and PFTTrDA. #: This kind of PFASs is lower than LOD. §: The detection rate is less than 50%, and the geometric mean is not calculated.

孕妇外周血中 PFHxS、PFOS、PFOA、PFUdA、PFNA、PFDA、PFHpA、PFDoA 和 PFTTrDA 的浓度之间呈不同程度的相关性 ($r=0.35\sim0.94$, $P<0.001$, 图 1); 其中 PFDA 和 PFUdA 之间的相关性最强 ($r=0.94$), 其次是 PFOS 和 PFDA ($r=0.90$)。

2.3 不同人口学特征与孕妇外周血中各种 PFASs 浓度的关系

多元线性回归分析发现: 与怀孕年龄 <25 岁组相比, $25\sim<35$ 岁年龄组孕妇外周血中 PFHxS、PFOS、PFOA、PFNA、PFDA、PFUdA、PFDoA、PFTTrDA 和 ΣPFASs 浓度增加至 1.42 (95% CI: 1.05~1.93) ~2.28 (95% CI: 1.52~3.41) 倍, 35 岁及以上年龄组孕妇外周血中 PFHxS、PFOS、PFOA 和 ΣPFASs 浓度增加至 1.81 (95% CI: 1.03~



[注 (Note)] $r=0.35\sim0.94$ 。
图 1 浙江省嘉兴市嘉善地区孕妇外周血中各种 PFASs 的 Pearson 相关关系
Figure 1 Pearson correlations of PFASs' concentrations in peripheral blood of pregnant women in Jiashan, Zhejiang Province

3.19) ~2.46 (95% *CI* : 1.16~5.23) 倍, 而几种新型 PFASs (PFNA、PFDA、PFUdA、PFDoA、PFTrDA 和 PFHpA) 在两个年龄组的浓度差异无统计学意义; 孕前 BMI $\geq 25 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}$ 组的 PFHxS、PFOS、PFOA、PFNA、PFDA、PFUdA、PFHpA 和 Σ PFASs 浓度均高于孕前 BMI $< 18.5 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}$ 组, 分别是孕前 BMI $< 18.5 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}$ 组的 1.67 (95% *CI* : 1.05~2.64) ~

3.45 (95% *CI* : 1.74~6.85) 倍; 与孕妇受教育程度为初中及以下组相比, 大学及以上组外周血中各种 PFASs 浓度均增加, 为对照组的 1.61 (95% *CI* : 1.15~2.24) ~ 10.06 (95% *CI* : 5.01~20.20) 倍; 经产妇外周血中 PFOA 的浓度低于初产妇 (*GM ratio*=0.73, 95% *CI* : 0.57~0.93)。见表 3。

表 3 浙江省嘉兴市嘉善地区孕妇不同人口学特征与外周血中 PFASs 浓度的关系 ($n=942$)

Table 3 Linear associations between demographic characteristics and concentrations of PFASs in peripheral blood of pregnant women in Jiashan, Zhejiang Province ($n=942$)

人口学特征 [△] Demographic characteristic	<i>n</i>	GM ratio [#] (95% CI)									
		PFHxS	PFOS	PFOA	PFNA	PFDA	PFUdA	PFDoA	PFTTrDA	PFHpA	ΣPFASs [§]
怀孕年龄 / 岁 Pregnancy age/years											
<25	227	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
25~	641	1.42 (1.05~1.93)*	2.28 (1.52~3.41)*	1.55 (1.19~2.03)*	1.68 (1.09~2.59)*	2.04 (1.19~3.48)*	2.19 (1.26~3.79)*	2.10 (1.11~3.97)*	2.08 (1.24~3.49)*	0.93 (0.59~1.46)	1.72 (1.25~2.37)*
35~	71	1.81 (1.03~3.19)*	2.46 (1.16~5.23)*	2.11 (1.28~3.48)*	1.81 (0.80~4.08)	2.11 (0.78~5.73)	2.36 (0.84~6.60)	2.35 (0.71~7.75)	1.88 (0.72~4.95)	0.81 (0.35~1.87)	1.95 (1.07~3.54)*
孕前 BMI/ (kg·m ⁻²) Pre-pregnancy BMI/ (kg·m ⁻²)											
<18.5	130	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
18.5~	582	1.02 (0.75~1.39)	1.30 (0.86~1.97)	1.16 (0.88~1.53)	1.18 (0.76~1.84)	1.26 (0.73~2.17)	1.08 (0.61~1.89)	1.22 (0.63~2.34)	1.00 (0.59~1.70)	0.81 (0.51~1.29)	1.19 (0.86~1.65)
25~	95	1.67 (1.05~2.64)*	3.32 (1.80~6.15)*	1.79 (1.19~2.70)*	3.08 (1.59~5.96)*	2.98 (1.32~6.74)*	2.39 (1.03~5.53)*	2.46 (0.93~6.51)	2.08 (0.94~4.58)	3.45 (1.74~6.85)*	2.37 (1.45~3.85)*
受教育程度 (Education)											
初中及以下 Middle school and below	292	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
高中或中专 High school or technical secondary school	209	1.12 (0.80~1.57)	1.62 (1.04~2.54)*	1.15 (0.86~1.55)	1.70 (1.05~2.74)*	1.50 (0.83~2.72)	1.41 (0.77~2.60)	1.82 (0.90~3.69)	1.93 (1.09~3.43)*	1.30 (0.79~2.14)	1.35 (0.95~1.93)
大学及以上 College and above	413	1.61 (1.15~2.24)*	4.83 (3.11~7.51)*	1.75 (1.31~2.35)*	5.19 (3.23~8.34)*	7.63 (4.25~13.67)*	8.12 (4.46~14.80)*	10.06 (5.01~20.20)*	9.51 (5.40~16.72)*	2.17 (1.33~3.55)*	3.26 (2.30~4.63)*
家庭人均月收入 / 元 Monthly household income per capita/yuan											
<4000	179	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
4000~	290	0.69 (0.52~0.92)*	0.77 (0.52~1.12)	0.87 (0.67~1.11)	0.71 (0.47~1.07)	0.75 (0.45~1.23)	0.79 (0.47~1.32)	0.68 (0.37~1.24)	0.87 (0.54~1.42)	0.63 (0.41~0.96)*	0.78 (0.58~1.05)
8000~	126	0.75 (0.53~1.06)	0.83 (0.52~1.33)	0.89 (0.65~1.21)	0.78 (0.47~1.28)	0.66 (0.36~1.22)	0.69 (0.37~1.30)	0.60 (0.29~1.26)	0.74 (0.41~1.34)	0.57 (0.34~0.96)*	0.79 (0.54~1.14)
职业 (Occupation)											
全职在家 Full-time work at home	114	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
体力劳动者 Manual labor	274	1.00 (0.71~1.42)	1.09 (0.69~1.73)	1.18 (0.87~1.60)	1.10 (0.67~1.82)	1.52 (0.82~2.81)	1.40 (0.74~2.63)	1.08 (0.52~2.24)	1.19 (0.66~2.15)	1.23 (0.73~2.05)	1.12 (0.78~1.62)
脑力劳动者 Mental labor	89	1.09 (0.68~1.73)	1.09 (0.59~2.03)	1.2 (0.80~1.81)	1.26 (0.64~2.46)	1.86 (0.81~4.24)	1.68 (0.72~3.92)	1.48 (0.55~3.96)	1.27 (0.57~2.83)	1.17 (0.58~2.34)	1.23 (0.75~2.01)
自由职业 / 个体老板 Freelance / self-employed	130	0.88 (0.60~1.29)	0.98 (0.59~1.63)	1.09 (0.77~1.52)	1.00 (0.58~1.72)	1.18 (0.60~2.32)	1.12 (0.56~2.25)	1.01 (0.45~2.27)	1.07 (0.55~2.05)	1.02 (0.58~1.81)	0.96 (0.64~1.43)
产次 (Parity)											
初产妇 (Nulliparous)	391	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
经产妇 (Parous)	438	1.25 (0.95~1.65)	1.25 (0.87~1.80)	0.73 (0.57~0.93)*	1.23 (0.83~1.83)	1.41 (0.87~2.29)	1.30 (0.79~2.14)	1.11 (0.62~1.98)	1.00 (0.62~1.59)	0.97 (0.64~1.46)	1.06 (0.80~1.42)

续表3

人口学特征 ^{&} Demographic characteristic	n	GM ratio [#] (95% CI)									
		PFHxS	PFOS	PFOA	PFNA	PFDA	PFUdA	PFDoA	PFTTrDA	PFHpA	ΣPFASs [§]
孕前被动吸烟 Passive smoking before pregnancy											
是 (Yes)	290	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
否 (No)	312	0.71 (0.55~0.90)*	0.88 (0.64~1.23)	0.98 (0.79~1.22)	0.78 (0.55~1.11)	0.73 (0.47~1.13)	0.65 (0.42~1.02)	0.53 (0.31~0.89)	0.71 (0.47~1.09)	0.88 (0.61~1.27)	0.81 (0.62~1.05)
工作场所 (Workplace)											
不在工厂 Not in factories	230	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
纺织、纽扣厂 Textile and button factories	12	1.76 (0.69~4.49)	2.64 (0.76~9.23)	1.41 (0.62~3.22)	1.8 (0.47~6.92)	2.93 (0.56~15.41)	3.08 (0.56~16.91)	2.99 (0.41~21.64)	2.65 (0.53~13.20)	1.33 (0.33~5.36)	2.02 (0.75~5.45)
其他工厂 Other factories	104	1.09 (0.79~1.51)	0.83 (0.54~1.28)	0.98 (0.74~1.31)	0.78 (0.49~1.25)	0.82 (0.46~1.47)	0.78 (0.43~1.40)	0.80 (0.40~1.59)	0.53 (0.31~0.93)	0.97 (0.60~1.57)	0.95 (0.67~1.34)
新生儿性别 (Sex of newborn)											
男 (Boy)	488	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
女 (Girl)	453	1.10 (0.86~1.40)	0.98 (0.71~1.35)	1.13 (0.91~1.40)	1.07 (0.76~1.51)	1.05 (0.68~1.60)	0.94 (0.61~1.45)	0.93 (0.56~1.54)	0.98 (0.65~1.49)	1.57 (1.09~2.24)*	1.07 (0.83~1.38)

[注] & : 各人口学特征项均存在数据缺失; #: 多元线性回归各因素同时进入模型相互调整, 对线性参数 (β) 进行指数转换, 代表自变量每变化一个单位后 PFASs 浓度几何均数的比值; §: ΣPFASs 为血浆中 PFHxS、PFOS、PFOA、PFUdA、PFNA、PFDA、PFHpA、PFDoA、PFTTrDA 的浓度总和; *: $P < 0.05$ 。

[Note] &: The demographic data reported have varying degrees of missing data. #: All factors enter the model at the same time and are adjusted to each other. The exponentiated coefficient of the linear parameter (β) is interpreted as the change in the GM ratio of PFASs concentrations for each category of the included variable compared to the reference group. §: ΣPFASs refers to the sum of plasma concentrations of PFHxS, PFOS, PFOA, PFUdA, PFNA, PFDA, PFHpA, PFDoA, and PFTTrDA. *: $P < 0.05$.

2.4 孕期膳食因素对孕妇外周血 PFASs 浓度的影响

多元线性回归显示, 在调整孕妇年龄、受教育程度、孕前 BMI、产次后, 摄入较多粗粮、小麦及薯类的孕妇外周血中 PFASs 的浓度大多呈降低趋势。与粗粮摄入较少者相比, 摄入较多粗粮的孕妇, 其外周血中 PFOA 的浓度降低 ($GM\ ratio = 0.67$, $95\% CI : 0.46 \sim 0.99$)。摄入鱼类频率较高的孕妇其外周血中 PFOS、PFNA、PFDA、PFUdA、PFDoA、PFTTrDA 和 ΣPFASs 浓度均增加, 分别是鱼类摄入频率较低孕妇的 1.87 ($95\% CI : 1.22 \sim 2.85$) ~ 5.28 ($95\% CI : 2.40 \sim 11.58$) 倍。摄入较多动物内脏的孕妇, 其外周血中 PFTTrDA 的浓度增加至 2.61 ($95\% CI : 1.06 \sim 6.42$) 倍。摄入较多蛋类的孕妇,

其外周血中的 PFNA、PFDA、PFUdA、PFDoA 和 PFTTrDA 浓度增加至 2.06 ($95\% CI : 1.03 \sim 4.13$) ~ 3.67 ($95\% CI : 1.27 \sim 10.66$) 倍。摄入较多豆制品的孕妇, 其外周血中的 PFOS、PFDA、PFUdA、PFDoA 和 ΣPFASs 的浓度增加至 1.56 ($95\% CI : 1.01 \sim 2.43$) ~ 2.46 ($95\% CI : 1.16 \sim 5.24$) 倍。摄入较多红肉和坚果类食物的孕妇, 其外周血中的 PFTTrDA 浓度分别增加至 2.53 ($95\% CI : 1.18 \sim 5.41$) 倍和 2.32 ($95\% CI : 1.18 \sim 4.55$) 倍。本研究未发现孕妇外周血中 PFASs 的浓度与油炸类食物和禽肉的摄入有关。与直接饮用自来水的孕妇相比, 饮用桶装纯净水的孕妇外周血中各种 PFASs 的浓度均降低, 差异有统计学意义 ($GM\ ratio : 0.15 \sim 0.50$)。见表 4。

表4 浙江省嘉兴市嘉善地区孕妇不同膳食因素对外周血中 PFASs 水平的关系 ($n=330$)Table4 Linear associations between dietary factors and concentrations of PFASs in peripheral blood of pregnant women in Jiashan, Zhejiang Province ($n=330$)

膳食因素 Dietary factors	n	GM ratio [#] (95% CI)									
		PFHxS	PFOS	PFOA	PFNA	PFDA	PFUdA	PFDoA	PFTTrDA	PFHpA	ΣPFASs [§]
小麦 (Wheat)											
0~3 次·月 ⁻¹ 0-3 times per month	83	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
1~2 次·周 ⁻¹ 1-2 times per week	247	0.84 (0.52~1.36)	1.00 (0.54~1.87)	0.98 (0.61~1.57)	0.89 (0.48~1.67)	0.83 (0.36~1.93)	0.92 (0.38~2.21)	0.81 (0.31~2.14)	1.11 (0.51~2.45)	1.17 (0.55~2.49)	0.95 (0.57~1.58)
粗粮 (Whole grains)											
0~3 次·月 ⁻¹ 0-3 times per month	167	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
1~2 次·周 ⁻¹ 1-2 times per week	163	0.71 (0.48~1.06)	0.87 (0.52~1.46)	0.67 (0.46~0.99)*	0.72 (0.43~1.20)	0.77 (0.39~1.55)	0.93 (0.45~1.92)	0.95 (0.43~2.11)	1.17 (0.61~2.24)	0.86 (0.46~1.61)	0.75 (0.50~1.14)

续表 4

膳食因素 Dietary factors	n	GM ratio [#] (95% CI)									
		PFHxS	PFOS	PFOA	PFNA	PFDA	PFUdA	PFDoA	PFTTrDA	PFHpA	ΣPFASs [§]
薯类 (Tubers) ^{&}											
0~3 次·月 ⁻¹ 0-3 times per month	105	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
1~2 次·周 ⁻¹ 1-2 times per week	224	1.20 (0.77~1.87)	0.92 (0.52~1.62)	1.06 (0.69~1.63)	0.83 (0.47~1.45)	0.95 (0.44~2.04)	1.01 (0.46~2.24)	0.86 (0.36~2.07)	1.22 (0.6~2.48)	1.00 (0.5~1.97)	1.03 (0.65~1.63)
红肉 (Red meat)											
0~3 次·月 ⁻¹ 0-3 times per month	78	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
1~2 次·周 ⁻¹ 1-2 times per week	252	0.80 (0.50~1.29)	1.58 (0.86~2.9)	0.74 (0.47~1.18)	1.40 (0.76~2.58)	1.72 (0.76~3.9)	2.26 (0.96~5.27)	2.12 (0.83~5.43)	2.53 (1.18~5.41) *	1.16 (0.56~2.43)	1.11 (0.68~1.83)
鱼类 (Fish)											
0~3 次·月 ⁻¹ 0-3 times per month	125	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
1~2 次·周 ⁻¹ 1-2 times per week	205	1.15 (0.76~1.74)	3.00 (1.81~4.99) *	1.17 (0.78~1.75)	2.27 (1.35~3.82) *	4.18 (2.11~8.29) *	4.98 (2.45~10.10) *	5.28 (2.40~11.58) *	4.03 (2.12~7.63) *	0.95 (0.50~1.81)	1.87 (1.22~2.85) *
禽肉 (Poultry)											
0~3 次·月 ⁻¹ 0-3 times per month	155	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
1~2 次·周 ⁻¹ 1-2 times per week	175	1.01 (0.68~1.5)	1.59 (0.96~2.63)	0.81 (0.55~1.19)	1.12 (0.67~1.86)	1.54 (0.78~3.05)	1.70 (0.84~3.46)	1.86 (0.85~4.07)	1.77 (0.94~3.35)	0.77 (0.42~1.41)	1.11 (0.73~1.68)
动物内脏 (Offal)											
0~3 次·月 ⁻¹ 0-3 times per month	288	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
1~2 次·周 ⁻¹ 1-2 times per week	42	0.81 (0.46~1.42)	1.64 (0.80~3.36)	0.85 (0.50~1.47)	1.27 (0.62~2.62)	1.40 (0.53~3.69)	1.89 (0.69~5.17)	2.64 (0.87~7.98)	2.61 (1.06~6.42) *	0.87 (0.36~2.07)	1.14 (0.63~2.04)
蛋类 (Eggs) ^{&}											
0~3 次·月 ⁻¹ 0-3 times per month	68	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
1~2 次·周 ⁻¹ 1-2 times per week	261	1.07 (0.62~1.85)	1.85 (0.92~3.7)	1.09 (0.64~1.85)	2.06 (1.03~4.13) *	3.12 (1.23~7.88) *	3.65 (1.40~9.57) *	3.67 (1.27~10.66) *	2.74 (1.15~6.54) *	1.63 (0.70~3.78)	1.52 (0.87~2.68)
豆制品 (Soy products) ^{&}											
0~3 次·月 ⁻¹ 0-3 times per month	115	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
1~2 次·周 ⁻¹ 1-2 times per week	214	1.50 (0.99~2.29)	1.82 (1.06~3.12) *	1.15 (0.76~1.74)	1.55 (0.90~2.67)	2.32 (1.12~4.79) *	2.46 (1.16~5.24) *	2.41 (1.05~5.56) *	1.77 (0.89~3.51)	0.83 (0.43~1.60)	1.56 (1.01~2.43) *
油炸食品 (Fried food) ^{&}											
0~3 次·月 ⁻¹ 0-3 times per month	254	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
1~2 次·周 ⁻¹ 1-2 times per week	75	0.97 (0.59~1.59)	0.96 (0.51~1.82)	0.93 (0.57~1.50)	1.07 (0.57~2.04)	1.09 (0.46~2.58)	1.24 (0.51~3.04)	1.08 (0.40~2.90)	1.33 (0.60~2.99)	0.45 (0.21~0.96)	1.00 (0.59~1.67)
坚果 (Nuts) ^{&}											
0~3 次·月 ⁻¹ 0-3 times per month	124	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
1~2 次·周 ⁻¹ 1-2 times per week	205	1.06 (0.70~1.62)	1.69 (0.99~2.89)	1.04 (0.69~1.57)	1.19 (0.69~2.06)	1.91 (0.92~3.94)	2.08 (0.98~4.42)	1.82 (0.79~4.21)	2.32 (1.18~4.55) *	0.86 (0.45~1.66)	1.27 (0.82~1.97)
饮用水 ^{&} Source of drinking water											
自来水 (Tap water)	142	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref	Ref
净化自来水 Purified tap water	69	0.20 (0.01~2.88)	1.57 (0.04~59.22)	1.15 (0.10~13.29)	1.28 (0.01~149.06)	2.75 (0.02~410.58)	2.02 (0.01~309.70)	0.00 (0.00~0.17) *	0.81 (0.01~120.93)	10.59 (0.17~647.26)	1.13 (0.06~20.48)
桶装纯净水 Barreled water	98	0.28 (0.19~0.42) *	0.34 (0.20~0.57) *	0.50 (0.35~0.71) *	0.33 (0.17~0.66) *	0.18 (0.09~0.37) *	0.15 (0.07~0.30) *	0.16 (0.07~0.37) *	0.23 (0.11~0.47) *	0.45 (0.25~0.81) *	0.31 (0.21~0.47) *
瓶装纯净水 Bottled water	20	0.62 (0.26~1.46)	0.57 (0.18~1.83)	1.06 (0.48~2.31)	0.61 (0.13~2.79)	0.33 (0.07~1.62)	0.23 (0.05~1.14)	0.28 (0.04~1.78)	0.29 (0.06~1.44)	0.68 (0.18~2.52)	0.61 (0.24~1.53)

[注] & : 各人口学特征项均存在数据缺失 ; # : 调整母亲年龄、受教育程度、孕前 BMI、产次, 对线性参数 (β) 进行指数转换, 代表自变量每变化一个单位后 PFASs 浓度的几何均数的比值 ; § : ΣPFASs 为血浆中 PFHxS、PFOS、PFOA、PFUdA、PFNA、PFDA、PFHpA、PFDoA、PFTTrDA 的浓度总和 ; * : $P < 0.05$ 。

[Note] & : The demographic data reported have varying degrees of missing data. #: Adjust for pregnancy age, education, prepregnancy BMI, and parity. The exponentiated coefficient of the linear parameter (β) is interpreted as the change in the GM ratio of PFASs concentrations for each category of the included variable compared to the reference group. §: ΣPFASs refers to the sum of plasma concentrations of PFHxS, PFOS, PFOA, PFUdA, PFNA, PFDA, PFHpA, PFDoA, and PFTTrDA. *: $P < 0.05$.

3 讨论

本研究发现嘉善地区孕妇广泛暴露于11种PFASs,且PFOA和PFOS的浓度最高。孕妇PFASs暴露水平可能与孕妇年龄、孕前BMI、受教育程度等社会人口学特征相关。孕期摄入鱼类、蛋类和豆制品频率较高的孕妇大部分PFASs浓度较高,摄入红肉、动物内脏和坚果频率较高的孕妇PFTTrDA浓度较高,而摄入粗粮频率较高及饮用桶装纯净水的孕妇部分PFASs浓度较低。

本研究首次报道了浙江省嘉善地区孕妇外周血中PFASs的暴露情况。PFOS、PFHxS、PFOA、PFUdA、PFNA、PFDA、PFHpA、PFDoA和PFTTrDA的中位浓度分别为8.71、5.44、11.99、3.07、2.36、4.42、0.10、0.27和0.17 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。本研究中孕妇外周血中PFOA和PFOS的浓度最高,与上海新华医院2013—2015年开展的上海出生队列的孕妇暴露水平(11.6、8.2 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)基本一致,但PFHxS和PFDA浓度(0.63、1.82 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)显著增加^[15];本研究中PFHxS、PFDA和PFNA的浓度也略高于上海闵行队列的孕妇暴露水平(2.77、2.04、1.76 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)^[17]。本研究检出率较高的PFHxS、PFOS、PFOA和PFNA的中位浓度远高于同时期美国新泽西州成人外周血检测水平(0.89、4.00、1.77、0.68 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)^[19],也高于唐山地区孕妇外周血PFASs的水平^[16]。本次研究与其他研究结果一致^[17],发现不同PFASs的浓度之间呈不同程度的相关性,其中PFDA和PFUdA之间的相关性最强,其次是PFOS和PFDA,表明这些化合物可能来源于相同的暴露源。

欧洲和美国自2000年陆续禁止了PFOS、PFOA和PFHxS的生产和使用,各种新型PFASs作为替代物开始使用^[11, 20]。自2003年以来,PFASs开始在中国大量生产和使用,特别是在纺织、制革和造纸行业^[13]。本研究所在的研究现场嘉善县位于沿海经济开放区,其主要工业均是可能使用各类PFASs的纺织、服装、机械、电子、化工、建材、仪表、塑料和食品加工等行业,其潜在环境PFASs暴露较高。人体中的PFASs主要来自食物、饮用水或接触含有各种PFASs的物品等,再加上PFASs的环境持久性,该地区研究人群呈现出传统和新型PFASs暴露水平均较高的特点。

PFASs具有高蓄积性和生物半衰期长的特点,例如PFOA和PFOS在人体内半衰期约4~5年,PFHxS生物半衰期可达8.5年。本研究中孕妇年龄与多数PFASs浓度增加有关,反映了PFASs的时间蓄积效应,这与

既往研究报道结果一致^[21]。但在35岁及以上年龄组只有PFHxS、PFOS、PFOA和 Σ PFASs浓度增加有统计学意义,而几种新型PFASs(PFNA、PFDA、PFUdA、PFDoA、PFTTrDA和PFHpA)浓度差异无统计学意义,可能与新型PFASs开始使用时间较晚有关^[22]。与之前的孕妇和普通成年人的研究一样,本研究中也观察到孕前BMI是影响PFHxS、PFOS、PFOA、PFNA、PFDA、PFUdA、PFHpA和 Σ PFASs浓度的可能因素^[22-23]。虽然单因素分析结果提示在纺织、纽扣厂工作的孕妇外周血 Σ PFASs浓度增加,但在纺织、纽扣厂工作的孕妇的样本量太小($n=12$),调整混杂因素后,本次研究未发现在纺织、纽扣厂工作的孕妇外周血中各种PFASs浓度升高,需扩大样本量后继续研究分析。

在人类暴露于PFASs的多种途径中,食物和饮水摄入被认为是普通成年人群的主要摄入途径,约占总暴露的90%^[24]。人类饮食中PFASs含量的数据较少^[25-26],但研究报道肉制品、内脏(肝脏)、蛋类食品中PFASs含量高^[3]。本研究发现孕妇外周血中某些种类的PFASs的浓度随着红肉、蛋类和动物内脏摄入量的增加而增加。此外,鱼类似乎是造成PFASs食物暴露的主要因素^[27]。波兰的一项研究显示鱼类消费量高的人的PFOS血清水平比对照人群高2.6倍^[28]。本研究结果也显示日常摄入鱼类较多的孕妇,其外周血中PFOS、PFNA、PFDA、PFUdA、PFDoA、PFTTrDA和 Σ PFASs的浓度均升高,进一步验证了前述研究。有研究报道,对于典型谷物大豆、玉米和小麦而言,PFASs在大豆中的生物蓄积较高^[25]。本研究发现食用较多豆制品的孕妇,其外周血多种PFASs(PFOS、PFDA、PFUdA、PFDoA)浓度增加。豆制品作为中国传统食物,食用量较多,由此引起的PFASs暴露和对当地居民构成的健康风险不容忽视。另外,本研究发现与饮用自来水的孕妇相比,饮用桶装纯净水的孕妇外周血中PFASs的浓度降低,提示嘉善地区自来水来源的PFASs暴露也不容忽视,家庭饮用桶装纯净水可能对降低人群PFASs暴露水平有一定作用^[29]。

在中国现有非职业人群的PFASs暴露水平的研究中,本研究较全面地分析了嘉善地区孕妇体内PFASs暴露水平,及社会人口学特征、孕期膳食因素的影响,但也存在一些不足之处。和原计划纳入人群(1398例)相比,本次研究对象(942例)失访较多,尤其是在探讨血浆中PFASs浓度与膳食因素关系的研究中(330例),样本量损失更多,纳入本次研究的对象可能存在选择偏倚,但食物频率问卷缺失是因为问

卷调查时间过长,出于可行性的原因,在研究后期纳入的研究对象没有再调查食物频率,在研究过程中不存在研究对象的主观筛选,本研究人群可能有一定的代表性。同时,本研究未采集孕妇生活和工作环境中的空气、灰尘、水等环境介质中PFASs的污染情况,以及炊具、食品加工方式和烹饪方式等可能对孕期PFASs暴露水平存在影响的相关信息,可能会对结果产生影响,有待进一步的研究予以完善。

综上,嘉善地区PFASs污染较严重,除传统PFOA、PFOS的污染外,各种新型的PFASs在该地区也污染严重,呈现出多种PFASs共存且浓度高、来源多样的特点。孕妇体内广泛的高浓度PFASs暴露提示亟须评价PFASs对孕妇及其子代的健康效应。另外,孕期PFASs暴露的不同膳食来源,提示研究者在为孕妇制定膳食指导时应考虑PFASs暴露风险。

参考文献

- [1] SQUADRONE S, CICCOTELLI V, FAVARO L, et al. Fish consumption as a source of human exposure to perfluorinated alkyl substances in Italy : analysis of two edible fish from Lake Maggiore [J] . Chemosphere, 2014, 114 : 181-186.
- [2] BERGER U, GLYNN A, HOLMSTROM KE, et al. Fish consumption as a source of human exposure to perfluorinated alkyl substances in Sweden—analysis of edible fish from Lake Vättern and the Baltic Sea [J] . Chemosphere, 2009, 76 (6) : 799-804.
- [3] D'HOLLANDER W, DEVOOGT P, DE COEN W, et al. Perfluorinated substances in human food and other sources of human exposure [J] . Rev Environ Contam Toxicol, 2010, 208 : 179-215.
- [4] LIU Y, LI A, BUCHANAN S, et al. Exposure characteristics for congeners, isomers, and enantiomers of perfluoroalkyl substances in mothers and infants [J] . Environ Int, 2020, 144 : 106012.
- [5] BACH CC, BECH BH, BRIX N, et al. Perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances and human fetal growth : a systematic review [J] . Crit Rev Toxicol, 2015, 45 (1) : 53-67.
- [6] DALSAGER L, CHRISTENSEN N, HUSBY S, et al. Association between prenatal exposure to perfluorinated compounds and symptoms of infections at age 1-4 years among 359 children in the Odense Child Cohort [J] . Environ Int, 2016, 96 : 58-64.
- [7] SKOGHEIM TS, VILLANGER GD, WEYDE KV, et al. Prenatal exposure to perfluoroalkyl substances and associations with symptoms of attention-deficit/hyperactivity disorder and cognitive functions in preschool children [J] . Int J Hyg Environ Health, 2020, 223 (1) : 80-92.
- [8] FLEISCH AF, RIFAS-SHIMAN SL, MORA AM, et al. Early-life exposure to perfluoroalkyl substances and childhood metabolic function [J] . Environ Health Perspect, 2017, 125 (3) : 481-487.
- [9] BAO WW, QIAN Z, GEIGER SD, et al. Gender-specific associations between serum isomers of perfluoroalkyl substances and blood pressure among Chinese : isomers of C8 Health Project in China [J] . Sci Total Environ, 2017, 607-608 : 1304-1312.
- [10] CARDENAS A, HIVERT MF, GOLD DR, et al. Associations of perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances with incident diabetes and microvascular disease [J] . Diabetes Care, 2019, 42 (9) : 1824-1832.
- [11] SAH RC, JOSHI KR. Fact sheets of 22 persistent organic pollutants (POPs) under stockholm convention [M] . Lalitpur, Nepal : CEPHEP, 2011.
- [12] LIU LY, MA WL, JIA HL, et al. Research on persistent organic pollutants in China on a national scale : 10 years after the enforcement of the Stockholm Convention [J] . Environ Pollut, 2016, 217 : 70-81.
- [13] XIE S, WANG T, LIU S, et al. Industrial source identification and emission estimation of perfluorooctane sulfonate in China [J] . Environ Int, 2013, 52 : 1-8.
- [14] ZHOU W, ZHAO S, TONG C, et al. Dietary intake, drinking water ingestion and plasma perfluoroalkyl substances concentration in reproductive aged Chinese women [J] . Environ Int, 2019, 127 : 487-494.
- [15] BJERREGAARD-OLESEN C, BOSSI R, LIEW Z, et al. Maternal serum concentrations of perfluoroalkyl acids in five international birth cohorts [J] . Int J Hyg Environ Health, 2017, 220 : 86-93.
- [16] YANG J, WANG H, DU H, et al. Factors associated with exposure of pregnant women to perfluoroalkyl acids in North China and health risk assessment [J] . Sci Total Environ, 2019, 655 : 356-362.
- [17] TIAN Y, ZHOU Y, MIAO M, et al. Determinants of plasma concentrations of perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances in pregnant women from a birth cohort in

- Shanghai, China [J]. *Environ Int*, 2018, 119 : 165-173.
- [18] LIU J, LI J, LIU Y, et al. Comparison on gestation and lactation exposure of perfluorinated compounds for newborns [J]. *Environ Int*, 2011, 37 (7) : 1206-1212.
- [19] YU CH, RIKER CD, LU SE, et al. Biomonitoring of emerging contaminants, perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances (PFAS), in New Jersey adults in 2016–2018 [J]. *Int J Hyg Environ Health*, 2020, 223 (1) : 34-44.
- [20] LINDSTROM AB, STRYNAR MJ, LIBELO EL. Polyfluorinated compounds : past, present, and future [J]. *Environ Sci Technol*, 2011, 45 (19) : 7954-7961.
- [21] LINDH CH, RYLANDER L, TOFT G, et al. Blood serum concentrations of perfluorinated compounds in men from Greenlandic Inuit and European populations [J]. *Chemosphere*, 2012, 88 (11) : 1269-1275.
- [22] CALAFAT AM, KUKLENYIK Z, REIDY JA, et al. Serum concentrations of 11 polyfluoroalkyl compounds in the U.S. population : data from the national health and nutrition examination survey (NHANES) 1999–2000 [J]. *Environ Sci Technol*, 2007, 41 (7) : 2237-2242.
- [23] SAGIV SK, RIFAS-SHIMAN SL, WEBSTER TF, et al. Sociodemographic and perinatal predictors of early pregnancy per- and polyfluoroalkyl substance (PFAS) concentrations [J]. *Environ Sci Technol*, 2015, 49 (19) : 11849-11858.
- [24] VESTERGREN R, COUSINS IT. Tracking the pathways of human exposure to perfluorocarboxylates [J]. *Environ Sci Technol*, 2009, 43 (15) : 5565-5575.
- [25] LIU Z, LU Y, SONG X, et al. Multiple crop bioaccumulation and human exposure of perfluoroalkyl substances around a mega fluorochemical industrial park, China : implication for planting optimization and food safety [J]. *Environ Int*, 2019, 127 : 671-684.
- [26] MARTIN JW, WHITTLE DM, MUIR DC, et al. Perfluoroalkyl contaminants in a food web from Lake Ontario [J]. *Environ Sci Technol*, 2004, 38 (20) : 5379-5385.
- [27] YAMADA A, BEMRAH N, VEYRAND B, et al. Dietary exposure to perfluoroalkyl acids of specific French adult sub-populations : high seafood consumers, high freshwater fish consumers and pregnant women [J]. *Sci Total Environ*, 2014, 491-492 : 170-175.
- [28] FALANDYSZ J, TANIYASU S, GULKOWSKA A, et al. Is fish a major source of fluorinated surfactants and repellents in humans living on the Baltic Coast? [J]. *Environ Sci Technol*, 2006, 40 (3) : 748-751.
- [29] DOMINGO JL, NADAL M. Human exposure to per- and polyfluoroalkyl substances (PFAS) through drinking water : a review of the recent scientific literature [J]. *Environ Res*, 2019, 177 : 108648.

(英文编辑：汪源；责任编辑：王晓宇)