

综述

中国人群全氟化合物健康风险评估研究进展

姚 谦¹, 田 英^{1,2}

1. 上海交通大学公共卫生学院环境与健康系, 上海 200025; 2. 上海交通大学医学院附属新华医院教育部和上海市环境与儿童健康重点实验室, 上海 200092

[摘要] 全氟化合物(perfluorinated compounds, PFAS)是一类近年来受到广泛关注的新型持久性有机污染物。随着欧美国家对其限制的法律法规增多, PFAS的生产逐渐向中国转移, 其使用量逐年增加, 但中国尚无严格的限制措施。此外, 欧美国家不断下调PFAS的安全限值, 基于更新后的安全限值在中国人群中开展的研究已逐步提示其存在健康风险。该文综述了国际上现有的PFAS安全限值, 并根据不同暴露来源(膳食、乳汁、饮水、灰尘、大气、胎盘转移来源及各综合来源)介绍中国人群PFAS暴露健康风险评估研究进展。现有研究主要关注中国PFAS高污染地区人群和婴幼儿敏感人群PFAS暴露的健康风险, 而普通人群PFAS暴露的健康风险仍有待于进一步评估。相关工作的开展有助于推动相关政府部门尽早制定符合中国国情的PFAS管控标准和安全限值。此外, 未来的健康风险评估研究更应关注各综合来源的PFAS所致的人群健康风险和PFAS替代品的健康危害。

[关键词] 全氟化合物; 暴露来源; 健康风险评估; 中国人群; 安全限值

[DOI] 10.3969/j.issn.1674-8115.2021.06.017 **[中图分类号]** R122.7 **[文献标志码]** A

Research progress in health risk assessment of perfluorinated compounds among Chinese population

YAO Qian¹, TIAN Ying^{1,2}

1. Department of Environmental Health, Shanghai Jiao Tong University School of Public Health, Shanghai 200025, China; 2. MOE and Shanghai Key Laboratory of Children's Environmental Health, Xinhua Hospital, Shanghai Jiao Tong University School of Medicine, Shanghai 200092, China

[Abstract] Perfluorinated compounds (PFAS) are a new class of persistent organic pollutants that have attracted wide attention in recent years. With the increasing restrictions on PFAS in Europe and the United States, the production of PFAS is gradually transferring to China. The amount of PFAS used in China is increasing year by year, but there are no strict restrictions on the use of them. Furthermore, the safety limits are heading down in Europe and the United States. Based on the updated safety limits, studies in Chinese population have gradually indicated the potential risk of PFAS. This review summarizes the updated international safety limits, and introduces the research progress in health risk assessment of PFAS exposure in Chinese population according to different sources of exposure (diet, milk, drinking water, dust, atmosphere, placental transfer and comprehensive sources). The existing studies mainly focus on the health risk of PFAS exposure in high PFAS-polluted areas and in sensitive infant population in China, while the health risk of PFAS exposure in general population still needs to be further evaluated. It is necessary to carry out relevant work, which can provide reference for relevant government departments to formulate PFAS control standards and safety limits in line with China's national conditions as soon as possible. In addition, the future assessment research should pay more attention to complex evaluation of various sources of PFAS and the health hazards of PFAS alternatives.

[Key words] perfluorinated compounds (PFAS); exposure source; health risk assessment; Chinese population; safety limit

全氟化合物(perfluorinated compounds, PFAS)是含强碳氟键的人造有机物^[1], 因其具有良好的疏水疏油性和稳定性, 已在工业和生活用品中广泛使用60余年^[1]。PFAS存在于各种环境介质中, 并在全球多个国家和地区的人群中广泛检出^[2-4]。

越来越多的动物实验和人群研究^[5-11]表明, PFAS具有多器官毒性; 已知的不良影响包括遗传、生殖、神经

和发育毒性, 内分泌干扰作用和疑似致癌性。因此, 世界各国日益重视其健康危害并纷纷出台相应限制措施。2003年, 全球最大的PFAS制造商——美国3M公司自愿停产全氟辛烷磺酸(perfluorooctane sulfonate, PFOS)及其相关产品。2009和2019年, 联合国环境规划署《关于持久性有机污染物的斯德哥尔摩公约》第四次^[12]和第九次^[13]大会分别将PFOS、全氟辛酸(perfluorooctanoic

[基金项目] 国家重点研发计划(2017YFC1600500); 上海交通大学医工交叉基金(YG2019ZDA29)。

[作者简介] 姚 谦(1994—), 女, 博士生; 电子信箱: yuanxingye@sjtu.edu.cn。

[通信作者] 田 英, 电子信箱: tianmiejp@sjtu.edu.cn。

[Funding Information] National Key Research and Development Program of China (2017YFC1600500); Shanghai Jiao Tong University Discipline-Crossing of Medicine and Engineering Foundation (YG2019ZDA29).

[Corresponding Author] TIAN Ying, E-mail: tianmiejp@sjtu.edu.cn.

[网络首发] <https://kns.cnki.net/kcms/detail/31.2045.R.20210524.1010.014.html> (2021-05-25 19:06:25)。

acid, PFOA) 及其盐类和相关化合物纳入管控清单, 160 多个国家和地区同意减少并最终禁止使用该类物质。美国环保署 (Environmental Protection Agency, EPA) 也与 8 家 PFAS 主要制造商签署协议, 在 2010—2015 年间逐步减少并最终停止 PFOA 及其相关化学品的生产^[1]。而我国 PFAS 产量逐年攀升, 2006 年已增至 200 吨, 成为全球 PFAS 的主要生产地^[14]。随着其产量和排放增多, 我国环境介质均受到不同程度的污染, 例如我国淡水流域塘汛湖检出的 PFOA 和 PFOS 水平 (372 ng/L, 57 ng/L) 显著高于北美五大湖 (38.5 ng/L, 45.5 ng/L)、德国易北河 (6.2 ng/L, 1.7 ng/L) 和法国莱茵河 (21 ng/L, 9.7 ng/L)^[15]。而普通人群的 PFOS 暴露水平也有所上升, 例如沈阳地区人群 1999—2002 年间血清 PFOS 水平从 0.02 ng/mL 升至 22.40 ng/mL^[16]; 2015—2017 年对我国 13 个地区的研究^[17]发现, 普通人群 PFOS 水平 (4.1 ng/mL) 虽略低于美国 (4.9 ng/mL) 和欧洲 (7.7 ng/mL), 但 PFOA 水平 (5.2 ng/mL) 显著高于欧美地区 (1.9 ng/mL, 1.9 ng/mL)。尽管 2019 年我国生态环境部发布公告, 禁止 PFOS 及其盐类除可接受用途外的生产、流通、使用和进出^[18], 该措施仍未严格限制 PFOS 的生产和使用, 且没有关于 PFOA 的相关限制举措。考虑到我国 PFAS 污染情况普遍, 管控措施尚不健全, 多项研究已经对我国人群的 PFAS 暴露进行了健康风险评估。本文综述了我国人群 PFAS 健康风险评估的研究进展, 以期 PFAS 相关研究提供参考。

1 PFAS 的健康风险评估和安全限值

健康风险评估研究将 PFAS 的暴露途径分成 3 类: 经口、经呼吸道和经皮。其中, 经口暴露途径的 PFAS 主要来源于膳食和饮水; 经呼吸道暴露途径的 PFAS 主要来源于灰尘和空气, 经皮途径的 PFAS 暴露来源报道罕见。由于尚无充足的证据将 PFAS 列为致癌物, 对各来源的 PFAS 的风险评估多关注其非致癌风险, 即基于估计每日摄入量 (estimated daily intake, EDI) 与健康指导值 (health based guideline value, HBGV) 的比较。HBGV 表示人类在一定时期内 (终生或 24 h) 摄入某种 (或某些) 物质, 而不产生可检测到的对健康造成危害的安全限值, 包括每日/周耐受摄入量 (tolerated daily intake/tolerable weekly intake, TDI/TWI)、参考剂量 (reference dose, RfD) 等^[19]。若 EDI 与 RfD 的比值——危害指数 (hazard index, HI) >1, 表明存在风险; 或通过 EDI 是否超过欧洲各国提出的 TDI 或 TWI 来判断人群暴露是否存在风险。

由于 PFAS 对健康影响的不确定性, 目前并没有统一的

PFAS 安全限值。而我国尚无相关 HBGV 出台, 健康风险评估研究目前均参考欧美标准。早在 2002 年, 美国环境工作组 (Environmental Working Group, EWG) 确定的 PFOS 和 PFOA 的 RfD 分别为 25 ng/(kg·d) 和 333 ng/(kg·d)^[20]。2006 年英国食品、消费品和环境化学品毒性委员会 (Food Standards Agency Committee on Toxicology, COT) 建议 PFOS 和 PFOA 的 TDI 值分别为 300 ng/(kg·d) 和 3 000 ng/(kg·d)^[21-22]。2008 年欧盟食品安全局 (European Food Safety Authority, EFSA) 提出的 PFOS 和 PFOA 的 TDI 分别为 150 ng/(kg·d) 和 1 500 ng/(kg·d)^[23]。2009 年德国联邦风险评估研究所 (Bundesinstitut für Risikobewertung, BfR) 给出的 PFOS 和 PFOA 的 TDI 参考值为 100 ng/(kg·d)^[24]。早期风险评估研究多采用这些 HBGV。

此后, 随着对 PFAS 毒性研究的深入, 欧美各国更新的 PFOS 和 PFOA 的安全限值较此前的规定低了 2~3 个数量级。2016 年 EPA 规定的 PFOS 和 PFOA 的 RfD 均为 20 ng/(kg·d)^[25-26]; 2018 年 EFSA 重新综述了流行病学研究和动物实验结果, 将 PFOS 和 PFOA 的 TWI 调整为 13 ng/(kg·周) 和 6 ng/(kg·周)^[27]; 同年, 美国毒物与疾病登记署 (Agency for Toxic Substances and Disease Registry, ATSDR) 设定 PFOS、PFOA、全氟壬酸 (perfluorononanoic acid, PFNA)、全氟己烷磺酸 (perfluorohexane sulfonate, PFHxS) 的口服最小危险剂量 (oral minimal risk level, MRL) 分别为 2、3、3、20 ng/(kg·d)^[28]。为保护敏感人群, EFSA 在 2020 年提出的草案中, 对 PFOA、PFOS、PFNA 和 PFHxS 4 类主要 PFAS 合并规定限值为 8 ng/(kg·d)^[29]。基于这些更新后的 HBGV, 多项我国人群的风险评估研究已提示 PFAS 存在潜在的健康风险, 需要进一步的关注。

2 我国人群 PFAS 的健康风险评估研究

2.1 膳食来源

现有研究普遍认为膳食是最主要的 PFAS 暴露来源。根据联合国粮农组织和世界卫生组织的推荐, 膳食暴露评估主要有 3 种方法, 即单个食物的选择性研究、总膳食研究和双份饭法^[30-31]。目前国内多采用单个食物的选择性研究, 即采集市售样本测定 PFAS 水平并利用膳食问卷收集食用量以估算 EDI。

由于各地区的饮食差异, 沿海地区和淡水流域研究多关注水产品, 而内陆地区研究则多关注奶类和肉类。2006 年, Gulkowska 等^[32]发现从舟山和广州鱼市收集的

鱼、软体动物、螃蟹、虾、牡蛎、贻贝和蛤样本中,几种PFAS中PFOS的检出率最高(100%),两地成人经海鲜摄入PFOS的EDI分别为9.28和4.78 ng/(kg·d),PFOA的EDI为1.16和0.94 ng/(kg·d);2011年香港和厦门成人通过鱼类摄入PFOS的EDI分别为2.4和3.3 ng/(kg·d),摄入PFOA的EDI分别为5.1和3.0 ng/(kg·d)^[33];2012年基于6大沿海地区(辽宁、山东、江苏、浙江、福建和广东)47种鱼类和45种贝类中PFAS水平估计的成人PFOS和PFOA的EDI最高仅为0.694和0.914 ng/(kg·d)^[34]。针对淡水水域,2018年Cui等^[35]测定白洋淀的鱼类摄入的PFOS和PFOA水平,估计的EDI分别为10.74和7.69 ng/(kg·d);该研究使用了2016年EPA提出的RfD值,研究结果提示该地区人群EDI已经接近限值,存在潜在的健康风险。而2019年Meng等^[36]对密云水库的鱼类研究却提示摄入PFAS所致的健康风险较低。该差异可能与白洋淀周边的工业较发达,产生的工业废弃物较多有关。

在内陆地区,2008年Wang等^[37]报道了湖北省、安徽省芜湖市、江苏省常州市金坛区、江苏省溧阳市、江苏省南京市和山东省的市售鸡蛋中的PFAS水平,发现PFOS在蛋黄中100%检出,而在蛋白中几乎无检出;当地居民通过鸡蛋摄入PFOS的EDI为4~10 ng/(kg·d)。2010年Wang等^[38]测定了北京、武汉、天津的市售鲜奶、奶粉和酸奶中的PFAS水平,发现成人通过奶类摄入PFOS的EDI为0.023 ng/(kg·d),远低于水产品 and 鸡蛋。同年,Wang等^[39]报道了北京市售猪和鸡的内脏、肌肉中的PFAS水平,发现相对于内脏,肌肉样品中PFAS的含量较少,PFOS的EDI为0.011 ng/(kg·d);这些食品的摄入量均明显低于此前Gulkowska等^[32]估计的中国沿海居民从水产品摄入的量。在偏远的新疆,2016和2017年,Xing等^[40]和Wang等^[41]也报道了通过鲜奶和酸奶摄入的PFOS和PFOA的EDI为0.032和0.021 ng/(kg·d),通过牛肉及牛内脏摄入的PFOS和PFOA的EDI分别为0.039和0.034 ng/(kg·d),但与更新或未更新的限值相比,均未见健康风险。

在研究了个别地区的大类食物(水产品类、蛋类、奶类和肉类)后,为了让研究结果能够更全面代表中国普通人群的暴露水平,研究囊括的调查地区逐渐增多。2010年Zhang等^[42]测定了15个省17个城市居民经常食用的动物性食物(肉及肉制品、蛋类)样品中的PFAS含量,发现幼儿(2~5岁)、儿童和青少年(6~17岁)和成年人(≥18岁)通过动物性食物摄入PFOA的EDI分别为19.7、14.9和10.5 ng/(kg·d)。2011年Zhang等^[43]报

道了11个省13个城市的幼儿、儿童和青少年、成人通过淡水鱼和海鲜摄入PFOS的EDI分别为0.38、0.32、0.28 ng/(kg·d),摄入PFOA的EDI分别为2.51、0.31、1.02 ng/(kg·d)。在2016、2018、2020年各国更新HBGV之前,我国研究多与已有的RfD和TDI值比较,而结论多为无可观察到的健康风险。值得关注的是,2019年Wang等^[44]首次基于覆盖我国70%人口的中国总膳食研究,发现上海地区成人通过动物性食品(蛋类、奶类、水产品和肉类)摄入的PFOS[4.07 ng/(kg·d)]、PFOA[2.19 ng/(kg·d)]和福建地区人群摄入的PFNA[2.72 ng/(kg·d)]的EDI均超过了2016、2018、2020年更新的美国及欧盟的HBGV,提示上海和福建人群存在一定的PFOA、PFOS、PFNA暴露的健康风险。

然而,此前的研究并未调查日常膳食中摄入最多的主食类和蔬菜水果类。研究逐步发现,在氟化物工业园区,即潜在PFAS高污染地区,通过主食和蔬菜水果摄入PFAS也可能对人群增加健康风险。2017年Liu等^[45]检测了山东桓台氟化物工业园区附近种植的小麦和玉米中的PFAS水平,发现幼儿、儿童、青少年以及成人摄入的PFOA的EDI为72.3、72.8、55.4、49.2 ng/(kg·d),远高于此前在动物性食品中报道的EDI水平和2016、2018、2020年更新的HBGV。2019年Li等^[46]测定了常熟氟化学工业园下游地区的灌溉水、农业土壤、典型蔬菜和水果中PFAS水平,发现与动物性食品不同,这些样本中浓度和检出率较高者均以PFOA、全氟丁酸(perfluorobutanoic acid, PFBA)等短链全氟羧酸为主,PFOS检出率低于5%。值得注意的是,虽然灌溉用水和农业土壤中的PFAS水平随着与工业园距离的增加呈下降趋势,但在农产品中并没有发现这种趋势,且在瓜类、茄类和梨类中均发现了PFBA和PFOA的生物累积。PFOA的EDI[5.6 ng/(kg·d)]已超过了2018年ATSDR更新的HBGV。由于日常饮食摄入以主食和蔬菜水果较多,高污染地区PFAS暴露所致的健康风险需要重点关注。

2.2 乳汁来源

由于婴儿的膳食来源主要是乳汁,母乳的PFAS摄入是婴儿膳食评估的重点,且健康风险评估普遍提示敏感人群婴儿较成人有更高的健康风险。2006年So等^[47]通过测定19例舟山初产妇乳汁,估计婴儿经乳汁摄入的PFOS的最高水平为30 ng/(kg·d),摄入的PFOA的最高水平为17 ng/(kg·d),尽管当时采用的是2002年EWG确定的PFOS的RfD[25 ng/(kg·d)],但已经发现部分婴儿通过乳汁摄入PFAS存在健康风险。2010年Liu等^[48]

在12大地区(黑龙江省、辽宁省、河北省、河南省、山西省、宁夏回族自治区、江西省、福建省、上海市、湖北省、四川省、广西壮族自治区)各选择1个城市收集点纳入50位志愿者的独立样本,各选择2个农村收集点采集50~60位志愿者的独立样本,共采集1 237份不同母亲的乳汁样本;将同地区的农村样本混合得到1份农村样本,将同地区的城市样本混合得到1份城市样本,共获得24份混合样本测定PFAS水平;发现上海地区PFOA的EDI最高[88.4 ng/(kg·d)],接近2009年BfR设立的TDI参考值[100 ng/(kg·d)],存在健康风险。2020年Jin等^[49]基于杭州的出生队列分析了174例乳汁样本,估算出PFOA和PFOS的EDI分别为24和9.9 ng/(kg·d);尽管该研究仍以2008年EFSA和2009年BfR的标准为参考,但其值已经超过了2018年EFSA修订的HBGV数倍。

2.3 饮水来源

2011年,Zhang等^[43]测定了11个省份13个城市饮用水中的PFAS水平,结果显示PFOA是饮用水中主要的PFAS;PFOS和PFOA通过饮用水摄入的EDI分别为0.006~0.014 ng/(kg·d)和0.010~0.159 ng/(kg·d)。2018年Cui等^[35]对白洋淀淡水的分析发现摄入PFOS、PFOA的EDI为0.63和3.3 ng/(kg·d),而密云水库淡水中计算得到的EDI均低于1^[36]。2019年Ao等^[50]通过分析山东省和上海市的饮用水估计的婴儿、儿童、青少年、成人通过饮水摄入的EDI也远低于限值,暂未见相关风险。

2.4 灰尘来源

2010年Zhang等^[42]测量了来自于南昌市、上海市、北京市和天津市学生寝室、住户、办公室的室内灰尘中PFAS水平,发现幼儿、儿童和青少年、成人通过灰尘摄入的PFOS水平为0.020、0.010和0.005 ng/(kg·d),摄入的PFOA水平为0.870、0.270和0.210 ng/(kg·d),幼儿、儿童和青少年通过灰尘摄入PFOS和PFOA的EDI值高于成年人。2016年夏慧等^[51]测量了上海市家庭、宿舍和办公室的室内灰尘中PFAS水平,估计的经皮肤接触和直接摄入2种途径的总PFAS的日均暴露剂量分别为6.191和3.331 ng/(kg·d);由于初学走路的儿童(1~5岁)平均灰尘摄入量高于青少年儿童及成年人,灰尘中PFAS暴露对儿童的健康影响更大。同年,Su等^[52]比较了山东省桓台县小清河附近氟化物工业园区的室内和室外灰尘中的PFAS水平,发现通过吸入粉尘摄入的PFAS的EDI为皮肤接触摄入的4~14倍,且室内粉尘中PFAS含量中位数(852 ng/g)明显高于室外(62 ng/g);在不

同的年龄组中,幼儿通过灰尘摄入的PFOA的EDI最高,达到25.99 ng/(kg·d),进一步提示了高污染区的PFAS暴露风险较高。上述研究的评估结果虽然表明灰尘对成人健康无明显影响,但均提示了儿童的健康风险高于成人,这可能是儿童特有的手-口动作所致。因此,关注灰尘来源的健康风险评估对儿童具有重要意义。

2.5 大气来源

2015年Liu等^[53]报道了2011年采集的我国深圳大气样本的分析结果,计算得到的通过呼吸摄入的PFOS和PFOA的EDI分别为 2.8×10^{-5} 和 4.8×10^{-5} ng/(kg·d)。2018年Liu等^[54]和Lu等^[55]相继报道了巢湖市农村男性对大气中PFOA和PFOS摄入量为0.008和0.011 ng/(kg·d),中国中东部地区(江苏省、浙江省和上海市)PFOA和PFOS的摄入量均为0.02 ng/(kg·d)。目前为止,研究报道的通过大气摄入的PFAS远低于其他来源,暂未见健康风险。

2.6 胎盘转移来源

处于生命早期阶段的胎儿存在胎盘转移来源的PFAS暴露途径。由于胎儿对各种污染物更加敏感,受到损伤的风险也更大,PFAS的胎盘转移暴露应受到格外重视。研究^[56]发现PFAS能通过胎盘屏障,可通过测定脐带血中PFAS水平进行胎盘转移来源的暴露风险评估。我国山东地区的出生队列研究^[56]报道了婴儿经胎盘转移来源的PFAS暴露的健康风险,发现在调查人群中有7.3%的婴儿存在PFOA暴露的健康风险。

2.7 多个暴露来源PFAS的综合评估

目前综合评估多个暴露来源的PFAS的研究较少,且多以实际测量结合参考既往文献报道数据的方式。2010年Zhang等^[42]的研究检测了饮食(肉类及其制品、蛋类)和室内灰尘中的PFAS水平,结合既往文献报道的乳汁、海产品、室内空气等来源中的PFAS水平,综合计算各种暴露来源下摄入的PFAS的比例;发现我国居民通过膳食摄入的PFOS和PFOA分别占有所有途径的99%和98%,其中肉和肉制品及蛋类是PFOA摄入的主要来源,海产品则是PFOS摄入的主要来源;由于肉制品、动物肝脏和动物血制品的平均消费率较低,其并非主要的暴露来源。由于当时缺乏某些暴露来源的数据报道,作者认为奶类、蔬菜水果、谷类和室内空气的PFAS水平均低至可忽略的程度。2019年,Ao等^[50]检测了山东省和上海市的饮水和室内灰尘中PFAS暴露水平,膳食、室内空气

的数据参考以往研究,认为各暴露来源所占百分比从大到小依次为膳食、室内灰尘、饮水、室内空气。由于PFAS暴露来源多样,有待进一步综合多个来源的风险评估结果并明确主要暴露来源,提出有针对性的预防策略。

3 我国人群PFAS健康风险评估的挑战

综上所述,现有的研究还需考虑以下方面:①基于以往其他国家HBGV,我国普通人群PFAS暴露暂无明显的健康风险,但发现了高污染地区人群和敏感人群婴幼儿的健康风险。我们前期在山东重工业地区的研究^[56]中也发现孕妇血清PFOA水平高出欧美地区20~30倍,进一步提示高污染地区人群和敏感人群婴幼儿的健康风险值得重点关注。②近年来PFOS和PFOA的安全限值不断下调,我国已有研究中估计的PFAS的EDI已超过最新的限

值。PFAS对我国普通人群的健康风险还需要进一步的评估。③研究采用的国际标准并未统一,我国尚无相关标准出台,应尽快确立符合我国国情的PFAS安全限值。④综合评估多个暴露来源的研究较少,膳食研究多选择当地代表性食物,无法代表每个个体的膳食结构,且较少研究考虑了实际烹饪过程中PFAS的损失或由于调味料添加导致的PFAS水平的改变。PFAS的暴露情况尚待进一步全面评估。⑤除PFOS和PFOA外,其他PFAS也逐渐受到关注,如作为替代品的短链PFAS。但由于目前的限值缺乏,无法评估多种PFAS的累计暴露风险。

对我国人群不同来源PFAS暴露风险进行对比研究与综合评估,可以弥补我国在此类重要化合物健康风险评估研究领域的不足。更重要的是,其可以作为相关政府部门的参考,有助于尽早提出符合我国国情的污染防治措施。

参 考 文 献

- [1] Environmental Protection Agency (EPA). EPA's PFAS action plan[EB/OL]. (2019-02-14) [2020-05-15]. https://www.epa.gov/sites/production/files/2019-02/documents/pfas_action_plan_021319_508compliant_1.pdf.
- [2] Cariou R, Veyrand B, Yamada A, et al. Perfluoroalkyl acid (PFAA) levels and profiles in breast milk, maternal and cord serum of French women and their newborns[J]. *Environ Int*, 2015, 84: 71-81.
- [3] Cho CR, Lam NH, Cho BM, et al. Concentration and correlations of perfluoroalkyl substances in whole blood among subjects from three different geographical areas in Korea[J]. *Sci Total Environ*, 2015, 512/513: 397-405.
- [4] Miralles-Marco A, Harrad S. Perfluorooctane sulfonate: a review of human exposure, biomonitoring and the environmental forensics utility of its chirality and isomer distribution[J]. *Environ Int*, 2015, 77: 148-159.
- [5] Sakr CJ, Kreckmann KH, Green JW, et al. Cross-sectional study of lipids and liver enzymes related to a serum biomarker of exposure (ammonium perfluorooctanoate or APFO) as part of a general health survey in a cohort of occupationally exposed workers[J]. *J Occup Environ Med*, 2007, 49(10): 1086-1096.
- [6] Grandjean P, Andersen EW, Budtz-Jørgensen E, et al. Serum vaccine antibody concentrations in children exposed to perfluorinated compounds[J]. *JAMA*, 2012, 307(4): 391-397.
- [7] Gallo V, Leonardi G, Brayne C, et al. Serum perfluoroalkyl acids concentrations and memory impairment in a large cross-sectional study[J]. *BMJ Open*, 2013, 3(6): e002414.
- [8] Leter G, Consales C, Eleuteri P, et al. Exposure to perfluoroalkyl substances and sperm DNA global methylation in Arctic and European populations[J]. *Environ Mol Mutagen*, 2014, 55(7): 591-600.
- [9] Halldorsson TI, Rytter D, Haug LS, et al. Prenatal exposure to perfluorooctanoate and risk of overweight at 20 years of age: a prospective cohort study[J]. *Environ Health Perspect*, 2012, 120(5): 668-673.
- [10] Lin CY, Wen LL, Lin LY, et al. The associations between serum perfluorinated chemicals and thyroid function in adolescents and young adults[J]. *J Hazard Mater*, 2013, 244/245: 637-644.
- [11] Barry V, Winquist A, Steenland K. Perfluorooctanoic acid (PFOA) exposures and incident cancers among adults living near a chemical plant[J]. *Environ Health Perspect*, 2013, 121(11/12): 1313-1318.
- [12] United Nations Environment Programme. Report of the conference of the parties to the stockholm convention on persistent organic pollutants on the work of its fourth meeting[EB/OL]. (2009-05-08) [2020-05-15]. <http://www.pops.int/The Convention/Conference of the Parties/Reports and Decisions/ tabid/208/ctl/Download/mid/10388/Default.aspx?id=41&ObjID=7047>.
- [13] United Nations Environment Programme. Report of the conference of the parties to the stockholm convention on persistent organic pollutants on the work of its ninth meeting[EB/OL]. (2019-06-27) [2020-05-15]. <http://www.pops.int/The Convention/Conference of the Parties/Reports and Decisions/ tabid/208/ctl/Download/mid/10388/Default.aspx?id=101&ObjID=27106>.
- [14] 谢双蔚. 我国全氟辛烷磺酸(PFOS)排放源识别与排放估算研究[D]. 北京: 中国科学院大学, 2013.
- [15] Wang TY, Wang P, Meng J, et al. A review of sources, multimedia distribution and health risks of perfluoroalkyl acids (PFAAs) in China[J]. *Chemosphere*, 2015, 129: 87-99.
- [16] Jin YH, Saito N, Harada KH, et al. Historical trends in human serum levels of perfluorooctanoate and perfluorooctane sulfonate in Shenyang, China[J]. *Tohoku J Exp Med*, 2007, 212(1): 63-70.
- [17] Zhang SY, Kang QY, Peng H, et al. Relationship between perfluorooctanoate and perfluorooctane sulfonate blood concentrations in the general population and routine drinking water exposure[J]. *Environ Int*, 2019, 126: 54-60.
- [18] 中华人民共和国生态环境部. 关于禁止生产、流通、使用和进出口林丹等持久性有机污染物的公告[EB/OL]. (2019-03-11) [2020-05-15]. http://www.mee.gov.cn/xxgk/2018/xxgk01/201903/20190312_695462.html.
- [19] 贾旭东. 健康指导值在食品安全风险评估中的应用[J]. *中国食品卫生杂志*, 2011, 23(1): 22-25.
- [20] Environmental Working Group (EWG). Perfluorinated chemicals: justification for inclusion of this chemical class in the national report on human exposure to environmental chemicals[EB/OL]. (2002-12-06) [2020-05-15]. https://www.researchgate.net/publication/237442337_Perfluorinated_chemicals_Justification_for_Inclusion_of_this_Chemical_Class_in_the_National_Report_on_Human_Exposure_to_Environmental_Chemicals/link/56a4f64308ae232fb207891b/download.
- [21] U. K. Food Standards Agency Committee on Toxicity (COT). COT statement on the tolerable daily intake for perfluorooctanoic acid[EB/OL]. (2006-10-01) [2020-05-15]. <https://cot.food.gov.uk/sites/default/files/cot/cotstatementpfoa200610.pdf>.
- [22] U. K. Food Standards Agency Committee on Toxicity (COT). COT statement on the tolerable daily intake for perfluorooctane sulfonate[EB/OL]. (2006-09-01) [2020-05-15]. <https://cot.food.gov.uk/sites/default/files/cot/cotstatementpfos200609.pdf>.
- [23] European Food Safety Authority (EFSA). Perfluorooctane sulfonate (PFOS), perfluorooctanoic acid (PFOA) and their salts scientific opinion of the panel on contaminants in the food chain [EB/OL]. (2008-02-21) [2020-05-15]. <https://efsa.onlinelibrary.wiley.com/doi/epdf/10.2903/j>.

- efsa. 2008. 653.
- [24] Bundesinstitut für Risikobewertung (BfR). Wissenschaft zum schutz des verbrauchers[EB/OL]. (2009-08-24) [2020-05-15]. https://www.bfr.bund.de/de/presseinformation/2009/21/wissenschaft_zum_schutz_des_verbrauchers-30751.html.
- [25] Environmental Protection Agency (EPA). Drinking water health advisory for perfluorooctanoate (PFOS)[EB/OL]. (2016-05-08) [2020-05-15]. https://www.epa.gov/sites/production/files/2016-05/documents/pfos_health_advisory_final_508.pdf.
- [26] Environmental Protection Agency (EPA). Drinking water health advisory for perfluorooctanoic acid (PFOA)[EB/OL]. (2016-05-08) [2020-05-15]. https://www.epa.gov/sites/production/files/2016-05/documents/pfoa_health_advisory_final_508.pdf.
- [27] EFSA Panel on Contaminants in the Food Chain (CONTAM), Knutsen HK, Alexander J, et al. Risk to human health related to the presence of perfluorooctane sulfonic acid and perfluorooctanoic acid in food[J]. EFSA J, 2018, 16(12): e05194.
- [28] Agency for Toxic Substances and Disease Registry (ATSDR). Toxicological profile for perfluoroalkyls[EB/OL]. (2019-02-28) [2020-05-15]. <https://www.atsdr.cdc.gov/toxprofiles/tp200.pdf>.
- [29] European Food Safety Authority (EFSA). Public consultation on the draft scientific opinion on the risks to human health related to the presence of perfluoroalkyl substances in food[EB/OL]. (2020-02-24) [2020-05-15]. www.efsa.europa.eu/en/consultations/call/public-consultation-draft-scientific-opinion-risks-human-health.
- [30] 刘晓曦, 高俊全, 李筱薇. 不同膳食摄入量研究方法比较[J]. 卫生研究, 2006, 35(3): 363-366.
- [31] World Health Organization (WHO). Methods most suitable for individual food intake assessments[M]//WHO. Guidelines for the study of dietary intakes of chemical contaminants. Geneva: WHO Offset Publication, 1985: 13-15.
- [32] Gulkowska A, Jiang QT, So MK, et al. Persistent perfluorinated acids in seafood collected from two cities of China[J]. Environ Sci Technol, 2006, 40(12): 3736-3741.
- [33] Zhao YG, Wan HT, Law AY, et al. Risk assessment for human consumption of perfluorinated compound-contaminated freshwater and marine fish from Hong Kong and Xiamen[J]. Chemosphere, 2011, 85(2): 277-283.
- [34] Wu YN, Wang YX, Li JG, et al. Perfluorinated compounds in seafood from coastal areas in China[J]. Environ Int, 2012, 42: 67-71.
- [35] Cui QQ, Pan YT, Zhang HX, et al. Elevated concentrations of perfluorohexanesulfonate and other per- and polyfluoroalkyl substances in Baiyangdian Lake (China): source characterization and exposure assessment[J]. Environ Pollut, 2018, 241: 684-691.
- [36] Meng J, Liu SF, Zhou YQ, et al. Are perfluoroalkyl substances in water and fish from drinking water source the major pathways towards human health risk?[J]. Ecotoxicol Environ Saf, 2019, 181: 194-201.
- [37] Wang Y, Yeung LWY, Yamashita N, et al. Perfluorooctane sulfonate (PFOS) and related fluorochemicals in chicken egg in China[J]. Chin Sci Bull, 2008, 53(4): 501-507.
- [38] Wang JM, Shi YL, Pan YY, et al. Perfluorinated compounds in milk, milk powder and yoghurt purchased from markets in China[J]. Chin Sci Bull, 2010, 55(11): 1020-1025.
- [39] Wang JM, Shi YL, Pan YY, et al. Perfluorooctane sulfonate (PFOS) and other fluorochemicals in viscera and muscle of farmed pigs and chickens in Beijing, China[J]. Chin Sci Bull, 2010, 55(31): 3550-3555.
- [40] Xing ZN, Lu JJ, Liu ZL, et al. Occurrence of perfluorooctanoic acid and perfluorooctane sulfonate in milk and yogurt and their risk assessment[J]. Int J Environ Res Public Health, 2016, 13(10): E1037.
- [41] Wang GH, Lu JJ, Xing ZN, et al. Occurrence, distribution, and risk assessment of perfluoroalkyl acids (PFAAs) in muscle and liver of cattle in Xinjiang, China[J]. Int J Environ Res Public Health, 2017, 14(9): E970.
- [42] Zhang T, Sun HW, Wu Q, et al. Perfluorochemicals in meat, eggs and indoor dust in China: assessment of sources and pathways of human exposure to perfluorochemicals[J]. Environ Sci Technol, 2010, 44(9): 3572-3579.
- [43] Zhang T, Sun HW, Lin Y, et al. Perfluorinated compounds in human blood, water, edible freshwater fish, and seafood in China: daily intake and regional differences in human exposures[J]. J Agric Food Chem, 2011, 59(20): 11168-11176.
- [44] Wang YX, Liu JY, Li JG, et al. Dietary exposure of Chinese adults to perfluoroalkyl acids via animal-origin foods: Chinese total diet study (2005–2007 and 2011–2013)[J]. J Agric Food Chem, 2019, 67(21): 6048-6055.
- [45] Liu ZY, Lu YL, Shi YJ, et al. Crop bioaccumulation and human exposure of perfluoroalkyl acids through multi-media transport from a mega fluorochemical industrial park, China[J]. Environ Int, 2017, 106: 37-47.
- [46] Li PY, Oyang X, Zhao YL, et al. Occurrence of perfluorinated compounds in agricultural environment, vegetables, and fruits in regions influenced by a fluorine-chemical industrial park in China[J]. Chemosphere, 2019, 225: 659-667.
- [47] So MK, Yamashita N, Taniyasu S, et al. Health risks in infants associated with exposure to perfluorinated compounds in human breast milk from Zhoushan, China[J]. Environ Sci Technol, 2006, 40(9): 2924-2929.
- [48] Liu JY, Li JG, Zhao YF, et al. The occurrence of perfluorinated alkyl compounds in human milk from different regions of China[J]. Environ Int, 2010, 36(5): 433-438.
- [49] Jin HB, Mao LL, Xie JH, et al. Poly- and perfluoroalkyl substance concentrations in human breast milk and their associations with postnatal infant growth[J]. Sci Total Environ, 2020, 713: 136417.
- [50] Ao JJ, Yuan T, Xia H, et al. Characteristic and human exposure risk assessment of per- and polyfluoroalkyl substances: a study based on indoor dust and drinking water in China[J]. Environ Pollut, 2019, 254(Pt A): 112873.
- [51] 夏慧, 敖俊杰, 袁涛. 室内灰尘中全氟化合物的污染状况与人体暴露水平评估[J]. 生态毒理学报, 2016, 11(2): 223-230.
- [52] Su HQ, Lu YL, Wang P, et al. Perfluoroalkyl acids (PFAAs) in indoor and outdoor dusts around a mega fluorochemical industrial park in China: implications for human exposure[J]. Environ Int, 2016, 94: 667-673.
- [53] Liu BL, Zhang H, Yao D, et al. Perfluorinated compounds (PFCs) in the atmosphere of Shenzhen, China: spatial distribution, sources and health risk assessment[J]. Chemosphere, 2015, 138: 511-518.
- [54] Liu WX, He W, Wu JY, et al. Distribution, partitioning and inhalation exposure of perfluoroalkyl acids (PFAAs) in urban and rural air near Lake Chaohu, China[J]. Environ Pollut, 2018, 243(Pt A): 143-151.
- [55] Lu ZB, Lu R, Zheng HY, et al. Risk exposure assessment of per- and polyfluoroalkyl substances (PFASs) in drinking water and atmosphere in central Eastern China[J]. Environ Sci Pollut Res, 2018, 25(10): 9311-9320.
- [56] Han WC, Gao Y, Yao Q, et al. Perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances in matched parental and cord serum in Shandong, China[J]. Environ Int, 2018, 116: 206-213.

[收稿日期] 2020-05-15

[本文编辑] 崔黎明

