

新生儿脐血清多溴联苯醚浓度及影响因素

张磊¹, 郭剑秋¹, 张济明¹, 缪文彬¹, 齐小娟^{1,2}, 常秀丽¹, 邬春华¹, 周志俊¹

1. 复旦大学公共卫生学院/公共卫生安全教育部重点实验室, 上海 200032

2. 浙江省疾病预防控制中心, 浙江 杭州 310051

摘要:

[背景] 多溴联苯醚 (PBDEs) 是一种广泛使用的溴代阻燃剂, 对生态环境和人群健康均有不良影响, 因此监测脐带血中 PBDEs 浓度并探究其暴露影响因素可为母婴人群 PBDEs 暴露风险评估提供证据。

[目的] 评估新生儿脐血清中 PBDEs 的水平并分析暴露影响因素。

[方法] 以 2009 年 6 月—2010 年 1 月江苏省射阳小型出生队列中的 1027 名新生儿为研究对象, 采用问卷收集孕妇的社会人口学、居住环境和生活习惯等信息, 应用气相色谱-负化学电离质谱法测定脐血清中 9 种 PBDEs 同系物 (BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183、BDE-207、BDE-209) 的浓度, 并以脂质浓度校正。使用多元线性回归模型分析脐血清 PBDEs 浓度与孕妇社会人口学信息等的关联。

[结果] 所有脐血清样本中均可检出两种及以上的 PBDEs。检出率高于 90% 的有 BDE-207 (97.27%)、BDE-100 (92.99%) 和 BDE-209 (91.63%), BDE-28、BDE-153 和 BDE-154 的检出率范围为 71.21%~81.01%。脐血清浓度中位值最高的是 BDE-209, 浓度为 18.37 ng·g⁻¹ (按脂肪计), 其次为 BDE-207 (1.14 ng·g⁻¹)、BDE-28 (0.40 ng·g⁻¹) 和 BDE-100 (0.39 ng·g⁻¹) 等。多元线性回归分析发现: 脐血清 BDE-207 的浓度在 25~30 岁孕妇中高于年龄小于 25 岁的孕妇 ($b=0.21$, 95% CI: 0.02~0.41, $P=0.03$); 与孕期增重正常的孕妇相比, 孕期增重不足的孕妇 BDE-154 浓度较高 ($b=0.18$, 95% CI: 0.01~0.35, $P=0.04$), 而孕期增重过多的孕妇 BDE-209 浓度较低 ($b=-0.16$, 95% CI: -0.30~-0.01, $P=0.03$); 脐血清 BDE-153 和 BDE-154 的浓度与家庭年收入呈正相关 ($b=0.18$, 95% CI: 0.01~0.34, $P=0.04$; $b=0.23$, 95% CI: 0.12~0.34, $P=0.01$); 集镇居住孕妇的脐血清 BDE-100 浓度高于农村孕妇 ($b=0.19$, 95% CI: 0.01~0.38, $P=0.04$), 城区居住孕妇的脐血清 BDE-153 浓度高于农村孕妇 ($b=0.21$, 95% CI: 0.02~0.40, $P=0.03$)。此外, 脐血清中不同 PBDEs 同系物暴露水平存在新生儿出生季节的差异: 夏秋季出生新生儿脐血清 BDE-28 和 BDE-100 的浓度低于冬季出生的新生儿 ($b=-1.45$, 95% CI: -1.68~-1.23, $P=0.01$; $b=-0.60$, 95% CI: -0.76~-0.43, $P=0.01$); 相反, 夏秋季出生新生儿脐血清 BDE-153、BDE-154 和 BDE-209 的浓度高于冬季出生的新生儿 ($b=1.65$, 95% CI: 1.45~1.84, $P=0.01$; $b=0.40$, 95% CI: 0.27~0.53, $P=0.01$; $b=0.60$, 95% CI: 0.45~0.75, $P=0.01$)。

[结论] 本研究的新生儿广泛暴露于多种 PBDEs, 其中以 BDE-209 为主。研究提示脐血清 PBDEs 的浓度与孕妇社会人口学信息和新生儿出生季节有关。

关键词: 多溴联苯醚; 脐带血; 母婴; 出生队列

Cord serum polybrominated diphenyl ethers levels in newborns and their influencing factors

ZHANG Lei¹, GUO Jianqiu¹, ZHANG Jiming¹, MIAO Wenbin¹, QI Xiaojuan^{1,2}, CHANG Xiuli¹, WU Chunhua¹, ZHOU Zhijun¹ (1.School of Public Health/Key Laboratory of Public Health Safety of Ministry of Education, Fudan University, Shanghai 200032, China; 2.Zhejiang Provincial Center for Disease Control and Prevention, Hangzhou, Zhejiang 310051, China)

Abstract:

[Background] Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) are widely used as brominated flame retardants and produce adverse effects on both ecological environment and human health. Therefore, monitoring the concentrations of PBDEs in cord serum and exploring the influencing factors can provide evidence for risk assessment in mother and infant populations.

[Objective] The aim of this study is to evaluate PBDEs levels in newborn cord serum and explore

DOI 10.13213/j.cnki.jeom.2021.21139

组稿专家

周志俊 (复旦大学公共卫生学院), E-mail: zjzhou@fudan.edu.cn

陶芳标 (安徽医科大学), E-mail: fbtiao@ahmu.edu.cn

基金项目

上海市公共卫生三年行动计划重点学科建设项目 (GWV-10.1-XK11)

作者简介

张磊 (1994—), 男, 硕士生;

E-mail: 19211020054@fudan.edu.cn

通信作者

邬春华, E-mail: chwu@shmu.edu.cn

伦理审批 已获取

利益冲突 无申报

收稿日期 2021-04-05

录用日期 2021-07-15

文章编号 2095-9982(2021)09-0958-08

中图分类号 R17

文献标志码 A

补充材料

www.jeom.org/article/cn/10.13213/j.cnki.jeom.2021.21139

►引用

张磊, 郭剑秋, 张济明, 等. 新生儿脐血清多溴联苯醚浓度及影响因素 [J]. 环境与职业医学, 2021, 38 (9): 958-965.

►本文链接

www.jeom.org/article/cn/10.13213/j.cnki.jeom.2021.21139

Correspondence to

WU Chunhua, E-mail: chwu@shmu.edu.cn

Ethics approval Obtained

Competing interests None declared

Received 2021-04-05

Accepted 2021-07-15

Supplemental material

www.jeom.org/article/en/10.13213/j.cnki.jeom.2021.21139

► To cite

ZHANG Lei, GUO Jianqiu, ZHANG Jiming, et al. Cord serum polybrominated diphenyl ethers levels in newborns and their influencing factors [J]. Journal of Environmental and Occupational Medicine, 2021, 38(9): 958-965.

► Link to this article

www.jeom.org/article/en/10.13213/j.cnki.jeom.2021.21139

associated influencing factors.

[Methods] Between June 2009 and January 2010, 1 027 newborns from Sheyang Mini Birth Cohort Study (SMBCS) in Jiangsu Province were enrolled in this study. A questionnaire survey was conducted to collect the pregnant women's socio-demographic characteristics, living environment, and lifestyles. A total of nine PBDE congeners (BDE-28, BDE-47, BDE-99, BDE-100, BDE-153, BDE-154, BDE-183, BDE-207, and BDE-209) in the collected cord serum samples were determined using gas chromatography-negative chemical ionization mass spectrometry (GC-NCI-MS) and adjusted by total serum lipid concentrations. A multiple linear regression model was applied to explore the association between cord serum PBDEs concentrations and mother's socio-demographic characteristics.

[Results] Two or more PBDEs were detected in all cord serum samples. The positive rates of BDE-207 (97.27%), BDE-100 (92.99%), and BDE-209 (91.63%) were higher than 90%, followed by BDE-28, BDE-153, and BDE-154 with the positive rates ranging from 71.21% to 81.01%. The most abundant congener in cord serum was BDE-209, with a median concentration of 18.37 ng·g⁻¹ (calculated by lipid), followed by BDE-207 (1.14 ng·g⁻¹), BDE-28 (0.40 ng·g⁻¹), and BDE-100 (0.39 ng·g⁻¹). The results of multiple linear regression models indicated that mothers aged 25 to 30 years had a higher cord serum concentration of BDE-207 ($b=0.21$, 95% CI: 0.02-0.41; $P=0.03$) than those under 25 years old; mothers with insufficient weight gain had a higher BDE-154 concentration ($b=0.18$, 95% CI: 0.01-0.35; $P=0.04$) and mothers with higher weight gain had a lower BDE-209 concentration ($b=-0.16$, 95% CI: -0.30--0.01; $P=0.03$) than those with normal gestational weight gain; cord serum concentrations of BDE-153 ($b=0.18$, 95% CI: 0.01-0.34; $P=0.04$) and BDE-154 ($b=0.23$, 95% CI: 0.12-0.34; $P=0.01$) were significantly positively associated with annual household income; the mothers who lived in suburban areas had a higher BDE-100 concentration ($b=0.19$, 95% CI: 0.01-0.38; $P=0.04$) and the mothers who lived in urban areas had a higher BDE-153 concentration ($b=0.21$, 95% CI: 0.02-0.40; $P=0.03$) than those living in rural areas. Additionally, seasonal differences were also observed in the cord serum PBDEs concentrations. The cord serum BDE-28 ($b=-1.45$, 95% CI: -1.68--1.23; $P=0.01$) and BDE-100 ($b=-0.60$, 95% CI: -0.76--0.43; $P=0.01$) concentrations collected in summer and autumn were lower than those in winter, while the BDE-153 ($b=1.65$, 95% CI: 1.45-1.84; $P=0.01$), BDE-154 ($b=0.40$, 95% CI: 0.27-0.53; $P=0.01$) and BDE-209 ($b=0.60$, 95% CI: 0.45-0.75; $P=0.01$) concentrations presented opposite seasonal pattern.

[Conclusion] The selected newborns are extensively exposed to various PBDEs, among which BDE-209 is the most dominant congener. Their cord serum PBDEs concentrations are associated with maternal socio-demographic characteristics and birth season.

Keywords: polybrominated diphenyl ethers; cord serum; mother and infant; birth cohort

多溴联苯醚 (polybrominated diphenyl ethers, PBDEs) 是一种广泛应用于聚氨酯泡沫塑料、电子设备、纺织品和聚苯乙烯等产品的溴代阻燃剂, 目前常用的有五溴联苯醚、八溴联苯醚和十溴联苯醚^[1]。动物实验及流行病学证据显示, PBDEs 暴露对人体具有神经发育毒性、内分泌干扰作用等多种不良健康影响^[2]。2009 年五溴联苯醚和八溴联苯醚被斯德哥尔摩公约列为持久性有机污染物, 2017 年十溴联苯醚也被列入该名单^[3]。自 2003 年起欧盟禁止 PBDEs 的生产和使用^[4], 在 2004 年北美市场也限制了产品中五溴联苯醚和八溴联苯醚的含量^[5]。中国在 2000 年溴代阻燃剂产量为 10 000 t, 对 PBDEs 的需求每年以 8% 的速度上升, 其中十溴联苯醚和四溴双酚 A 是最主要的溴代阻燃剂^[6], 目前为止, 十溴联苯醚在中国仍在生产和使用^[7]。

人类主要通过摄入饮食和吸入灰尘等非职业接触途径暴露于 PBDEs^[8], 而不同地区、性别和年龄等特征人群生活方式不同, 暴露于 PBDEs 的风险也不同, 以往研究表明孕妇年龄、教育水平、孕期增重、居住地等社会人口学信息与血清中 PBDEs 浓度有关, 但研究结果尚不一致^[9-12]。美国的一项研究发现脐血血清 BDE-99、BDE-100 和 BDE-153 的检出率均高于 80%, 含量中位值

范围为 2.30~6.19 ng·g⁻¹ (按脂肪计, 后同)^[13]; 中国的山东莱州湾出生队列发现脐血血清 BDE-28、BDE-47、BDE-99 和 BDE-100 的检出率也均高于 80%, 浓度中位值范围为 2.29~7.03 ng·g⁻¹^[14]。对于人体 PBDEs 暴露水平及相关因素的研究多集中在电子垃圾场等重污染地区附近、PBDEs 生产地区和城区, 而在农业地区开展的相关研究较少^[15-17]。在本研究中, 基于江苏省射阳小型出生队列 (Sheyang Mini Birth Cohort Study, SMBCS) 测定脐血血清样本中 PBDEs 的水平并探索孕期暴露的相关因素, 为评估农业地区孕妇孕期 PBDEs 的暴露负荷提供数据支持, 同时为采取相关措施减少 PBDEs 接触提供理论依据。

1 对象与方法

1.1 研究对象

本研究基于课题组射阳小型出生队列进行开展, 该队列是一项前瞻性出生队列, 旨在研究孕期和儿童期环境污染物暴露对儿童的潜在健康风险^[18]。自 2009 年 6 月—2010 年 1 月期间, 共 1 303 名在江苏省某县妇产科医院生产的健康孕妇自愿参加调查, 在排除脐血血清样本量不足的孕妇后, 共 1 027 名研究对

象纳入本研究。所有研究对象均签署了知情同意书,该研究通过了复旦大学公共卫生学院伦理委员会的审查和批准(批准号为IRB#2021-02-0875)。

1.2 孕妇问卷调查

孕妇分娩后3 d内由调查员对其进行问卷调查,问卷为自行编制的调查表,内容包括孕妇年龄、身高、孕前体重、孕期增重、家庭年收入、职业等社会人口学信息,居住地类型以及采样季节等信息^[18]。孕妇孕前体重指数(body mass index, BMI)以孕前体重(kg)/身高²(m²)计算得到。参考美国医学研究院发布的孕期增重指南^[19],孕前BMI<18.5、18.5~<25、≥25 kg·m⁻²的孕妇正常增重范围分别为12.7~18.2、11.4~15.9、6.8~11.4 kg,并将孕期增重分为增重不足、增重正常和增重过多三组。将政府或企事业单位及医疗卫生服务人员划分为脑力劳动者,厂矿工、农业劳动、驾驶员、渔民和商业服务等人员划分为体力劳动者,无工作在家人员划分为无工作者。依据问卷信息将研究对象居住地划分为城区、集镇和农村。2009年6—11月采集脐带血样本者为夏秋季组,2009年12月—2010年2月采样者为冬季组。

1.3 样本采集和实验室检测

脐带血样本由专业护士在孕妇分娩后从脐静脉抽取,离心后在无菌离心管(美国Corning)中-80℃保存。对脐带血清9种PBDEs同系物(BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183、BDE-207和BDE-209)的测定方法已在发表论文中详述^[20]。简单地说,以甲酸(美国Sigma)去除血清蛋白后,用OasisHLB SPE柱(60 mg/3 mL,美国Waters)萃取净化,将洗脱液氮吹至近干后,加入正己烷(中国迪科马)复溶并使用气相色谱-质谱联用仪(TRACE GC ULTRA-TSQ QUANTUM XLS,美国赛默飞世尔)进行检测。方法的日内精密度和日间精密度的分别为1.2%~9.8%和1.8%~11.1%,目标化合物的平均回收率为80.5%~110.2%,除BDE-207和BDE-209的检出限分别为0.653、10.038 ng·L⁻¹外,其他物质的检出限均为0.208 ng·L⁻¹。以全自动生化分析仪检测总胆固醇和甘油三酯浓度后,计算总脂肪含量并校正PBDEs稀释度^[21]。

1.4 统计学分析

用中位数、几何均值、几何标准差、四分位数描述各PBDEs浓度分布的一般特征。由于BDE-47、BDE-99和BDE-183的检出率小于70%,因此不纳入后续分析。低于LOD值的PBDEs浓度以LOD/√2替代,由于脐血血

清中各PBDEs的浓度为偏态分布,将其进行自然对数转换后再进一步分析,问卷变量信息缺失值以多重填补法进行填充(填充比例小于6%,应用R3.5.1软件进行分析)。

计算各PBDEs同系物浓度之和(ΣPBDE)。使用Pearson相关分析检验各PBDEs间的相关性。应用多元线性回归模型对研究对象社会人口学信息等与孕期PBDEs暴露间的关联进行分析。将以往研究表明与PBDEs浓度相关^[14-15, 17]或单因素分析表明与PBDEs浓度相关的变量($P<0.10$)纳入多元线性回归模型,最终纳入的变量有:孕妇年龄、孕前BMI、孕期增重、受教育水平、家庭年收入、职业类型、居住地类型、采样季节。使用SPSS 17.0和Stata 15.1进行统计学分析,检验水准 $\alpha=0.05$ 。

2 结果

2.1 研究对象基本信息

在本研究中,有485名孕妇(47.22%)的年龄小于25岁,71.28%的孕妇孕前BMI处于正常范围(18.5~<24 kg·m⁻²),54.33%的孕妇孕期增重过多,56.38%的孕妇职业类型为体力劳动,家庭年收入超过3万元者占53.75%,居住在农村(42.75%)的孕妇略多于居住在集镇和城区者,在夏秋季采集脐带血的孕妇占75.56%。结果见表1。

表1 孕妇基本信息
Table 1 General characteristics of mothers

变量 (Variable)	n (%)
年龄 / 岁 (Age/years)	
<25	485 (47.22)
25~	353 (34.37)
31~	189 (18.41)
孕前BMI/ (kg·m ⁻²) [Pre-pregnancy BMI/ (kg·m ⁻²)]	
<18.5	124 (12.07)
18.5~	732 (71.28)
24~	171 (16.65)
孕期增重 (Gestational weight gain)	
增重正常 (Normal)	310 (30.19)
增重不足 (Low)	159 (15.48)
增重过多 (High)	558 (54.33)
教育水平 (Education level)	
<高中 (<High school)	660 (64.26)
≥高中 (≥High school)	367 (35.74)
家庭年收入 / 元 (Household annual income/yuan)	
<30000	475 (46.25)
30000~	552 (53.75)

续表 1

变量 (Variable)	n (%)
职业类型 (Occupation)	
无工作 (Unemployed)	331 (32.23)
体力劳动 (Manual work)	579 (56.38)
脑力劳动 (Mental work)	117 (11.39)
居住地类型 (Residence)	
农村 (Rural)	439 (42.75)
集镇 (Suburb)	210 (20.45)
城区 (Urban)	378 (36.80)
采样季节 (Sampling season)	
冬季 (Winter)	251 (24.44)
夏秋季 (Summer and autumn)	776 (75.56)

[注] BMI: 体重指数。

[Note] BMI: body mass index.

2.2 脐血血清中 PBDEs 的浓度

所有脐血血清样本中均可检出两种及以上的 PBDEs。检出率高于 90% 的有 BDE-207 (97.27%)、BDE-100 (92.99%) 和 BDE-209 (91.63%)，BDE-28、BDE-153 和 BDE-154 的检出率范围为 71.21%~81.01%，剩余 PBDEs 同系物的检出率均低于 70%。PBDEs 浓度在个体间差异较大，最低和最高检出浓度可相差 2~3 个数量级，BDE-207 和 BDE-209 的脐血血清中位浓度值较高，分别为 1.14、18.37 ng·g⁻¹，而 BDE-183 的脐血血清中位值浓度甚至小于 LOD 值，PBDEs 浓度之和 (ΣPBDE) 中位值为 0.03 μmol·L⁻¹。见表 2。

表 2 脐血血清中 9 种 PBDEs 脂质校正浓度分布

Table 2 Distribution of 9 PBDEs concentrations adjusted by lipid in cord serum

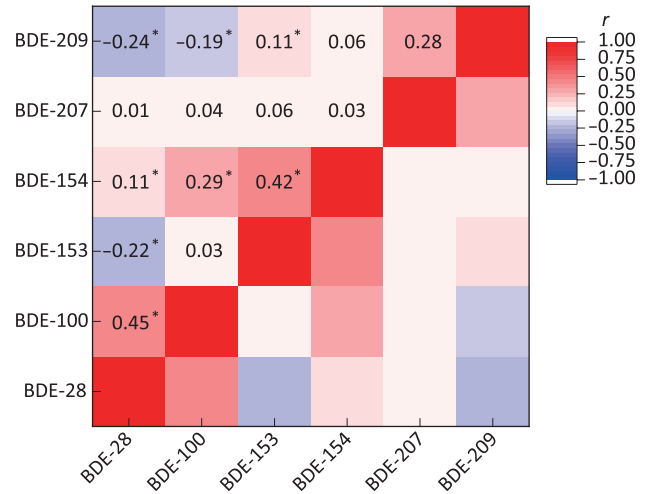
PBDEs	检出率/% Positive rate/%	浓度 / (ng·g ⁻¹) [Concentration / (ng·g ⁻¹)]				
		GM (GSD)	P ₂₅	P ₅₀	P ₇₅	范围 Range
BDE-28	81.01	0.42 (5.24)	0.13	0.4	1.17	0.08~17.42
BDE-47	52.09	0.20 (6.16)	<LOD	0.1	0.8	0.08~18.25
BDE-99	50.05	0.10 (2.86)	<LOD	0.05	0.2	0.05~6.30
BDE-100	92.99	0.41 (3.14)	0.19	0.39	0.95	0.08~6.96
BDE-153	80.92	0.37 (4.57)	0.12	0.38	1.04	0.07~29.96
BDE-154	71.21	0.12 (2.49)	<LOD	0.12	0.23	0.06~3.66
BDE-183	47.61	0.28 (2.40)	<LOD	<LOD	0.55	0.23~8.55
BDE-207	97.27	1.07 (2.80)	0.63	1.14	2.11	0.08~11.68
BDE-209	91.63	17.01 (2.90)	8.41	18.37	35.44	3.43~190.25
ΣPBDE*	100.00	0.03 (2.05)	0.02	0.03	0.05	0.01~0.27

[注] GM: 几何均值; GSD: 几何标准差; LOD: 检出限; *: 9 种 PBDEs 浓度之和, 单位为 μmol·L⁻¹。

[Note] GM: Geometric mean; GSD: Geometric standard deviation; LOD: Limit of detection; *: The sum of molar concentrations of 9 PBDE congeners, μmol·L⁻¹.

6 种 PBDEs 同系物间的相关性分析结果如图 1 所示, 仅 BDE-28 与 BDE-153 ($r=-0.22, P<0.05$)、BDE-209

($r=-0.24, P<0.05$), 以及 BDE-100 与 BDE-209 ($r=-0.19, P<0.05$) 之间为弱负相关, 其余 PBDEs 同系物间多呈正相关 (r 值范围: 0.11~0.83)。



[注 (Note)] *: $P<0.05$ 。

图 1 脐血血清中 6 种 PBDEs 及 ΣPBDE 浓度的相关性分析
Figure 1 Correlations among 6 PBDEs concentrations in cord serum

2.3 脐血血清 PBDEs 浓度的相关因素

脐血血清 PBDEs 浓度与孕妇社会人口学信息的关联分析结果见表 3。孕妇年龄为 25~30 岁的新生儿脐血血清 BDE-207 的浓度高于年龄小于 25 岁的孕妇 [回归系数 $b=0.21$, 95% 置信区间 (CI): 0.02~0.41, $P=0.03$]; 与孕期增重正常的孕妇相比, 孕期增重不足的孕妇 BDE-154 浓度较高 ($b=0.18$, 95% CI : 0.01~0.35, $P=0.04$), 而孕期增重过多的孕妇 BDE-209 浓度较低 ($b=-0.16$, 95% CI : -0.30~-0.01, $P=0.03$); 脐血血清 BDE-153 和 BDE-154 的浓度与家庭年收入呈正相关 ($b=0.18$, 95% CI : 0.01~0.34, $P=0.04$; $b=0.23$, 95% CI : 0.12~0.34, $P=0.01$); 集镇居住孕妇的脐血血清 BDE-100 ($b=0.19$, 95% CI : 0.01~0.38, $P=0.04$) 浓度高于农村孕妇, 城区居住孕妇的脐血血清 BDE-153 浓度高于农村孕妇 ($b=0.21$, 95% CI : 0.02~0.40, $P=0.03$)。除此之外, 新生儿脐血血清中不同 PBDEs 同系物暴露水平存在出生 (采样) 季节的差异: 夏秋季出生新生儿脐血血清 BDE-28 和 BDE-100 的浓度低于冬季出生的新生儿 ($b=-1.45$, 95% CI : -1.68~-1.23, $P=0.01$; $b=-0.60$, 95% CI : -0.76~-0.43, $P=0.01$); 相反, 夏秋季出生新生儿脐血血清 BDE-153、BDE-154 和 BDE-209 的浓度高于冬季出生的新生儿 ($b=1.65$, 95% CI : 1.45~1.84, $P=0.01$; $b=0.40$, 95% CI : 0.27~0.53, $P=0.01$; $b=0.60$, 95% CI : 0.45~0.75, $P=0.01$)。

表3 脐血血清PBDEs浓度的相关因素 [b (95% CI)]
Table 3 Factors associated with cord serum PBDEs concentrations [b (95% CI)]

孕妇信息 (Characteristics of mothers)	BDE-28	BDE-100	BDE-153	BDE-154	BDE-207	BDE-209
年龄 / 岁 (Age/years)						
<25	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)
25~	-0.12 (-0.41~0.17)	-0.05 (-0.26~0.16)	0.06 (-0.19~0.31)	-0.09 (-0.26~0.08)	0.21 (0.02~0.41) *	-0.03 (-0.22~0.17)
31~	-0.11 (-0.47~0.24)	-0.05 (-0.31~0.21)	-0.06 (-0.37~0.25)	-0.14 (-0.35~0.06)	0.15 (-0.09~0.39)	-0.07 (-0.31~0.17)
孕前BMI/ (kg·m ⁻²) Pre-pregnancy BMI/ (kg·m ⁻²)						
<18.5	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)
18.5~	0.25 (-0.05~0.55)	-0.01 (-0.23~0.20)	-0.02 (-0.28~0.24)	-0.04 (-0.22~0.13)	-0.06 (-0.26~0.14)	0.07 (-0.13~0.27)
24~	0.29 (-0.08~0.66)	-0.02 (-0.29~0.25)	0.02 (-0.30~0.35)	-0.01 (-0.23~0.20)	-0.16 (-0.41~0.09)	0.12 (-0.13~0.37)
孕期增重 (Gestational weight gain)						
增重正常 (Normal)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)
增重不足 (Low)	0.01 (-0.28~0.31)	0.05 (-0.17~0.26)	-0.16 (-0.10~0.42)	0.18 (0.01~0.35) *	-0.19 (-0.39~0.01)	-0.08 (-0.28~0.12)
增重过多 (High)	0.13 (-0.08~0.35)	0.01 (-0.16~0.16)	-0.12 (-0.31~0.07)	-0.01 (-0.34~-0.02)	-0.09 (-0.23~0.06)	-0.16 (-0.30~-0.01) *
教育水平 (Education level)						
<高中 (<High school)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)
≥高中 (≥High school)	0.02 (-0.20~0.24)	-0.10 (-0.26~0.06)	-0.15 (-0.35~0.04)	-0.06 (-0.18~0.07)	-0.03 (-0.18~0.11)	-0.01 (-0.16~0.14)
家庭年收入 / 元 Household annual income/yuan						
<30000	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)
30000~	0.17 (-0.02~0.37)	0.08 (-0.06~0.22)	0.18 (0.01~0.34) *	0.23 (0.12~0.34) *	0.05 (-0.08~0.18)	-0.11 (-0.24~0.02)
职业类型 (Occupation)						
无工作 (Unemployed)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)
体力劳动 (Manual work)	-0.11 (-0.32~0.10)	0.10 (-0.06~0.25)	0.05 (-0.13~0.24)	0.04 (-0.08~0.16)	0.07 (-0.07~0.21)	0.02 (-0.12~0.16)
脑力劳动 (Mental work)	0.06 (-0.30~0.41)	0.04 (-0.22~0.30)	-0.09 (-0.40~0.22)	0.04 (-0.16~0.25)	-0.06 (-0.30~0.18)	0.07 (-0.17~0.31)
居住地类型 (Residence)						
农村 (Rural)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)
集镇 (Suburb)	0.01 (-0.25~0.26)	0.19 (0.01~0.38) *	-0.03 (-0.26~0.19)	-0.10 (-0.25~0.04)	-0.12 (-0.30~0.05)	-0.10 (-0.27~0.07)
城区 (Urban)	0.07 (-0.15~0.29)	0.08 (-0.08~0.24)	0.21 (0.02~0.40) *	0.01 (-0.12~0.13)	-0.08 (-0.23~0.07)	-0.06 (-0.21~0.09)
采样季节 (Sampling season)						
冬季 (Winter)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)	参考 (Ref.)
夏秋季 (Summer and autumn)	-1.45 (-1.68~-1.23) *	-0.60 (-0.76~-0.43) *	1.65 (1.45~1.84) *	0.40 (0.27~0.53) *	-0.07 (-0.22~0.08)	0.60 (0.45~0.75) *

[注] * : $P < 0.05$; 各模型分别以对数转换PBDEs浓度为应变量, 年龄、孕前BMI、孕期增重、受教育水平、职业类型、家庭年收入、居住地类型和采样季节为自变量。

[Note] * : $P < 0.05$; Ln-transformed PBDEs concentrations are taken as dependent variables, and age, pre-pregnancy BMI, gestational weight gain, education level, occupation, household annual income, residence, and sampling season as independent variables.

3 讨论

本研究基于SMBCS, 对1027名孕妇脐血血清中9种PBDEs浓度进行了测定, 并探索了孕期PBDEs暴露的相关因素。研究发现, 所有脐血血清样本中均至少检出两种PBDEs同系物, 且各PBDEs浓度之间普遍呈正相关关系, 其中BDE-209不仅检出率较高, 其脂质校正浓度也比其他PBDEs同系物高出1~2个数量级; 研究还提示PBDEs的暴露水平与孕妇年龄、家庭年收入、居住地类型和新生儿出生季节相关。

本研究新生儿脐血血清中经脂质校正的9种PBDEs中位值浓度与其他研究脐血血清PBDEs浓度的比较见补充材料表S1。在本研究中, BDE-209的脐血血清中位浓度在所有PBDEs同系物中最高, 同样的,

在中国贵屿、西班牙和法国的研究中, BDE-209浓度在所有PBDEs同系物中也最高^[9, 22-23]。这可能是由于欧盟和中国分别自2004年和2006年起对其他种类PBDEs同系物的生产和使用有所限制, 而截至目前仍未对BDE-209进行管控所致^[24-25], 另外, 研究表明在土壤、灰尘中检出的各种PBDEs中, BDE-209所占的浓度比例最高^[1, 26], 可能会增加人类BDE-209暴露的机会。与在中国台湾、乌鲁木齐和贵屿开展的研究^[4, 23, 27]相比, 本研究脐血血清中低溴化的BDE-28、BDE-99、BDE-100、BDE-153和BDE-154浓度与其相近, 但低于中国莱州湾的一项研究结果^[14], 这可能是因莱州湾是中国生产PBDEs的主要基地之一, 其研究区域内空气和沉积物中PBDEs浓度均较高, 研究人群

暴露机会和浓度更大^[28]。另外,本研究与中国上海新生儿脐血血清 BDE-28、47、99 和 183 的浓度相近,但 BDE-100、153、154 的浓度较高^[16]。

与现有研究相比,加拿大孕妇脐血血清 PBDEs 中位浓度均最高,是本研究各 PBDEs 浓度的 14~504 倍,一是因为该加拿大的研究采集样本较早(2004—2005),在该地尚未有对 PBDEs 生产和使用的限制,二是因为该研究中的妇女社会经济水平高,接触含 PBDEs 的产品机会更多^[8]。在韩国的一项研究中,脐血血清多数 PBDEs 中位浓度低于定量限,这与其检测方法有关(定量限范围:0.17~0.83 ng·g⁻¹),但其 BDE-28 (2.19 ng·g⁻¹) 和 BDE-99 (1.65 ng·g⁻¹) 的浓度高于本研究^[2]。与包括加拿大和美国在内的北美国家相比^[8, 13, 29],本研究各 PBDEs 浓度均较低,这可能是由于不同国家人群的生活习惯和居住环境不同导致。

本研究对新生儿 PBDEs 暴露的相关因素分析发现 25~30 岁组的脐血血清 BDE-207 浓度高于 <25 组,而在其他研究中观察到脐带血 PBDEs 浓度与年龄的负相关关系^[29] 或未发现关联^[10],这可能是由于各国家或地区不同年龄段人群对含 PBDEs 产品的使用情况不同,需要更多的研究进行探索。在本研究中,孕期增重不足的孕妇脐血血清 BDE-154 浓度较高,而孕期增重过多的孕妇脐血血清 BDE-209 浓度较低,这可能是由于体重增加对有机卤素水平的“脂质稀释”作用造成的^[30]。高收入组比低收入组孕妇脐血血清 BDE-153 和 BDE-154 浓度要高,提示高收入人群暴露于 PBDEs 的机会更多,但另一项美国的研究^[29] 显示收入与脐血血清 PBDEs 浓度负相关,结论尚不统一。与西班牙和美国的研究结果相似^[12, 29],本研究中居住在集镇和城区的孕妇,其脐血血清 BDE-100 和 BDE-153 的浓度也比农村孕妇更高。

本研究显示,各 PBDEs 同系物浓度与新生儿出生季节有关,夏秋季出生新生儿脐血血清 BDE-28 和 BDE-100 的浓度低于冬季出生者。既往研究显示,室内灰尘是人体 PBDEs 暴露的主要途径之一^[31-32],在冬季人群室内活动时长增加;另外,研究证明冬季较低的温度会促进 PBDEs 在颗粒上的吸附^[33-34],且人体通过 PM_{2.5} 暴露于 PBDEs 的风险在冬季最高^[35]。而本研究中在夏秋季出生新生儿脐血血清 BDE-153、BDE-154 和 BDE-209 的浓度高于冬季出生者,这可能是由于该研究在沿海地区开展,夏秋季人群海产品摄入相对冬季更多,且研究表明在海产品中 BDE-153、BDE-154 和

BDE-209 的检出率均较高^[36]。

该研究的优势在于研究样本量较大,得到的结果更加可靠。另外,在本研究中测定了既往较少研究的 BDE-207 和 BDE-209 的脐血血清浓度。有研究表明 PBDEs 可通过胎盘屏障进入胎儿体内^[37],脐带作为连接母亲和胎儿的纽带,脐带血 PBDEs 浓度既可以代表母亲暴露水平,也可以作为妊娠期胎儿暴露的指标^[38]。当然,本研究也存在不足之处,由于问卷中缺少孕妇孕期的饮食和室内环境等信息,因此无法探究这些因素对 PBDEs 暴露的影响,且研究人群均来自一家妇产医院,结果可能存在一定程度的选择偏倚。

综上,该研究的新生儿广泛暴露于 PBDEs,其中以 BDE-209 最为主要,研究提示新生儿 PBDEs 的暴露水平分布与孕妇年龄、家庭年收入、居住地类型和新生儿出生季节有关。需要进一步研究继续监测孕妇和儿童 BDE-209 的暴露水平,同时采取相应预防措施以减少接触。

(志谢:感谢自愿参加队列的母子对以及江苏省某县妇产科医院医护人员的帮助。)

参考文献

- [1] MCGRATH T J, MORRISON P D, SANDIFORD C J, et al. Widespread polybrominated diphenyl ether (PBDE) contamination of urban soils in Melbourne, Australia [J]. *Chemosphere*, 2016, 164: 225-232.
- [2] CHOI G, KIM S, KIM S, et al. Occurrences of major polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in maternal and fetal cord blood sera in Korea [J]. *Sci Total Environ*, 2014 (491/492): 219-226.
- [3] ZHAO X, YANG X, DU Y, et al. Polybrominated diphenyl ethers in serum from residents living in a brominated flame retardant production area: occurrence, influencing factors, and relationships with thyroid and liver function [J]. *Environ Pollut*, 2021, 270: 116046.
- [4] LIN S M, CHEN F A, HUANG Y F, et al. Negative associations between PBDE levels and thyroid hormones in cord blood [J]. *Int J Hyg Environ Health*, 2011, 214 (2): 115-120.
- [5] HUANG F, WEN S, LI J, et al. The human body burden of polybrominated diphenyl ethers and their relationships with thyroid hormones in the general population in Northern China [J]. *Sci Total Environ*, 2014 (466/467): 609-615.
- [6] JIN J, WANG Y, YANG C, et al. Polybrominated diphenyl

- ethers in the serum and breast milk of the resident population from production area, China [J]. *Environ Int*, 2009, 35 : 1048-1052.
- [7] SHARKEY M, HARRAD S, ABOU-ELWAFI ABDALLAH M, et al. Phasing-out of legacy brominated flame retardants : the UNEP Stockholm convention and other legislative action worldwide [J]. *Environ Int*, 2020, 144 : 106041.
- [8] FOSTER WG, GREGOROVICH S, MORRISON KM, et al. Human maternal and umbilical cord blood concentrations of polybrominated diphenyl ethers [J]. *Chemosphere*, 2011, 84 (10) : 1301-1309.
- [9] ANTIGNAC JP, CARIOU R, ZALCO D, et al. Exposure assessment of French women and their newborn to brominated flame retardants : determination of tri- to decapolybromodiphenylethers (PBDE) in maternal adipose tissue, serum, breast milk and cord serum [J]. *Environ Pollut*, 2009, 157 (1) : 164-173.
- [10] BRADMAN A, FENSTER L, SJÖDIN A, et al. Polybrominated diphenyl ether levels in the blood of pregnant women living in an agricultural community in California [J]. *Environ Health Perspect*, 2007, 115 (1) : 71-74.
- [11] CASTORINA R, BRADMAN A, SJÖDIN A, et al. Determinants of serum polybrominated diphenyl ether (PBDE) levels among pregnant women in the CHAMACOS cohort [J]. *Environ Sci Technol*, 2011, 45 (15) : 6553-6560.
- [12] VIZCAINO E, GRIMALT JO, LOPEZ-ESPINOSA MJ, et al. Polybromodiphenyl ethers in mothers and their newborns from a non-occupationally exposed population (Valencia, Spain) [J]. *Environ Int*, 2011, 37 (1) : 152-157.
- [13] CHEN A, PARK JS, LINDERHOLM L, et al. Hydroxylated polybrominated diphenyl ethers in paired maternal and cord sera [J]. *Environ Sci Technol*, 2013, 47 (8) : 3902-3908.
- [14] CHEN L, WANG C, ZHANG Y, et al. Polybrominated diphenyl ethers in cord blood and perinatal outcomes from Laizhou Wan Birth Cohort, China [J]. *Environ Sci Pollut Res*, 2018, 25 (21) : 20802-20808.
- [15] CHEN ZJ, LIU HY, CHENG Z, et al. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in human samples of mother-newborn pairs in South China and their placental transfer characteristics [J]. *Environ Int*, 2014, 73 : 77-84.
- [16] 栾敏, 梁红, 王子亮, 等. 上海闵行区新生儿脐血多溴联苯醚暴露水平及其影响因素 [J]. *环境与职业医学*, 2019, 36 (1) : 1-10.
- LUAN M, LIANG H, WANG ZL, et al. Concentrations and influencing factors of polybrominated diphenyl ethers in cord blood of newborns in Minhang District of Shanghai [J]. *J Occup Environ Med*, 2019, 36 (1) : 1-10.
- [17] DIE Q, NIE Z, HUANG Q, et al. Concentrations and occupational exposure assessment of polybrominated diphenyl ethers in modern Chinese e-waste dismantling workshops [J]. *Chemosphere*, 2019, 214 : 379-388.
- [18] QI XJ, ZHENG ML, WU CH, et al. Urinary pyrethroid metabolites among pregnant women in an agricultural area of the Province of Jiangsu, China [J]. *Int J Hyg Environ Health*, 2012, 215 (5) : 487-495.
- [19] 毛丽梅, 陆青贵. 《美国 IOM 修订的孕期增重指南》简报 [C] // 中国营养学会妇幼营养第七次全国学术会议论文集汇编. 南京 : 中国营养学会, 2010 : 2.
- MAO L M, LU Q G. Brief report for “American IOM revised guidelines for weight gain during pregnancy” [C] // Compilation of Papers of the 7th National Conference on Maternal and Child Nutrition of Chinese Nutrition Society. Nanjing : Chinese Nutrition Society, 2010 : 2.
- [20] MIAO W, WU C, YANG J, et al. Simultaneous determination of trace polybrominated diphenyl ethers in serum using gas chromatography-negative chemical ionization mass spectrometry with simplified sample preparation [J]. *Anal Methods*, 2015, 7 (14) : 5907-5912.
- [21] SCHISTERMAN EF, WHITCOMB BW, LOUIS GM, et al. Lipid adjustment in the analysis of environmental contaminants and human health risks [J]. *Environ Health Perspect*, 2005, 113 (7) : 853-857.
- [22] GARCÍA-VILLARINO M, RIAÑO-GALÁN I, RODRÍGUEZ-DEHLI AC, et al. Association between pre/perinatal exposure to POPs and children’s anogenital distance at age 4 years : a study from the INMA-Asturias cohort [J]. *Int J Hyg Environ Health*, 2020, 229 : 113563.
- [23] WU K, XU X, LIU J, et al. Polybrominated diphenyl ethers in umbilical cord blood and relevant factors in neonates from Guiyu, China [J]. *Environ Sci Technol*, 2010, 44 (2) : 813-819.
- [24] European Commission. Regulation (EC) no 850/2004 of the European parliament and of the Council of 29 April 2004 on persistent organic pollutants and amending Directive 79/117/

- EEC [EB/OL] . (2004-04-29) [2021-04-01] . <https://www.legislation.gov.uk/eur/2004/850/2004-04-29>.
- [25] Standard of the Electronics Industry of the People's Republic of China. Requirements for Concentration limits for certain hazardous substances in electronic information products [EB/OL] . (2006-11-06) [2021-04-01] . https://www.cedmb.com/system/files/public/rohs-service/SJ_T11363-2006.pdf.
- [26] WU MH, PEI JC, ZHENG M, et al. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in soil and outdoor dust from a multi-functional area of Shanghai : levels, compositional profiles and interrelationships [J] . *Chemosphere*, 2015, 118 : 87-95.
- [27] 王永治, 李美艳, 阿依古丽·阿力木, 等. 乌鲁木齐市新生儿脐血多溴联苯醚水平与出生结局的关联性研究 [J] . *预防医学*, 2020, 32 (5) : 526-529.
- WANG YZ, LI MY, AYIGULI A, et al. Relationship between PBDEs level in cord blood and birth outcome in Urumqi [J] . *Prev Med*, 2020, 32 (5) : 526-529.
- [28] JIN J, LIU W, WANG Y, et al. Levels and distribution of polybrominated diphenyl ethers in plant, shellfish and sediment samples from Laizhou Bay in China [J] . *Chemosphere*, 2008, 71 (6) : 1043-1050.
- [29] HERBSTMAN JB, SJÖDIN A, APELBERG BJ, et al. Determinants of prenatal exposure to polychlorinated biphenyls (PCBs) and polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in an Urban Population [J] . *Environ Health Perspect*, 2007, 115 (12) : 1794-1800.
- [30] GLYNN A, AUNE M, DARNERUD P O, et al. Determinants of serum concentrations of organochlorine compounds in Swedish pregnant women : a cross-sectional study [J] . *Environ Health*, 2007, 6 (1) : 2.
- [31] ANH H Q, NAM V D, TRI T M, et al. Polybrominated diphenyl ethers in plastic products, indoor dust, sediment and fish from informal e-waste recycling sites in Vietnam : a comprehensive assessment of contamination, accumulation pattern, emissions, and human exposure [J] . *Environ Geochem Health*, 2017, 39 (4) : 935-954.
- [32] MUENHOR D, MOON H B, LEE S, et al. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in floor and road dust from a manual e-waste dismantling facility and adjacent communities in Thailand [J] . *J Environ Sci Health, Part A*, 2017, 52 (14) : 1284-1294.
- [33] DE LA TORRE A, BARBAS B, SANZ P, et al. Traditional and novel halogenated flame retardants in urban ambient air : gas-particle partitioning, size distribution and health implications [J] . *Sci Total Environ*, 2018, 630 : 154-163.
- [34] TIAN M, CHEN S J, WANG J, et al. Brominated flame retardants in the atmosphere of E-waste and rural sites in southern China : seasonal variation, temperature dependence, and gas-particle partitioning [J] . *Environ Sci Technol*, 2011, 45 (20) : 8819-8825.
- [35] WANG D, WANG P, ZHU Y, et al. Seasonal variation and human exposure assessment of legacy and novel brominated flame retardants in PM_{2.5} in different microenvironments in Beijing, China [J] . *Ecotoxicol Environ Saf*, 2019, 173 : 526-534.
- [36] BEDI M, VON GOETZ N, NG C. Estimating polybrominated diphenyl ether (PBDE) exposure through seafood consumption in Switzerland using international food trade data [J] . *Environ Int*, 2020, 138 : 105652.
- [37] FREDERIKSEN M, VORKAMP K, MATHIESEN L, et al. Placental transfer of the polybrominated diphenyl ethers BDE-47, BDE-99 and BDE-209 in a human placenta perfusion system : an experimental study [J] . *Environ Health*, 2010, 9 (1) : 32.
- [38] GASCON M, VRIJHEID M, MARTÍNEZ D, et al. Effects of pre and postnatal exposure to low levels of polybromodiphenyl ethers on neurodevelopment and thyroid hormone levels at 4 years of age [J] . *Environ Int*, 2011, 37 (3) : 605-611.

(英文编辑 : 汪源 ; 责任编辑 : 王晓宇)