

## · 现场调查 ·

# 249 名社区人群血清有机氯农药残留物与膳食关系的研究

李佳圆 周卫东 雷放鸣 曾红艳 李双飞 吴德生

**【摘要】** 目的 了解我国非职业暴露人群有机氯农药及其残留物的血清水平和血清有机氯农药水平与膳食因素的关系。方法 采用横断面研究方法,自 2004 年 3-7 月调查 107 名男性和 142 名女性,对象均为社区健康人群。膳食因素暴露用频数法测量,血清中有机氯农药 DDTs 和 HCHs 暴露水平用 GC-ECD 方法检测。运用岭回归模型分析膳食因素与血清有机氯农药水平的关系。结果 新鲜鱼摄入量与男性的  $\beta$ -HCH 和  $p,p'$ -DDT 呈正相关 ( $\beta = 0.1266$  和  $0.0595$ ); 蔬菜水果与女性的  $\beta$ -HCH 呈负相关 ( $\beta = -0.1066$ ), 豆制品与女性的  $p,p'$ -DDE 和  $p,p'$ -DDT 呈负相关 ( $\beta = -0.0965$  和  $-0.0581$ ); 酒类与男性的  $\beta$ -HCH、 $p,p'$ -DDE 以及女性的  $p,p'$ -DDE 呈负相关 ( $\beta = -0.1315$ ,  $-0.1599$  和  $-0.1128$ ); 腌制肉类与男性的  $\beta$ -HCH、 $p,p'$ -DDT 呈负相关 ( $\beta = -0.066$  和  $-0.0569$ )。结论 摄入较多鱼类食品可能增加有机氯的蓄积量,酒类可能具有促进有机氯排出体外的作用,腌制肉类和植物性食品中的有机氯农药残留物的水平可能较低。

**【关键词】** 有机氯农药; 岭回归; 膳食因素

**Study on the relationship between organochlorine pesticides and level of residues in serum and daily foodstuff** LI Jia-yuan<sup>\*</sup>, ZHOU Wei-dong, LEI Fang-ming, ZENG Hong-yan, LI Shuang-fei, WU De-sheng. <sup>\*</sup>Huaxi School of Public Health, Sichuan University, Chengdu 610041, China

**【Abstract】** **Objective** To study the contents of organochlorine pesticides in human bodies and residues in serum of populations with non-occupational exposure as well as to study the relationship between organochlorine pesticides in foodstuff and residues levels in serum. **Methods** A cross-section study was conducted. 107 men and 142 women who were all healthy and living in the communities were investigated from Mar. 2004 to Jul. 2004. Level of daily food exposure was estimated through questionnaires while DDTs and HCHs serum levels were detected by EC-ECD. The relationship between organochlorine pesticides contents in foods and residues in serum were analyzed by ridge regression. **Results** Fresh fish was positively correlated to men's serum level of  $\beta$ -HCH and  $p,p'$ -DDT ( $\beta = 0.1266$  and  $\beta = 0.0595$ ) while vegetables and fruits were negatively correlated to women's serum level of  $\beta$ -HCH ( $\beta = -0.1066$ ). Soybean was negatively correlated to women's serum level of  $p,p'$ -DDE and  $p,p'$ -DDT ( $\beta = -0.0965$  and  $\beta = -0.0581$ ). Alcohol consumption was negatively correlated to men's serum level of  $\beta$ -HCH and  $p,p'$ -DDE and women's serum level of  $p,p'$ -DDE ( $\beta = -0.1315$ ,  $\beta = -0.1599$  and  $\beta = -0.1128$ ). Salted meat was negatively correlated to men's serum level of  $\beta$ -HCH and  $p,p'$ -DDT ( $\beta = -0.066$  and  $\beta = -0.0569$ ). **Conclusion** In this study, fresh fish might increase the body burden of organochlorine pesticides and residues while alcohol might promote the excretion of organochlorine pesticides. Pickled meat and vegetal foodstuff might contain low-level of organochlorine pesticides and residues.

**【Key words】** Organochlorine pesticides and residues; Ridge regression; Daily foods

二氯二苯三氯乙烷类 (DDTs) 和六氯环己烷类 (HCHs) 有机氯农药及残留物属于国际公约约定的首批强制控制的 12 种持久性有机氯污染物

(POPs)<sup>[1]</sup>。其中 HCHs 包括  $\alpha$ -HCH、 $\beta$ -HCH、 $\gamma$ -HCH 以及  $\delta$ -HCH 四种异构体; DDTs 包括 4,4'-二氯二苯三氯乙烷 ( $p,p'$ -DDT), 2,4'-二氯二苯三氯乙烷 ( $o,p'$ -DDT), 4,4'-二氯二苯二氯乙烯 ( $p,p'$ -DDE) 和 4,4'-二氯二苯二氯乙烷 ( $p,p'$ -DDD)。通过膳食摄入是目前人体暴露于有机氯农药的主要途径。本研究重点分析体内有机氯农药水平与膳食因素的关系。

基金项目:国家自然科学基金重点资助项目(30030120);四川大学青年研究基金资助项目(0040405505010)

作者单位:610041 成都,四川大学华西公共卫生学院(李佳圆、曾红艳、李双飞、吴德生);成都 363 医院(周卫东、雷放鸣)

### 对象与方法

1. 调查对象:调查对象来源于成都市级二甲综合性医院(成都 363 医院)的健康体检人群,均为社区居民,自 2004 年 3-7 月分批收集。纳入标准:年龄 20~70 岁,居住于四川省≥20 年者。排除有机氯农药职业暴露史、肿瘤患者、内分泌相关疾病、生殖系统疾病以及精神疾病的患者,共收集男性 107 人,女性 142 人。调查前课题组与调查对象签定知情同意书,调查对象自愿接受问卷调查和实验室检查。

2. 调查内容:采用自行设计的“社区女性(或男性)健康调查问卷”收集信息。问卷项目包括:调查对象的年龄、职业、民族、居住地、人均月收入等一般人口学特征;以及膳食调查项目。膳食调查采用自行设计的“膳食因素半定量调查表”。该表是根据中国营养学会推荐的“平衡膳食宝塔”及“中国居民膳食指南”中的食物分类及日摄入量设计。①食物摄入量半定量调查:食物摄入量分为六个等级,中间等级(第 3 级)为日推荐摄入量对应的频数(以日为单位),第 1 和第 2 级为摄入量较高的频次,第 4~6 级为不足推荐摄入量的频次(以周或月为单位),总趋势为等级越高摄入量越少。②膳食种类的选择依据:以营养学会归纳的膳食种类为依据,结合有机氯农药检出较高的食物种类进行综合分类,将膳食因素分为蛋、奶及奶制品、新鲜猪肉(瘦肉)、新鲜红肉类、家禽类、鲜鱼类、腌制品、蔬菜类、水果、豆制品、豆浆、白酒、红酒、低度酒(啤酒或果酒),动物油脂类、植物油脂类 16 类。膳食调查表经预调查具有较好的信度,重复 10%(25 人)样本调查,一周前后 2 次膳食因素总等级合计得分的相关系数为  $r = 0.910$ 。

3. 血清样品收集与检测:调查当日采集调查对象晨起空腹血 5 ml,采集后 6 h 内分离血清 2 ml, -20℃ 保存,于 2004 年 11 月至 2005 年 1 月集中检测。实验检测方法采用气相色谱-电子捕获的方法(GC-ECD)检测上述有机氯农药及其代谢产物<sup>[2]</sup>。

4. 统计学分析:运用 Stata 8.0 软件分析血清有机氯残留物的分布特征,并对呈对数分布的数据进行转换。运用 SPSS 13.0 软件主成分分析法合并部分膳食因素,用岭回归模型分析膳食因素与高检出率的血

清有机氯农药水平的关系。岭回归分析变量的选择原则,剔除:①岭迹图上标准化岭回归系数较稳定但绝对值很小的自变量;②岭回归系数不稳定且震动趋于零的自变量;③标准化岭回归系数很不稳定的自变量。岭回归模型的  $k$  值越大,偏性越大; $k$  值越小,共线性越不好消除<sup>[3]</sup>,可选择岭迹趋于稳定值所对应的  $k$  值。模型的选择依据决定系数  $R^2$  最大原则。

### 结 果

1. 一般人口学特征及差异检验:男性的 BMI 指数高于女性,男女性的职业构成不同,其他因素中所有调查对象居住于城市,年龄、民族以及家庭收入在性别间分布差异无统计学意义(表 1)。

表 1 249 名社区健康人群一般人口学特征的性别间差异比较

人口学特征	男性 (n=107)	女性 (n=142)	统计学检验
年龄(岁)	43.41±11.26	42.07±11.37	$t = 0.887, P = 0.376$
BMI(kg/m <sup>2</sup> )	23.46±4.62	21.70±3.02	$t = 3.485, P = 0.001$
民族			$\chi^2 = 0.170, P = 0.680$
汉	93(95.9)	125(94.7)	
其他	4(4.1)	7(5.3)	
职业			$\chi^2 = 4.445, P = 0.035$
工人	19(19.8)	13(9.9)	
职员或公务员	77(80.2)	118(90.1)	
家庭人均月收入(元)			$\chi^2 = 0.998, P = 0.610$
300~600	6(6.3)	5(3.8)	
601~999	20(20.8)	32(24.2)	
1000~	70(72.9)	95(72)	

注:括号内数据为构成比(%)

2. 有机氯农药残留物的分布特点及正态性转换:8 种有机氯物质的偏度系数和峰度系数均远 >1,经检验均不呈正态分布( $\chi^2 > 3.84, P < 0.05$ )(表 2)。检出率较高的  $\beta$ -HCH、 $p, p'$ -DDE、 $p, p'$ -DDT 均呈正偏态分布,本研究对这三种物质进行对数对称转换后,资料呈对称分布,且  $\beta$ -HCH、 $p, p'$ -DDE 呈正态分布。

表 2 249 名社区人群血清 DDT/HCH 含量的分布特点

有机氯残留物	$\bar{x} \pm s$ (ng/ml)	四分位数(ng/ml)	偏度系数	峰度系数
$\alpha$ -HCH	1.3817±4.2012	0.035, 0.035, 0.5657	6.083 <sup>a</sup>	46.167 <sup>a</sup>
$\beta$ -HCH	9.3590±22.7230	1.0506, 2.876, 6.9624	6.094 <sup>a</sup>	49.69 <sup>a</sup>
$\gamma$ -HCH	0.5816±2.4239	0.04, 0.04, 0.0668	8.062 <sup>a</sup>	72.431 <sup>a</sup>
$\delta$ -HCH	0.5884±2.0319	0.05, 0.05, 0.05	7.784 <sup>a</sup>	81.533 <sup>a</sup>
$p, p'$ -DDE	6.8453±9.9767	2.241, 4.517, 8.846	6.646 <sup>a</sup>	62.816 <sup>a</sup>
$o, p'$ -DDT	1.3036±3.9519	0.17, 0.17, 0.17	4.418 <sup>a</sup>	21.154 <sup>a</sup>
$p, p'$ -DDD	0.3600±1.8250	0.085, 0.085, 0.085	9.474 <sup>a</sup>	96.435 <sup>a</sup>
$p, p'$ -DDT	34.6398±106.1542	7.568, 12.75, 25.194	10.177 <sup>a</sup>	127.315 <sup>a</sup>

<sup>a</sup>  $P < 0.01$

3. 膳食因素与有机氯残留物血清含量关系:分析时直接以测量的分级信息(频次)作为摄入量的计算依据,所有膳食因素的测量值在分析前转换为正向指标(6-原始测量等级),即取值越高摄入量越多。

(1) 有机氯农药与膳食因素的相关分析(Spearman 相关分析):结果显示,  $\alpha$ -HCH 与调查的膳食因素均无有意义的关联;与  $\gamma$ -HCH 呈正相关的膳食因素有蛋类、家禽以及水果;与  $\delta$ -HCH 关联的膳食因素有蛋类和豆浆;与  $\alpha, p'$ -DDT 呈正相关的因素有奶制品和豆浆;与  $p, p'$ -DDT 正相关的因素有奶制品。 $\beta$ -HCH、 $p, p'$ -DDE、 $p, p'$ -DDT 与膳食的关系将在后续的岭回归分析中解释。

(2) 膳食因素相关性分析及主成分分析:膳食因素之间的 Spearman 相关分析结果显示,酒类消耗量与腌制肉类及新鲜猪肉类消耗呈正相关;蛋、奶、鲜鱼之间呈正相关,这三种食物与腌制肉类、酒类消耗呈负相关;豆制品之间存在正相关。蔬菜、水果和植物油消耗量呈正相关。本研究根据食物成分的相似性和相关分析中相关系数较大的 7 种膳食因素用主成分分析法先行合并为 3 个变量,分别为蔬菜水果类、豆制品类和酒类,并与其他膳食因素共构成 12 种待分析的膳食因素变量。部分膳食因素合并归类及主成分分析结果见表 3。

表3 249 名社区人群部分膳食因素归类及主成分分析结果

膳食因素	原膳食变量	主成分系数	提取信息量(%)
蔬菜水果	新鲜蔬菜	0.768	59.024
	水果	0.768	
豆制品	固体豆制品	0.785	61.670
	豆浆	0.785	
酒类	白酒类	0.754	65.344
	红酒类	0.827	
	低度酒	0.841	

(3) 分析膳食因素与血清高暴露率的有机氯农药( $\beta$ -HCH、 $p, p'$ -DDE、 $p, p'$ -DDT)之间的关系(岭回归分析):Y 变量为血清中高检出率的三种有机

氯农药水平的对数对称转换值;X 变量为年龄及 10 类膳食因素(油脂类食物均未进入模型)(表 4)。

## 讨 论

1. 血清样本、膳食因素摄入量的测量及岭回归分析方法:有研究表明血浆中的有机氯含量基本稳定,含量与脂肪中的含量呈正相关,血浆是测量体内有机氯水平较稳定的生物标记物<sup>[4]</sup>,因此易收集与检测。理想的膳食摄入量测量方法是一周三餐餐前食物鲜重测量法,但测量食物鲜重操作性较差,且繁琐,缺乏实际操作的可行性;有机氯农药在体内的蓄积是长期的过程,调查期间三餐的膳食不能代表被调查者的长期膳食结构。因此,本研究采用了频次调查的半定量测量法,该方法基本解决上述两个问题。岭回归分析是一种专门用于解决多重共线性数据分析的有偏估计方法。本研究运用因子分析方法先行合并部分膳食因素简化了食物的种类,但由于不同膳食因素的有机氯农药含量不尽相同,膳食因素之间仍然存在共变性和交叉性。因此,本研究根据文献提供的信息,把日常高有机氯含量的膳食因素纳入模型,再根据岭回归模型变量的筛选原则拟合最优的回归模型。

2. 四川地区有机氯农药污染现状及人群暴露水平:四川是我国的农业大省,20 世纪 80 年代以前长期使用有机氯农药,动植物食品中有机氯残留物的水平均较高;且动物性食品中有机氯残留量较植物性食品高<sup>[5]</sup>。2001 年的成都市人乳中有机氯监测结果表明,群体的有机氯农药检出率为 100%。 $\beta$ -HCH 和  $p, p'$ -DDE 的检出率和含量均较其他异构体和衍生物为高。根据总量计算婴儿通过母乳每日最高可能摄入 DDT 的量为 5  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,该摄入量超过国际粮农组织和 WHO 联合制定的 DDT 的 ADI(最高每日摄入量)值的 4 倍多<sup>[6]</sup>。

表4 249 名社区人群膳食因素与血清有机氯水平的岭回归分析<sup>a</sup>

膳食因素	男 性			女 性		
	$\beta$ -HCH <sup>b</sup>	$p, p'$ -DDE <sup>b</sup>	$p, p'$ -DDT <sup>b</sup>	$\beta$ -HCH <sup>b</sup>	$p, p'$ -DDE <sup>b</sup>	$p, p'$ -DDT <sup>b</sup>
蛋类	-0.065				0.0449	0.0710
新鲜红肉类		0.1225 <sup>c</sup>		-0.0685	0.0498	-0.0533
奶制品		-0.0761	-0.0701	0.0141		-0.0877
新鲜猪肉			-0.0845	-0.0329	0.0900	-0.0985
新鲜鱼	0.1266 <sup>c</sup>		0.0595			
家禽类						
腌制肉类	-0.066		-0.0569			
豆制品					-0.0965	-0.0581
蔬菜水果类				-0.1066 <sup>c</sup>		-0.0573
酒类	-0.1315 <sup>c</sup>	-0.1599 <sup>c</sup>			-0.1128 <sup>c</sup>	

<sup>a</sup> 年龄作为控制因素纳入模型; <sup>b</sup> 岭回归标准偏回归系数; <sup>c</sup>  $|\beta| > 0.1$

3. 膳食因素与体内有机氯农药水平的关系： $\alpha$ -HCH、 $\gamma$ -HCH、 $\delta$ -HCH、 $p,p'$ -DDT及 $p,p'$ -DDD在血样中检出率较低，说明这五种有机氯在人体内蓄积性较低，对人群的危害程度也较低。因此，本研究重点分析检出率高的 $p,p'$ -DDE、 $\beta$ -HCH、 $p,p'$ -DDT这三种有机氯物质。总的来说，影响男性和女性血清有机氯水平的膳食因素不尽相同，其中相关性较大的因素有新鲜红肉类(男性)、新鲜鱼(男性)、蔬菜水果(女性)、酒类(女性)。

(1) 动物性食品：鱼、蛋、奶、白肉类(家禽)及红肉(牛羊肉)均可能蓄积 DDTs 及 HCHs，主要的蓄积物质为 $p,p'$ -DDT、 $p,p'$ -DDE及 $\beta$ -HCH，这主要和环境中的 DDTs 和 HCHs 的残留物成分发生改变有关，此外也和动物的生物代谢能力有关<sup>[7,8]</sup>。但包括本研究在内的多数研究并未观察到除了鱼类外其他肉类膳食结构与人体内有机氯农药残留物水平之间肯定的正相关<sup>[9,10]</sup>。值得注意的是腌制肉类的摄入量与体内有机氯水平呈负相关，腌制肉类时使用的盐类(粗盐)，含有较丰富的亚硝酸盐类物质，有研究观察到亚硝酸盐能促进 DDT 的降解<sup>[11]</sup>，因此腌制肉类的有机氯残留物含量较新鲜的肉类要低一些。

(2) 水产品类(鱼类)：水产品中尤其是水生动物体内检出的有机氯残留物水平较其他动植物要高得多。鱼类对 DDT 的吸收效率(AE)达 72%~99%，而排出 DDT 的效率则非常低<sup>[12]</sup>。一些流行病学研究发现，在鱼消耗量大的地区，鱼的消费量可以作为有机氯体内暴露水平的预测指标<sup>[10,13]</sup>。本研究重点分析了鱼类摄入量与体内有机氯的关联。但仅在男性人群中发现鱼类消耗量与 $\beta$ -HCH和 $p,p'$ -DDT呈正相关，而且与血清 $\beta$ -HCH的相关性较大。Feng等<sup>[14]</sup>的研究发现，淡水湖(太湖)中的鱼类 HCH 检出水平较 DDT 类高。四川省地处内地，所食用的鱼类主要来源于池塘喂养，不排除水体中 HCH 污染状况较 DDT 强的可能性。鱼类摄入量在女性人群中分布均衡，因此女性人群中未观察到有机氯农药与鱼类摄入量的关系。

(3) 蔬菜水果类及豆制品：蔬菜水果类和豆制品在本研究中与女性的体内有机氯残留物水平呈负相关，而在男性中未观察到二者的关系。近年来，由于环境中(土壤)有机氯农药污染状况得以改善，植物性食物中有机氯农药检出率和检出水平保持在低水平上。我国植物性食品中 DDTs、HCH 的残留量低于动物性食品<sup>[7]</sup>。本研究中，蔬菜水果及豆制品摄

入量多的个体相应的动物性食品摄入量较少，这一特点在女性中较为突出。因此在本研究中植物性食物成为保护因素实际上反映了女性摄入动物性食品量较少，从而减少了有机氯农药的总摄入量。

(4) 酒类：酒类中能检出低量的有机氯物质，但以往的研究并未观察到酒类摄入量与体内 DDTs 或 HCHs 之间的关系<sup>[9]</sup>。较早的一项研究发现，用 20% 的乙醇喂饲经 DDE 食物暴露处理过的怀孕大鼠，较对照组(饮用水喂饲)而言，母体的脑、胎盘及胚胎中的 DDE 更多地被动员出来，且从乳液和尿液排出的量明显增加<sup>[15]</sup>。本研究发现不管是在男性或女性人群中，酒类摄入与体内长期蓄积的有机氯物质 $p,p'$ -DDE、 $\beta$ -HCH呈负相关，提示了酒类摄入可能会增加有机氯物质的排泄。但由于饮酒具有明显的致畸、致突变作用，因此并不建议通过饮酒降低体内有机氯的蓄积水平。

#### 参 考 文 献

- [1] 沈平.《斯德哥尔摩公约》与持久性有机污染物(POPs). 化学教育, 2005, 26(6): 6-9.
- [2] 李佳圆, 李卉, 陶琴, 等. 有机氯农药非职业暴露与乳腺癌患病风险的病例-对照研究. 卫生研究, 2006, 35(4): 391-394.
- [3] 杨楠. 岭回归分析在解决多重共线性问题的独特作用. 统计与决策, 2004, 18(3): 15-16.
- [4] Romieu I, Hernandez-Avila M, Lazcano-Ponce E, et al. Breast cancer, lactation history, and serum organochlorines. Am J Epidemiol, 2000, 152(4): 363-370.
- [5] 林玲, 付松, 兰真, 等. 四川部分食物中有机氯农药残留分析. 中国食品卫生杂志, 1995, 7(4): 20-24.
- [6] 谭代荣, 胡彬, 罗彦, 等. 成都市人奶中有机氯化合物监测. 预防医学情报杂志, 2001, 17(2): 70-71.
- [7] 赵云峰, 李敬光, 封锦芳, 等. 2000 年中国总膳食样品中六六六和滴滴涕污染的溯源性分析. 卫生研究, 2004, 33(4): 475-477.
- [8] 赵玉婉, 陈坤, 马新源, 等. 土壤与大米中有机氯污染及其关系研究. 浙江预防医学, 2002, 14(12): 1-3.
- [9] Laden F, Neas LM, Spiegelman D, et al. Predictors of plasma concentrations of DDE and PCBs in a group of U. S. women. Environ Health Perspect, 1999, 107(1): 75-81.
- [10] Hovinga ME, Sowers M, Humphrey HE. Environmental exposure and lifestyle predictors of lead, cadmium, PCB, and DDT level in Great Lakes fish eaters. Arch Environ Health, 1993, 48(2): 98-104.
- [11] Abou-Arab AA. Degradation of organochlorine pesticides by meat starter in liquid media and fermented sausage. Food Chem Toxicol, 2002, 40(1): 33-41.
- [12] Wang X, Wang WX. Uptake, absorption efficiency and elimination of DDT in marine phytoplankton, copepods and fish. Environ Pollut, 2005, 136(3): 453-464.
- [13] Newsome WH, Davies D, Doucet J. PCB and organochlorine pesticides in Canadian human milk-1992. Chemosphere, 1995, 30(11): 2143-2153.
- [14] Feng K, Yu BY, Ge DM, et al. Organochlorine pesticide (DDT and HCH) residues in the Taihu Lake Region and its movement in soil-water system I. Field survey of DDT and HCH residues in ecosystem of the region. Chemosphere, 2003, 50(6): 683-687.
- [15] Bleyl DW, Nickel B, Kujawa M. The influence on reproduction in rats of DDE mobilization induced by ethanol administration during pregnancy and lactation. Nahrung, 1984, 28(4): 357-369.

(收稿日期: 2006-09-15)

(本文编辑: 尹廉)