

食品接触材料中全氟和多氟化合物风险与管理

郭庆园, 蔡汶静, 钟怀宁, 李菊, 陈俊骐

(广东出入境检验检疫局检验检疫技术中心, 广州 510623)

摘要: **目的** 考察食品接触材料所迁移的全氟和多氟化合物(PFASs)的暴露风险及其主要风险管理措施。**方法** 通过查阅文献, 考察食品接触材料中 PFASs 的迁移和膳食暴露, 并分析主要贸易国的立法规定和管理措施, 选择 PFASs 中的代表性物质——全氟辛酸铵(PFOA)来进行评估, 并采用欧洲食品安全局的膳食暴露模型(60 kg 成年人每日食用 1 kg 食品)。**结果** 消费者暴露于食品接触材料中 PFASs 的 2 个最主要来源为不粘锅和纸制品, 得到不粘锅和纸板带来 PFOA 的每千克体质量日摄入量(EDI)分别为 0.015, 5 μg 。**结论** 由不粘锅带来 PFOA 的 EDI 值大大低于欧洲食品安全局设立的每日可耐受摄入量(TDI, 每千克体质量每天的摄入量为 1.5 μg), 对人体健康不构成风险; 由纸和纸板带来 PFOA 的 EDI 值高于 TDI 值, 因此食品接触用纸制品所带来的 PFASs 暴露水平和健康风险不容忽视。加强化学品源头管理和产品风险管理是现阶段国际社会控制食品接触材料中 PFASs 迁移污染和人群暴露的主要措施。

关键词: 食品接触材料; 全氟和多氟化合物; 风险管理; 膳食暴露

中图分类号: TS206 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-3563(2017)07-0053-06

The Risk Management of Perfluoroalkyl and Polyfluoroalkyl Substances from Food Contact Materials

GUO Qing-yuan, CAI Wen-jing, ZHONG Huai-ning, LI Ju, CHEN Jun-qi

(Inspection and Quarantine Technology Center, Guangdong Entry-exit Inspection and Quarantine Bureau, Guangzhou 510623, China)

ABSTRACT: The work aims to study the exposure risk of perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances (PFASs) migrated from food contact materials and the main risk management approaches. By looking up the literatures, the migration of PFASs from food contact materials and the dietary exposure were evaluated. The legislations and management approaches taken by some major trading countries were analyzed. The typical material, perfluorooctanoic acid (PFOA) selected from PFASs, was evaluated and the dietary exposure model (60 kg adult consumes 1 kg food every day) of European Food Safety Authority (EFSA) was adopted. Nonstick cookware and paper product were two main sources causing consumers to be exposed to PFASs migrated from food contact materials. Daily intakes for one kilogram weight (EDI) of PFOA was 0.015 and 5 μg respectively for nonstick cookware and paper board, respectively. The daily intake for one kilogram weight (EDI) of PFOA migrated from nonstick cookware is significantly lower than the daily tolerable intake (TDI, 1.5 μg) proposed by EFSA, so the migration level of PFASs from nonstick cookware does not pose a health risk. As the EDI of PFASs migrated from paper and paper board is higher than TDI, the PFASs exposure level and health risk brought by the paper products for food contact should not be ignored. The approach of combining chemical control with risk management for finished product is essential for reducing the level of PFASs exposure to people due to its migration from food contact materials by the international community at the present stage.

KEY WORDS: food contact materials; perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances; risk management; dietary exposure

收稿日期: 2016-10-05

基金项目: 国家质检总局科研项目(2014IK078)

作者简介: 郭庆园(1987—), 男, 工程师, 主要研究方向为食品接触材料迁移检测。

通讯作者: 钟怀宁(1972—), 男, 硕士, 高级工程师, 主要研究方向为食品接触材料安全评估与迁移检测。

全氟和多氟化合物是指直链或者支链中全部或部分氢原子被氟取代的有机化合物。全氟和多氟化合物种类繁多,包括全氟烷基羧酸类、全氟烷基磺酸类、全氟烷基磺酰胺类、氟化调聚醇、全氟烷基磷酸酯等。全氟烷基磺酸类中 C—F 键所具有的高键能使其拥有独特的热稳定性和优良的疏水/疏油表面活性等,因而被广泛应用于化工、金属电镀、皮革纺织品、纸张、包装、涂料等工业和消费品生产领域。

随着分析技术的进步,PFASs 被发现广泛存在于环境和生物体以及人体的血清、母乳、肝组织中,有研究显示,在成人、儿童和老人血液中,全氟辛酸铵、全氟辛烷磺酰基化合物(PFOS)的含量可达 4~5, 2~5, 30~40 $\mu\text{g}/\text{kg}$ ^[1-3]。虽然还缺乏 PFASs 直接危害人体健康的充分证据,但已有的毒理研究表明 PFASs 对实验动物具有肝脏毒性、发育与生殖毒性、遗传和免疫毒性以及致癌性,而一些流行病学调查也发现人体暴露于 PFASs 与部分疾病或癌症的发生有关。多国的暴露评估数据表明,膳食摄入是人体 PFASs 暴露的最主要途径,其中,由食品接触材料所引入的 PFASs 污染是一个重要的影响因素,在不同食品接触材料以及所接触的食品中不同程度地检出 PFASs,因此,由食品接触材料中 PFASs 所带来的食品安全和消费者健康风险日益受到重视。

1 PFASs 的暴露来源

1.1 膳食

鉴于 PFOA 和 PFOS 等全氟化合物在工业产品和消费品的广泛应用,及其所具有的强稳定性、前驱体物质的长距离迁移能力,使得 PFASs 可以通过多种渠道和方式进入环境和生物体内,在组织中蓄积并透过食物链的富集效应,最终进入人体中,危害消费者的健康安全。在所有的暴露途径中,通过饮用水、膳食摄入以及空气或灰尘的吸入等是最主要的 3 种暴露途径,当中,膳食被公认为人体 PFASs 暴露的最主要途径。研究显示,普通人群 PFASs 膳食摄入量占了 PFASs 总暴露量的 80%~90%^[4-5]。各国在多种常见食物中均不同程度地检测到 PFOA 和 PFOS 等全氟化合物^[6-14]。在中国, Liu 等^[6]在 2007 年的研究发现,母乳中普遍有检出 PFOS 和 PFOA,而在上海母乳中检出高浓度的 PFOA。Wang 等^[7]在 2008—2009 年间调查了牛奶、奶粉、酸奶、猪肉和鸡肉中 PFASs 分布水平,有 68% 的牛奶样本检出有全氟庚酸和全氟壬酸,有 69% 酸奶检出 PFOA。Zhang 等^[8]2009 年考察了肉类和蛋样品中 10 种 PFASs 含量和膳食暴露情况,肉、肉制品和蛋品中 PFOS 和 PFOA 的估计日摄入量分别为 6.00~9.64 ng 和 254~576 ng。Wu 等^[9]

2011 年考察了中国 6 个沿海省份鱼和贝壳中 PFASs 含量,在江苏采集的红鱼和海水蛤中检出最高浓度的 PFOS 和 PFOA。

目前的研究尚无法明确在膳食暴露途径中哪一种渠道或哪一类食品贡献度最大,地区、人群、消费模式和饮食习惯不同都会导致膳食暴露途径和暴露水平的差异。在中国,人群通过动物源性食品,特别是由食用肉类和水产品所摄入的全氟化合物的比例最高,其中肉类和肉制品是 PFOA 暴露的主要途径,而鱼类和海鲜则占据了 PFOS 摄入的主导地位^[7-9]。对于挪威消费人群,鱼肉和贝类是主要的膳食暴露来源,分别贡献 PFOA 暴露的 38%, PFUnDA 暴露的 93% 和 PFOS 暴露的 81%^[11];在美国和加拿大,牛肉对普通人群膳食摄入氟化物贡献度最高^[14-15];红肉、动物油脂和零食是丹麦怀孕妇女暴露 PFOS 和 PFOA 的主要来源^[16]。

越来越多的研究表明,食品接触材料作为包装食品的重要载体,对膳食暴露的贡献度越来越大,以磷酸酯类表面活性剂(SAmPAPs)为例,自 1974 年 SAmPAPs 作为食品包装材料原料商业化应用后,其水解产物 EtFOSAA 在人类血液中的含量在 1974—1989 年间急剧上升了 4 倍^[17]。在欧洲市场上,有近 33% 的含氟表面活性剂用于包装纸和纸板,其中的 20% 作为食品接触用途^[18]。食品接触材料所引入的全氟和多氟化合物污染正日益受到关注。

1.2 食品接触材料

在食品接触材料领域,PFASs 最广泛的用途是生产聚四氟乙烯(PTFE)、不粘锅涂层和纸制品的防水防油涂层。全氟羧酸盐作为一种加工助剂可用于生产 PTFE,还可作为分散处理剂用于将全氟聚合物溶解、分散涂敷于金属和织物表面,例如不粘锅涂层的处理工艺,使得产品即使在严苛的使用条件下依然保持良好的性能。利用氟低表面能这一特性,一些氟烷基化合物被广泛用于造纸处理,如 N-乙基全氟辛基磺酰氨基乙醇可经酯化合成 SAmPAPs,被广泛应用于食品纸质包装材料中。这些氟化不沾涂层和防水防油涂层在赋予纸和纸板产品优异的防水防油效能的同时,能让纸张保持原有的良好物理性状以及印刷性能^[19]。经 PFASs 处理过的纸和纸板制品可用来直接包装人造黄油、脂肪、巧克力、爆米花等冷冻食品和油脂类食品以及快餐食品,这些含氟或经氟化物处理过的食品接触材料在生产和使用过程中,会残留或迁移出一些杂质、副反应产物和降解氟化物,并进入食品,使得不粘锅和涂有防水防油层的纸制品食品接触材料成为人群 PFASs 膳食暴露的重要来源。

Begley 和 Sinclair 等^[20-23]从 2005—2013 年间开

展了一系列针对美国市场销售食品接触材料中氟化物残留量和迁移量的研究,在 PTFE 涂层厨具中检出 PFOA 残留量为 4~75 ng/g,模拟高温使用条件下(表面温度从 179 °C 升至 233 °C),检测煎锅中 PFOA 释放量为 7~337 ng (0.11~5.03 ng/dm²),而碳数与双键数比值为 6:2 和 8:2 的氟调聚醇类的释放量为 0.15~2.04 ng/dm² 和 0.42~6.25 ng/dm²;在食品接触纸制品中则普遍检出较高水平的氟化物残留,美国市场食品包装纸制品中 PFOA 含量为 0.3~1.2 mg/kg^[21],而丹麦、泰国、中国的研究人员^[24-27]也在爆米花桶、烧烤油纸、汉堡包装纸、蛋挞锡纸等纸制品中检出浓度不等的 PFOA 和其他氟化物,如多氟烷基磷酸前体物(diPAPS 和 S-diPAPS)迁移量为 0.2~3.9 mg/kg。

近年来的研究发现,纸制品所带来的 PFOA 残留和迁移量呈不断下降趋势,而作为氟化表面活性剂重要原料和中间体的全氟化合物烷酸类前体物质则越来越多地被检出,且残留量和迁移量都普遍比 PFOA 高。Begley 等在经微波处理后的爆米花中检出 3.2 mg/kg 多氟烷基磷酸(PAPs),在黄油中检出有 0.1 mg/kg 的 PAPs(经 4 °C 冷藏 40 d 处理);Trier 等^[27]测得爆米花袋向食品所迁移 diPAPS 和 S-diPAPS 的量为 0.2~0.7 mg/kg(模拟物为 95%乙醇(体积分数),模拟条件为 60 °C,2 h),而西班牙、希腊等国的研究人员^[28-30]也在其本国市场销售食品接触纸中检出氟化物表面活性剂,其原因可能在于纸制品涂层用表面活性剂往往含有高浓度的多氟烷基磷酸,如碳数与双键数比值为 8:2 的调聚醇单体全氟辛酸乙醇,使用量可达 4000 mg/kg,因此,当大量使用含氟表面活性剂的食品接触纸制品时,特别是微波高温处理下,容易发生多氟烷基磷酸盐迁移现象并污染食品,食品纸制品涂层向食品中所迁移的多氟烷基磷酸量可达 3~4 mg/kg^[21]。可以看出,相对于 PTFE 材质和不粘锅涂层,纸制品是食品中氟化物迁移污染的重要渠道和来源。

2 食品接触材料中 PFASs 的风险评估

由于较缺乏针对 PFASs 的毒理学评估数据,因此,国际上尚未建立一个统一的健康指导值。近年来,为给政府的法规和监管政策制定工作提供科学依据,一些组织和机构依据已有的毒理研究和膳食暴露调查数据,针对 PFOS 和 PFOA 提出了相应的健康指导值。英国食品、消费品及环境化学物质毒理委员会规定了 PFOS 和 PFOA 的每千克体质量每日可耐受摄入量分别为 0.3, 1.5 µg^[31],德国联邦风险评估所针对 PFOS 制定了每千克体质量 0.1 µg 的每日可耐受摄入量^[32],而欧洲食品安全局综合各成员国的研究数据,规定了 PFOS 和 PFOA 的每千克体质量每日可耐受摄

入量分别为 0.15, 1.5 µg^[33]。

在食品接触材料风险评估中,不粘锅涂层和纸制品是 2 类重要的代表性产品。对于不粘锅涂层,选择所测 PFOA 的最高残留量 75 µg/kg 进行评估,基于保守的材质规格和接触条件(75 µm 厚涂层,2.2 g/cm³ 的聚合物密度,893 cm² 的食品接触表面积,1.2 kg 的接触模拟物),假定涂层中 PFOA 发生 100% 的完全迁移,测算得到涂层中 PFOA 向食品或食品模拟物产生的迁移量为 0.9 µg/kg。采用欧盟食品接触材料评估条件,假定 1 个体质量 60 kg 的成年人每日食用 1 kg 含目标迁移氟化物的食品包装材料包装的食品,可测算得到由不粘锅涂层带来 PFOA 的每千克体质量日摄入量估计为 0.015 µg,远低于欧洲食品安全局所提出的每千克体质量每日可耐受摄入量,即 1.5 µg,因此不粘锅涂层迁移中氟化物不会对人体健康安全带来风险。美国 FDA 和中国的一些研究^[34-36]也表明来自含 PTFE 涂层不粘锅所萃取或迁移出的全氟或多氟化合物量很低,甚至未检出,由含氟涂层不粘锅所带来的人群 PFOA 暴露量非常小。

对于食品接触纸制品,选择所测 PFOA 的最小残留量 0.3 mg/kg 为评估对象,假定纸制品中 PFOA 发生 100% 的完全迁移,基于上述的欧盟食品接触材料评估条件,可测算得到由食品接触纸制品带来 PFOA 的每千克体质量日摄入量估计为 5 µg,这高于欧洲食品安全局所提出的每日可耐受摄入量,表明现阶段人群对纸制品氟化物的暴露水平存在健康风险效应。此外,上述评估并未计算由氟化物前体物质带来的暴露量,考虑纸和纸板所残留的前体物质量较高,而这些前体物质理论上具有类似 PFOS 和 PFOA 的毒性、持久性和生物富集性,经生化作用最终转化成 PFOS 和 PFOA,因此纸制品氟化物的总暴露水平还可能更高,在使用纸包装的快消食品(如快餐、糕点、面包、爆米花等)日益成为城市人群,尤其是中国居民的重要膳食的情况下,由食品接触用纸制品所带来的人群 PFASs 暴露水平和健康风险不容忽视。

3 食品接触材料全氟/多氟化合物风险管理

鉴于 PFASs 物质长期使用和广泛存在于食物链和人体的事实,近几年来,各国政府和行业均加强立法和行业监管措施。这些措施主要包括 2 方面工作:重视对源头的控制,逐渐减少、限制含全氟和多氟化合物原料的生产、贸易和使用;加强产品风险管理,对食品接触材料等产品中有害全氟和多氟化合物进行合规监管。

3.1 源头控制

EC 1272/2008《化学品分类、标签和包装管理法》

第9批SVHC清单将PFOA列为生殖毒性1B类物质和持久性、生物积累性和毒性物质。《关于持久性有机物的斯德哥尔摩公约》则将PFOS列为持久性有机物。2000年,美国3M公司宣布到2002年底自愿停止生产全氟辛烷磺酰基的全氟有机化合物。2006年,美国环保署(EPA)启动了一项面向生产企业的自愿性削减项目^[37],包括杜邦、3M等全球知名化学品公司被要求到2010年时,PFOA及相关前体物质的工厂排放及其在产品中的含量比2000年减少95%;针对全氟烷基磺酸盐类物质和长链全氟烷基羧酸盐类物质,自2002年起,美国颁发显著新用途规则^[38],EPA有权来对该类本土产品和进口物质实施事前申报、评估和限制使用等措施。加拿大2008年出台法规^[39],将PFOS、全氟烷基磺酸盐类、全氟烷基羧酸盐类和包含C8F17SO₂,C8F17SO₃或C8F17SO₂N的氟化物列入有毒物质清单,规定除部分豁免情况下,不得生产、使用、销售或进口上述氟化物。欧盟委员会颁布EC No.850/2004持久有机污染物法规^[40],针对含氟材料或产品,规定了只有符合以下条件,产品才能进入欧洲市场:成分或配方中PFOS含量小于10 mg/kg,半成品或零件中PFOS的质量分数小于0.1%,纺织品及其他涂敷材料中PFOS含量小于1 μg/m²等。挪威规定,自2014年6月1日起,禁止质量分数超过0.001%的PFOA、全氟烷基磺酸盐类、全氟烷基羧酸盐类,以及PFOA含量大于1 μg/m²的地毯和消费品在挪威生产、进出口和销售^[41]。相对于发达国家积极减少全氟化合物的生产和使用趋势,中国的情况则略显复杂,在中国,全氟化合物无论是产量还是应用范围均呈快速发展趋势,根据环保部的统计数据,PFOS的产量从2004年前的每年50 t大幅提升到2006年的200 t^[42],除了将近一半的出口国外,大量的氟化物广泛被用于国内的纺织品、塑料橡胶、农药、消防泡沫、半导体、金属电镀等产业或产品中,影响近1万亿人民币产值和大量的就业人口。如何在发展经济同时,从源头减少全氟化合物的生产和使用是中国今后所面临的一个挑战。

3.2 产品风险管理

在美国,FDA通过2个法律途径来监管全氟和多氟化合物在食品接触材料的使用:通过联邦法规规定部分氟化合物在食品接触材料领域的使用,具体条款包括针对聚合物材料的21CFR 177.1380,177.1550,177.1615,177.2400和177.2510,以及涉及纸制品涂层的21CFR 176.160和176.170;通过食品接触物质申报方式来审查和批准由特定申请人提交的氟化物使用申请。在欧盟层面,针对食品接触材料中全氟和多氟化合物监管的法规主要是EU

10/2011^[43],该法规以肯定列表方式批准了16种含氟化合物用于食品接触材料,同时规定了相应的迁移限量和使用规范。德国BFR和欧洲理事会特别针对食品接触纸和纸板制品,也对部分用于防水放油表面活性剂的含氟化合物的使用予以规定。丹麦成为国际第1个立法规定食品接触材料氟化物迁移限值的国家,2015年,丹麦环境与食品部出台立法草案,规定食品接触纸和纸板中有机氟化物含量不得超过0.35 μg/dm²(以氟元素计)^[44],所涉及的纸制品包括烘培纸、披萨包装盒和食品包装纸袋等。

4 结语

虽然近年来国际社会逐步加强对以PFOA和PFOS为代表的PFASs使用的管理和限制,但有机氟化物对环境的污染和对人体健康的影响依然不容乐观,特别是随着食品接触材料的广泛应用,来自食品接触材料及其包装食品中氟化物的污染进一步增大了人群对有机氟化物的暴露水平。由食品接触材料所引入的PFASs暴露中,来自食品接触纸和纸板制品的贡献最大,由纸制品带来的人群暴露水平可能超过暴露安全阈值,从而可能带来消费者健康安全风险。特别是含氟化表面活性剂涂层的纸制品在生产和使用过程中,不仅会释放出典型的PFOA和PFOS污染物,而且能够迁移出大量的前体物质,这些新发现的PFASs前体物具有与PFOA和PFOS类似的毒性、环境持久性、生物蓄积性和长距离迁移特性,使得由纸制品带来的人群PFASs暴露风险持续增大。中国是PFASs物质的生产和应用大国,但对食品接触材料中PFASs的迁移和暴露水平研究较少,相关迁移、暴露和风险评估数据缺乏,因此有必要加强食品接触纸制品中包括前体物质在内的多种有机氟化物迁移检测技术、迁移机理和暴露水平的研究,并采取有效方式进行源头管理、控制和产品风险管理,最大水平地降低来自食品接触材料中有机氟化物的迁移和污染,保护消费者的健康安全。

参考文献:

- [1] OLSEN G, BURRIS J, BURLEW M, et al. Epidemiologic Assessment of Worker Serum Perfluorooctanesulfonate (PFOS) and Perfluorooctanoate (PFOA) Concentrations and Medical Surveillance Examinations[J]. *Occupation Environment Medicine*, 2003, 45(3): 260—270.
- [2] OLSEN G, CHURCH T, MILLER J, et al. Perfluorooctanesulfonate and Other Fluorochemicals in the Serum of American Red Cross Adult Blood Donors[J]. *Environment Health Perspectives*, 2003, 111(16):

- 1892—1901.
- [3] OLSEN G, CHURCH T, LARSON E, et al. Serum Concentrations of Perfluorooctanesulfonate and Other Fluorochemicals in an Elderly Population from Seattle[J]. *Washington Chemosphere*, 2004(4): 1599—1611.
- [4] STAHL T, MATTERN D, BRUNN H, et al. Toxicology of Perfluorinated Compounds[J]. *Environmental Sciences Europe*, 2011, 23(8): 43—52.
- [5] VESTERGREN R, COUSINS I T. Tracking the Pathways of Human Exposure to Perfluorocarboxylates[J]. *Environment Science Technology*, 2009, 43(15): 5565—5575.
- [6] LIU Jia-ying, LI Jing-guang, ZHAO Yun-feng, et al. The Occurrence of Perfluorinated Alkyl Compounds in Human Milk from Different Regions of China[J]. *Environment International*, 2010(6): 433—438.
- [7] WANG Y, YEUNG L, YAMASHITA N, et al. Perfluorooctane Sulfonate (PFOS) and Related Fluorochemicals in Chicken Egg in China[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2008, 53(4): 501—507.
- [8] ZHANG Tao, SUN Hong-wen, WU Qian, et al. Perfluorochemicals in Meat Eggs and Indoor Dust in China: Assessment of Sources and Pathways of Human Exposure to Perfluorochemicals[J]. *Environment Science Technology*, 2010, 44(9): 3572—3579.
- [9] WU Yong-ning, WANG Yu-xin, LI Jing-guang, et al. Perfluorinated compounds in Seafood from Coastal Areas in China[J]. *Environment International*, 2012(2): 67—71.
- [10] KÄRRMAN A, HARADA KH, INOUE K, et al. Relationship between Dietary Exposure and Serum Perfluorochemical (PFC) Levels-A Case Study[J]. *Environment International*, 2009, 35(4): 712—717.
- [11] HAUG L, SALIHOVIC S, JOGSTEN I, et al. Levels in Food and Beverages and Daily Intake of Perfluorinated Compounds in Norway[J]. *Chemosphere*, 2010, 80(10): 1137—1143.
- [12] FROMME H, SCHLUMMER M, MÖLLER A, et al. Exposure of an Adult Population to Perfluorinated Substances Using Duplicate Diet Portions and Biomonitoring Data[J]. *Environmental Science and Technology*, 2007, 41(22): 7928—7933.
- [13] CLARKE D B, BAILEY V A, ROUTLEDGE A, et al. Dietary Intake Estimate for Perfluorooctanesulphonic Acid (PFOS) and Other Perfluorocompounds (PFCs) in UK Retail Foods Following Determination Using Standard Addition LC-MS/MS[J]. *Food Additives & Contaminants*, 2010, 27(4): 530—545.
- [14] SCHECTER A, COLACINO J, HAFFNER D, et al. Perfluorinated Compounds, Polychlorinated Biphenyls, and Organochlorine Pesticide Contamination in Composite Food Samples from Dallas, Texas, USA[J]. *Environmental Health Perspectives*, 2010, 118(6): 796—802.
- [15] TITTELMIER S, PEPPER K, SEYMOUR C, et al. Dietary Exposure of Canadians to Perfluorinated Carboxylates and Perfluorooctane Sulfonate via Consumption of Meat, Fish, Fast Foods, and Food Items Prepared in Their Packaging[J]. *Agricultural Food Chemistry*, 2007, 55(8): 3203—3210.
- [16] HALLDORSSON T, FEI C, OLSEN J, et al. Dietary Predictors of Perfluorinated Chemicals: a Study from the Danish National Birth Cohort[J]. *Environment Science Technology*, 2008(4): 1—7.
- [17] 杨琳, 李敬光. 全氟化合物前体物质生物转化与毒性研究进展[J]. *环境化学*, 2015, 34(4): 649—655.
- YANG Lin, LI Jing-guang. Perfluorinated Compound Precursors: Biotransformation and Toxicity[J]. *Environmental Chemistry*, 2015, 34(4): 649—655.
- [18] TRIER X, GRANBY K, CHRISTENSEN J H, et al. Polyfluorinated Surfactants (PFS) in Paper and Board Coatings for Food Packaging[J]. *Environment Science Pollution Research*, 2011(8): 1108—1120.
- [19] 张庆华, 詹晓力, 陈丰秋. 有机氟防水防油剂的合成以及在造纸工业中的应用[J]. *上海造纸*, 2004, 35(2): 38—43.
- ZHANG Qing-hua, ZHAN Xiao-li, CHEN Feng-qiu. Synthesis of Organic Fluorine Waterproof and Oil Proof Agent and Its Application in Papermaking Industry[J]. *Shanghai Paper*, 2004, 35(2): 38—43.
- [20] BEGLEY T H, WHITE K, HONIGFORT P, et al. Perfluorochemicals: Potential Sources of and Migration from Food Packaging[J]. *Food Additives & Contaminants*, 2005, 22(10): 1023—1031.
- [21] BEGLEY T H, HSU W, NOONAN G, et al. Migration of Fluorochemical Paper Additives from Food-contact Paper into Foods and Food Simulants[J]. *Food Additives & Contaminants*, 2008, 25(3): 384—390.
- [22] XU Y, NOONAN G, BEGLEY T H. Migration of Perfluoroalkyl Acids from Food Packaging to Food Simulants[J]. *Food Additives & Contaminants*, 2013, 30(5): 899—908.
- [23] SINCLAIR E, KIM SK, AKINLEYE H, et al. Quantitation of Gas-phase Perfluoroalkyl Surfactants and Fluorotelomer Alcohols Released from Nonstick Cookware and Microwave Popcorn Bags[J]. *Environment Science Technology*, 2007(1): 1180—1185.
- [24] 徐睿, 谭红, 杨鸿波, 等. SPE-LC-MS/MS 测定 4 种食品接触材料中 7 种全氟有机物[J]. *分析与检测*, 2014, 40(10): 205—209.
- XU Rui, TAN Hong, YANG Hong-bo, et al. Determination of Seven Perfluorinated Compounds in Four kinds of Food Wrapping Materials by Solid Phase Extraction Couple with Liquid Chromatography-Tandem Mass Spectrometry[J]. *Food and Fermentation Industries*, 2014, 40(10): 205—209.
- [25] TRIER X, NIELSEN N J, CHRISTENSEN J H. Structural Isomers of Polyfluorinated Di- and Tri-alkylated Phosphate Ester Surfactants Present in Industrial

- Blends and in Microwave Popcorn Bags[J]. Environmental Science and Pollution Research. 2011(18): 22—32.
- [26] POOTHONG S, BOONTANON S K., BOONTANON N. Determination of Perfluorooctane Sulfonate and Perfluorooctanoic Acid in Food Packaging Using Liquid Chromatography Coupled with Tandem Mass Spectrometry[J]. Hazardous Materials, 2012(6): 139—143.
- [27] TRIER X, GRANBY K, CHRISTENSEN J H. Polyfluorinated Surfactants (PFS) in Paper and Board Coatings for Food Packaging[J]. Environmental Science and Pollution Research, 2011(18): 1108—1120.
- [28] D'EON J C, MAYBURY S A. Production of Perfluorinated Carboxylic Acids (PFCAs) from the Biotransformation of Polyfluoroalkyl Phosphate Surfactants (PAPS): Exploring Routes of Human Contamination[J]. Environmental Science and Technology, 2007(1): 4799—4805.
- [29] MARTINEZ M P, TENA M. Determination of Perfluorinated Compounds in Popcorn Packaging by Pressurized Liquid Extraction and Ultraperformance Liquid Chromatography-Tandem Mass Spectrometry[J]. Talanta, 2012(1): 104—109.
- [30] EFFROSYNI Z, DANAE C, IRENE V, et al. Determination of Perfluorinated Compounds (PFCs) in Various Foodstuff Packaging Materials Used in the Greek Market[J]. Chemosphere, 2014(4): 169—176.
- [31] COT. COT Statement on the Potential Risks From Perfluorooctane Sulfonate (PFOS) in the Infant Diet [EB/OL]. (2014-04-01)[2016-09-12]. <https://cot.food.gov.uk/sites/default/files/cot/cotstatmpfos.pdf>.
- [32] BFR. Gesundheitliche Risiken Durch PFOS und PFOA in Lebensmitteln Sind Nach Dem Derzeitigen Wissenschaftlichen Kenntnisstand Unwahrscheinlich[EB/OL]. (2008-09-12)[2016-09-12]. http://www.bfr.bund.de/cm/343/gesundheitliche_risiken_durch_pfos_und_pfoa_in_lebensmitteln.pdf.
- [33] EFSA. Perfluorooctane Sulfonate (PFOS), Perfluorooctanoic Acid (PFOA) and Their Salts. Scientific Opinion of the Panel on Contaminants in the Food Chain[J]. The EFSA Journal, 2008, 6(7): 123—131.
- [34] POWLEY C R, MICHALCZY M J, KAISER M A, et al. Determination of Perfluorooctanoic Acid (PFOA) Extractable from the Surface of Commercial Cookware under Simulated Cooking Conditions by LC/MS/MS[J]. Analyst, 2005(3): 1299—1302.
- [35] 白桦, 郝楠, 崔艳妮, 等. 不粘锅涂层中全氟辛酸及其盐的快速溶剂萃取-气相色谱-质谱法测定[J]. 色谱, 2007, 25(2): 276—279.
- BAI Hua, HAO Nan, CUI Yan-ni, et al. Determination of Perfluorooctanoic Acid and Its Salts in the Coating Layer of Nonstick Pan by Gas Chromatography/Mass Spectrometry Coupled with Accelerated Solvent Extractor[J]. Chinese Journal of Chromatography, 2007, 25(2): 276—279.
- [36] 陈会明, 郝楠, 陈伟, 等. 液相色谱-质谱法测定不粘锅特富龙涂层中全氟辛酸铵残留[J]. 分析化学, 2006, 34(8): 1106—1108.
- CHEN Hui-ming, HAO Nan, CHEN Wei, et al. Determination of Perfluorooctane Sulfonates (PFOS) in the Food Packaging Materials by HPLC MS/MS[J]. Chinese Journal of Analysis Laboratory, 2006, 34(8): 1106—1108.
- [37] EPA. PFOA Stewardship Program[EB/OL]. (2006-01-25) [2016-09-13]. <http://www.epa.gov/sites/production/files/2015-10/documents/dupont.pdf>.
- [38] EPA. Regulatory Action on PFAS/LCPFAC Compounds[EB/OL]. (2015-12-12)[2016-09-13]. <https://www.epa.gov/assessing-and-managing-chemicals-under-tsca/and-polyfluoroalkyl-substances-pfass-under-tsca>.
- [39] SOR/2008-178, Perfluorooctane Sulfonate and Its Salts and Certain Other Compounds Regulation[S].
- [40] EC No.850/2004, Persistent Organic Pollutants as Regards Annexes I and III[S].
- [41] Norway Product Regulation. Regulations Relating to Restrictions on the Use of Health and Environmentally Hazardous Chemicals and Other Products[EB/OL]. (2014-06-01)[2016-09-14]. <http://www.lovdato.no/cgi-wift/ldles?doc=/sf/sf/sf-20040601-0922.html#2-32>.
- [42] RUI SHENG Y. Ministry of Environmental Protection of China. Additional Information on Production and Use of PFOS[EB/OL]. (2008-10-4)[2016-09-14]. http://chm.pops.int/portals/0/repository/additionfo_2008/UNEP-POPS-POPRC-SUB-F08-PFOS-ADIN-CHI.English.pdf.
- [43] EU 10/2011, Plastic Materials and Articles Intended to Come into Contact with Food[S].
- [44] Ministry of Environment and Food of Denmark. Paper and Paperboard are Used for a Wide Variety of Foods [EB/OL]. (2015-10-03)[2016-09-14]. <https://www.foedevarestyrelsen.dk/Leksikon/Sider/Papir-og-pap.aspx>