

不同塑料餐具中典型毒害物质的暴露评估

李宁¹, 肖海清², 王宏伟², 黄国忠¹, 谢佳颖¹, 司念朋^{2*}

(1. 北京科技大学大安全科学研究院, 土木与资源工程学院, 北京 100083)

(2. 中国检验检疫科学研究院, 北京 100176)

摘要: 该研究通过建立暴露评估模型评估不同塑料餐具对人体的风险水平。以聚苯乙烯类、聚丙烯类、密胺、聚乙烯类 4 类常用塑料餐具为对象, 将餐具内典型毒害物质分为 5 类, 再根据解释结构模型构建风险传递路径, 并将路径划分为三个阶段进一步建立暴露评估模型。最后, 利用 MATLAB 软件将模型程序化。实例应用可得, 四类餐具按毒害物质总危害指数排序: 聚苯乙烯类(2.24E+00) > 密胺(6.94E-01) > 聚丙烯类(2.98E-01) > 聚乙烯类(2.66E-01), 且聚苯乙烯类对人体存在不可接受的风险(美国环境保护署认定的风险可接受值为 1.00); 餐具在接触油脂类食品时总危害指数最高(2.62E+00), 约为水性、酸性、酒精类食品的 6.30、2.63、5.72 倍, 其中聚苯乙烯类餐具接触油脂类食品时存在不可接受的风险。此外, 食品贮存周期、微波炉加热时长与餐具对人体的风险成正相关, 某些情况下可对人体产生不可接受的风险。这表明: 一些符合标准的塑料餐具对人体也会存在不可接受的暴露风险, 而风险的产生与食品类型、消费者的餐具使用习惯(贮存周期和微波加热的偏向)也有关系。

关键词: 塑料餐具; 毒害物质; 暴露评估模型; ISM 模型

文章编号: 1673-9078(2022)09-321-332

DOI: 10.13982/j.mfst.1673-9078.2022.9.1143

Exposure Assessment of Typical Toxic Substances in Different Plastic Tableware Sets

LI Ning¹, XIAO Haiqing², WANG Hongwei², HUANG Guozhong¹, XIE Jiaying¹, SI Nianpeng^{2*}

(1. Research Institute of Macro-Safety Science, School of Civil and Resource Engineering, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China) (2. Chinese Academy of Inspection and Quarantine, Beijing 100176, China)

Abstract: The risk levels of different plastic tableware sets exposed to humans were evaluated by establishing an exposure assessment model. Taking the commonly used polystyrene, polypropylene, melamine and polyethylene plastic tableware sets as the objects, the typical toxic substances in tableware were divided into five categories. Then the risk transfer path was constructed based on the interpretative structural model, and the exposure assessment model was further established based on the three stages of the risk transfer path. Finally, the model was programmed by MATLAB software. The real applications showed that four types of plastic tableware sets were ranked according to the total hazard index of toxic substances: polystyrene (2.24E+00) > melamine (6.94E-01) > polypropylene (2.98E-01) > polyethylene (2.66E-01), and the polystyrene tableware had an unacceptable exposure risk level to the human body (the acceptable risk value was determined by the U.S. Environmental Protection Agency as 1.00). The total hazard index of the tableware in contact with greasy foods was the highest (2.62E+00), which was about 6.30, 2.63 and 5.72 times that of water-based, acidic and alcoholic foods. Among them, the polystyrene tableware had an unacceptable exposure risk to the human body when it came into contact with greasy foods. In addition, food storage cycle and microwave heating time were positively correlated with the exposure risk of tableware to the human body, and they may pose an unacceptable risk to the human body in some cases. These results show that some plastic tableware meeting the standard may have an unacceptable exposure risk to the

引文格式:

李宁,肖海清,王宏伟,等.不同塑料餐具中典型毒害物质的暴露评估[J].现代食品科技,2022,38(9):321-332

LI Ning, XIAO Haiqing, WANG Hongwei, et al. Exposure assessment of typical toxic substances in different plastic tableware sets [J]. Modern Food Science and Technology, 2022, 38(9): 321-332

收稿日期: 2021-10-14

基金项目: 国家重点研发计划项目(2018YFF0215500)

作者简介: 李宁(1997-), 女, 硕士生, 研究方向: 产品缺陷判定与风险评估, E-mail: m15901132903@163.com

通讯作者: 司念朋(1984-), 男, 高级工程师, 研究方向: 工业产品质量安全, E-mail: isinp@sina.com

human body, and the risk is also related to the type of food and consumer's tableware usage habits (storage cycle and microwave heating preference).

Key words: plastic tableware; toxic substances; exposure assessment model; ISM model

食品历来是与人们健康安全密切相关的敏感商品,一直受到国内外消费者的高度重视和关注^[1]。市场上大部分塑料餐具的主要成分为聚合物树脂、增塑剂、填充剂、着色剂、稳定剂等,这类化学物质在湿热环境下,长期与食物接触极易发生迁移,使毒害物质进入食物成为食物的隐形添加剂^[2],对人体健康造成威胁。目前,塑料餐具类食品接触产品安全问题已然成为各个国家关注的焦点,如欧盟、美国等都制定了非常严苛的安全标准^[3],其立法的基本观点是保证用于处理和保护食品的材料不能成为食物的污染来源。我国目前也对塑料餐具产品中毒害物质的迁移量进行了标准限定和要求^[4],但频发的风险预警通报和屡次出现的化学物质超标等问题表明塑料餐具产品仍存在较大的质量风险。此外,符合标准的塑料餐具在日常使用环境下是否“绝对安全”,还需要进一步的研究来论证。而我国目前仍缺乏可量化评估模型来探究塑料餐具中毒害物质迁移量和人体损伤的直接关系,缺乏基于用餐群体日常饮食习惯的标准指导。因此,本文以符合标准的、常用的塑料餐具-聚苯乙烯类(Polystyrene, PS)、聚丙烯类(Polypropylene, PP)、密胺、聚乙烯类(Polyethylene, PE)塑料餐具为研究对象,建立暴露评估模型,探究其是否存在不可接受的暴露风险以及风险的产生是否与用餐群体的使用习惯有关。

国外对于塑料食品接触材料及制品的安全性认识起步较早,研究多集中于同一材质塑料餐具的迁移特性^[5,6],一般是一种或两种餐具的某些毒害物质,比较零散。本文以市面常用的4种塑料餐具为对象,探究有机化合物、多环芳烃、增塑剂、抗氧化剂和紫外线吸收剂等5类(共33种)毒害物质可能对人体带来的伤害。近年来,越来越多的学者在基于国家通用迁移实验检测方法的基础上研究塑料餐具中毒害物质的迁移量^[7-9],还有部分学者研究塑料餐具中允许添加物质的低迁移量水平,或构建模型预测迁移量随温度、时间的变化趋势^[10-13],以探究不同毒害物质在不同暴露场景下的迁移情况,进一步从标准符合性的角度探讨塑料餐具的质量安全。这使本文受到启发,进而关注当塑料餐具中毒害物质迁移量符合标准时,在不同暴露场景(不同食品类型,不同使用习惯)下是否会对人体产生潜在伤害以及伤害的程度。

美国是最早开展有害物质暴露评估的国家^[14]。自19世纪90年代开始,美国国家环境保护局

(Environmental Protection Agency, EPA)研究出台了一系列暴露评估原则、程序和方法^[15,16],主要针对空气、地下水、河流以及食物中的化学污染(包括农药污染)。欧盟也是较早开展有害物质暴露评估的地区之一,并已经形成了一套较为完善的标准和法规体系。近年来,暴露评估模型被广泛应用于毒害物质在食品接触过程中的迁移及风险评估研究^[17-19],但我国对暴露评估的研究较多应用于环境污染、生态污染等方面^[20-22],对食品接触产品的暴露评估研究仍停留于理论及技术检测方法层面^[23,24],暂无成型的暴露评估模型,针对塑料餐具中毒害物质迁移的暴露评估研究则更少。用于暴露评估的最适方法因不同的因素而各异,主要有点评估、简单分布评估和概率分布评估三种方法^[25];从测量的类型上可分为直接测量和间接测量,从数据的使用上还可以分为接触点测量暴露、场景评价估计暴露和重建内剂量估计暴露。本文以常用的聚苯乙烯类、聚丙烯类、密胺、聚乙烯类塑料餐具为研究对象,采用间接测量、场景评价估计的方法建立可量化暴露评估模型来探究餐具内典型毒害物质迁移量和人体损伤的直接关系,评估其对人体的暴露风险。

1 材料与方法

1.1 材料

1.1.1 数据采集

本文采用文献检索的方法采集数据作为结果与分析的材料,考虑暴露评估的真实性和科学性,采集需满足以下条件:

- (1)文献关键词与本文研究对象相关;
- (2)文献检索网站具有一定权威性,如“中国知网”;
- (3)文献刊出年份在近十年以内;
- (4)文献数据需具有定量限、检出限、回收率;
- (5)文献中毒害物质迁移量符合我国食品接触材料及制品的限量要求(各类添加剂迁移量符合 GB 9685-2016 标准^[26],其他有机化合物迁移量符合 GB 4806.6-2016 标准^[27])。

1.1.2 数据获取

按照上节所述要求,本文在“Scopus”、“中国知网”等文献检索网站上,以“塑料容器”、“食物模拟物”、“塑料迁移”为关键词搜索近年来的相关文献,并根据标准符合性原则从2 905 篇文献中筛选

出 20 篇具有定量限、检出限、回收率的高质量检测数据。其中，中文文献 1 篇，英文文献 19 篇；四种塑料餐具在所选文献中的占比为：PS:PP:PE:密胺=15%:45%:45%:20%（部分文献研究两种餐具），共获取数据 76 条，具体检索文献及数据见

https://gitee.com/Mi_Manichii/Plastic-tableware。

1.2 暴露评估模型构建

1.2.1 构建风险传递路径

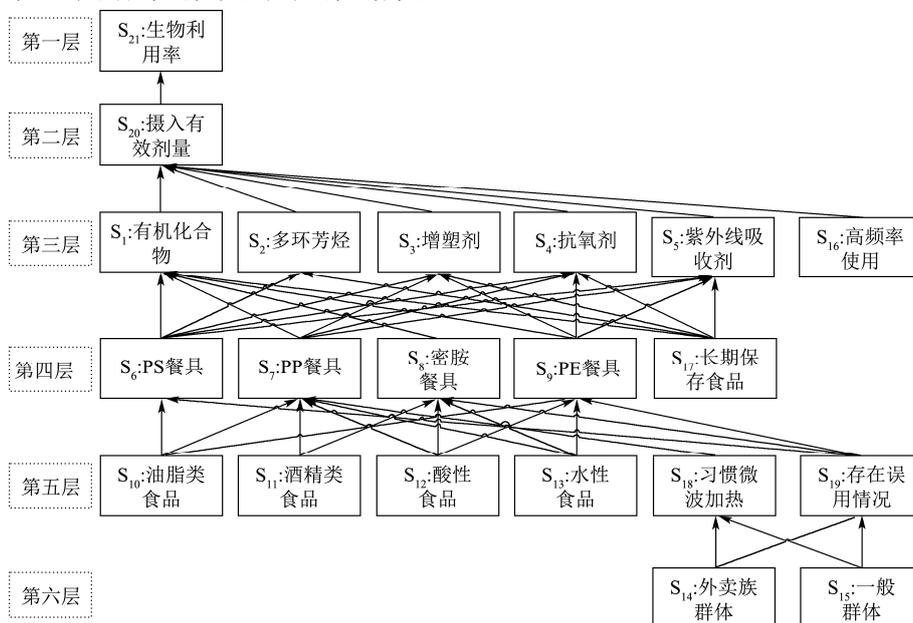


图 1 塑料餐具中典型毒害物质暴露影响 ISM 模型

Fig.1 ISM model of exposure effects of typical toxic substances in plastic tableware

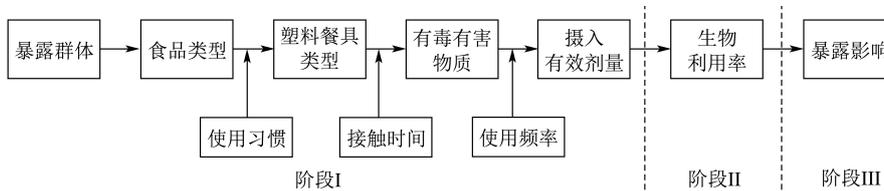


图 2 塑料餐具中毒害物质风险传递路径

Fig.2 Risk transmission path of toxic substances in plastic tableware

结合解释结构模型（Interpretative Structural Modelling, ISM）能够将子系统间复杂、抽象的关系转化成逻辑数学语言，量化描述各系统间的作用关系^[28]，本文通过确定影响因素间有向关系、构建邻接矩阵、计算可达矩阵、划分层次关系等 4 个步骤^[29,30]，利用 MATLAB 软件构建了餐具中毒害物质对人体暴露影响的 ISM 模型，如图 1 所示。

根据 ISM 模型得到毒害物质对人体的风险传递路径，将其划分为三个阶段，如图 2 所示。

(1) 阶段 I：摄入阶段。毒害物质经口腔进入人体的有效剂量由暴露群体（使用习惯、接触时间、接触频率）、食品类型、餐具类型共同决定。

(2) 阶段 II：利用阶段。毒害物质进入人体内循环系统后可以被人体利用产生暴露影响的过程。

(3) 阶段 III：暴露阶段。可反映毒害物质经过前两个阶段最终作用于人体的暴露影响水平。

1.2.2 暴露量计算模型

根据上节风险传递路径的三个阶段，结合不同的暴露场景和成熟的原理及方法^[31-33]，建立塑料餐具中典型毒害物质的暴露量计算模型。

(1) 摄入阶段

综合食品中毒害物质的潜在剂量、摄入率和毒害物质转换因子的计算式，得到餐具中毒害物质日均摄入量的计算式，如式（1）所示。

$$ADI = \frac{M \times IR \times CF \times f_c \times S}{V \times 10^6} \quad (1)$$

式中：

ADI——日均摄入量，mg/d；

M——毒害物质迁移量，mg/dm²；

IR——日均摄入率，mg/d；

CF——毒害物质转换因子，无量纲；

f_c——餐具加工因子，无量纲；

S ——食品与餐具的接触面积, dm^2 ;

V ——每日摄入食品总重量, kg 。

暴露群体日均饮水量参照中国成年居民日均饮水量统计分布表取平均值, 即 IR (男性) $=1.64 \times 10^6 \text{ mg/d}$, IR (女性) $=1.37 \times 10^6 \text{ mg/d}$; 饮食量参考中国人群饮食总摄入量推荐值, 即日均摄入量 $IR=1.06 \times 10^6 \text{ mg/d}$ ^[34]; 转换因子 CF 为消费因子 cf 和分布因子 f_i 的乘积^[35], 具体取值如表 1 所示; 假定餐具制作工艺对毒害物质

分布不存在影响, 即 f_c 取值为 1.00; S/V 取可预见情形下的最大值, 设定杯子类餐具的 S/V 为 $7.20 \text{ dm}^2/\text{kg}$ (本文设定杯子类餐具容量为 500.00 mL , 规格为(半径 \times 高) $30.00 \text{ mm} \times 185.00 \text{ mm}$, 计算距离杯口 10.00 mm 高度的塑料杯接触面积为 3.60 dm^2 , 则杯子类餐具的接触比 S/V 取值为 $7.20 \text{ dm}^2/\text{kg}$), 容器类餐具种类繁多, 无法具体估计其 S/V , 参照 GB 31604.1-2015 ^[36] 取值为 $6.00 \text{ dm}^2/\text{kg}$ 。

表 1 转换因子 CF 计算参考取值

Table 1 Reference value for calculation of conversion factor

类型	消费因子 cf	分布因子 f_i			
		水性食品	酸性食品	酒精类食品	脂肪类食品
PS 类塑料餐具	0.14	-	-	-	$1.00^{* \#}$
PP 类塑料餐具	0.35	0.69^*	$0.31^{* \#}$	$0.02^{\#}$	$0.67^{\#}$
密胺餐具	0.26	$0.13^{* \#}$	$0.67^{* \#}$	$0.20^{* \#}$	-
PE 类塑料餐具	0.25	0.67^*	0.33^*	-	$1.00^{\#}$

注: *表示 f_i 在杯子类餐具中的分布因子; #表示 f_i 在容器类餐具中的分布因子。

表 2 分配系数 K_{ow} 取值及肠道吸收率 f_{abs} 计算结果

Table 2 Distribution coefficient value K_{ow} and intestinal absorption calculation results f_{abs}

类别	迁移物	K_{ow}	f_{abs}	迁移物	K_{ow}	f_{abs}
有机化合物	乙苯	$1\ 412.54^*$	98.98%	异丙醇	1.91^*	81.62%
	苯乙烯	$1\ 584.89^*$	98.98%	乙酸乙酯	5.37^*	92.05%
	三聚氰胺	-	100.00%	乙酸丁酯	$66.07^{\#}$	98.41%
	甲醛	2.24^*	83.81%			
多环芳烃	萘	$3\ 890.45^{\#}$	99.00%	菲	$46\ 773.51^{\#}$	98.96%
	芘	$8\ 317.64^{\#}$	99.00%	苯并芘	$60\ 255.59^{\#}$	98.36%
紫外线吸收剂	UV-120	$3\ 162\ 277.66^*$	95.68%	UV-P	$15\ 848.93^*$	98.99%
	UV-531	$2\ 606\ 153.55^*$	96.25%	UV-328	$31\ 622\ 776.66^*$	95.68%
	UV-326	$16\ 982\ 436.52^*$	83.44%			
抗氧化剂	BHT	$14\ 791.08^{\#}$	98.99%	抗氧化剂 1035	-	100.00%
	BP	$2\ 884.03^{\#}$	98.99%	抗氧化剂 1076	-	100.00%
	抗氧化剂 168	$1\ 000\ 000.00^*$	97.93%	抗氧化剂 1330	-	100.00%
	抗氧化剂 245	-	100.00%	抗氧化剂 2246	$177\ 827.41^*$	97.11%
	抗氧化剂 565	-	100.00%	抗氧化剂 3025	-	100.00%
增塑剂	抗氧化剂 1010	-	100.00%			
	DMP	$134.90^{\#}$	98.71%	DIBP	$12\ 882.50^*$	98.99%
	DEP	$1\ 995.26^{\#}$	98.99%	ATBC	$19\ 952.62^*$	98.99%
	DBP	$52\ 480.75^{\#}$	98.95%	DEHP	$31\ 622\ 776.60^*$	73.47%

注: *参考自 ChemicalBook 数据库^[37]; #参考自中国化学品安全网数据库^[38]。

(2) 利用阶段

摄入量到利用量的转化与生物利用率有关, 生物利用率直接表现为肠道吸收率, 结合肠道吸收率计算式可得到塑料餐具中毒害物质进入人体后的日均利用量计算公式, 如公式 (2) 所示。

$$AUI=f_{abs} \times ADI \quad (2)$$

式中:

AUI ——日均利用量, mg/d ,

f_{abs} ——肠道吸收率, 无量纲, 与毒害物质分配系数 K_{ow} 有关。

直接测定毒害物质的 f_{abs} 难度较大, 本文参考文献^[32]的算法, 构建体外消化模型计算 f_{abs} 值, 如公式 (3) 所示。

$$f_{abs} = \frac{1}{1.11 \times 10^{-8} \times K_{ow} + \frac{0.41}{K_{ow}} + 1.01} \quad (3)$$

其中，由化学品安全技术说明书可以快速查阅到各类毒害物质 K_{ow} 的取值，对暂无可靠资料来源的物质，从暴露评估最严苛角度考虑，最大化该物质的肠道吸收率，即 f_{abs} 取 100%。 K_{ow} 取值和 f_{abs} 计算结果如表 2 所示。

(3) 暴露阶段

计算暴露量有利于评估毒害物质对人体的日均暴露程度，从而通过风险表征判断其对人体的健康风险。从暴露量衡量的范围划分，主要包括日均暴露量和长期慢性摄入量，计算公式如 (4) 和 (5) 所示。

$$ADE = \frac{AUI}{BW} \quad (4)$$

$$LADD = \frac{AUI \times ED}{BW \times LT} \quad (5)$$

式中：

ADE ——日均暴露量，mg/(kg·d)；

BW ——暴露群体的平均体重，kg；

$LADD$ ——长期慢性摄入量，mg/(kg·d)；

ED ——持续暴露时间，d；

LT ——暴露群体平均生命周期时间，d。

BW 取值参照中国成年居民平均体重统计分布表^[34]，即 BW (男性)=66.10 kg， BW (女性)=55.80 kg；参考现行退休年龄，根据暴露群体的行为习惯确定 ED 的值，即 ED (男性外卖族群体)=10 500 d， ED (女性外卖族群体)=9 250 d， ED (一般群体)=18 980 d； LT 取终生暴露时间 (70a)^[39]，即 $LT=25 550$ d。

1.2.3 风险表征模型

风险表征是基于暴露量计算模型的计算结果表征毒害物质可能对人体产生的暴露风险水平，并与安全水平作比较，判断风险是否在可接受范围内，同时对超过人体安全阈值的风险进行控制分析。风险表征一般有以下两种模式：

(1) 单一模式

单一模式下风险表征的核心是评估日均暴露影响下人体的暴露风险水平，计算式如 (6) 所示：

$$HI_i = \frac{ADE_i}{SI_i} \quad i = 1, 2, \dots, n \quad (6)$$

式中：

HI_i ——毒害物质 i 的危害指数，无量纲；

SI_i ——毒害物质 i 的安全限值，mg/(kg·d)。

综合 RfD ^[40]、 SF ^[41]、每日耐受摄入量 TDI 和 ADI 以及毒理学关注阈值 TTC ，基于克莱姆法得到 SI 取值，如表 3 所示。

表 3 毒害物质的 SI 参考取值

Table 3 SI reference value of toxic substances

类别	迁移物	参考来源	SI	迁移物	参考来源	SI	迁移物	参考来源	SI
有机化合物	乙苯	RfD [#]	0.10	甲醛	RfD [#]	0.20	乙酸丁酯	ADI [△]	6.00
	苯乙烯	TDI [#]	0.04	异丙醇	TTC I	0.18			
	三聚氰胺	TDI [△]	0.20	乙酸乙酯	ADI [#]	25.00			
多环芳烃	萘	TTC II	0.05	菲	TTC I	0.18			
	芘	RfD [#]	0.06	苯并芘	RfD [#]	3.00×10^{-4}			
增塑剂	DMP	ADI [△]	1.00	DBP	RfD [#]	0.01	DIBP	ADI [△]	9.80×10^{-2}
	DEP	RfD [#]	0.80	DEHP	RfD [#]	0.02	ATBC	TTC I	0.18
抗氧化剂	BHT	ADI [#]	0.30	抗氧化剂 565	ADI [△]	0.70	抗氧化剂 1330	ADI [△]	4.00×10^{-3}
	BP	TDI [#]	40.00	抗氧化剂 1010	TTC I	0.18	抗氧化剂 2246	ADI [△]	0.70
	抗氧化剂 168	ADI [△]	1.00	抗氧化剂 1035	TTC I	0.18	抗氧化剂 3025	ADI [△]	3.60×10^{-3}
	抗氧化剂 245	TTC I	0.18	抗氧化剂 1076	TTC I	0.18			
紫外线吸收剂	UV-120	ADI [△]	0.12	UV-326	ADI [△]	0.70	UV-328	ADI [△]	0.70
	UV-531	ADI [△]	0.03	UV-P	ADI [△]	0.70			

注：[#]参考自美国国家综合风险信息数据库^[42]；[#]参考自联合国食品添加剂联合专家委员会食品添加剂污染物数据库^[43]；[△]参考自欧洲食品安全局化学危害数据库 (OpenFoodTox)^[44]。

(2) 累积模式

累积模式是指毒害物质在长期慢性暴露的条件下对暴露群体的累积风险程度。参考美国环境保护署指导手册推荐的方法^[45]，将长期慢性暴露风险模型划分

为非致癌效应和致癌效应风险表征模型，计算式如下所示。

$$THQ = \frac{LADD}{RfD} \quad (7)$$

$$TTHQ = \sum THQ \quad (8)$$

$$AELCR = 1 - \exp(-LADD \times SF) \quad (9)$$

式中:

THQ——非致癌效应暴露风险, 无量纲;

TTHQ——非致癌效应总暴露风险, 无量纲;

RfD——口服参考剂量, mg/(kg·d);

AELCR——致癌效应暴露风险, 无量纲;

SF——斜率因子, [mg/(kg·d)]⁻¹。

RfD 取值参考表 3 中的 SI, 苯并芘的 SF 取 1.00 [mg/(kg·d)]⁻¹, 增塑剂邻苯二甲酸二(2-乙基己)酯 (Bis(2-ethylhexyl) phthalate, DEHP) 的 SF 取 1.40×10⁻² [mg/(kg·d)]⁻¹。

1.3 数据处理

1.3.1 数据预处理

文献中的实验对象涵盖多个国家和地区, 迁移实验标准存在差异, 为进一步研究, 本文基于我国食品接触材料及产品的迁移实验准则, 参考 GB 5009.156-2016 等标准^[46]要求, 对实验数据进行预处理, 处理方法如下:

(1) 将研究对象根据材质分为 PS、PP、PE 和密胺塑料餐具, 根据用途分为容器类和杯子类;

(2) 综合各国推荐使用食物模拟物种类, 将食物模拟液类型划分为水性、酸性、酒精类、油脂类, 如表 4 所示。

(3) 根据塑料餐具中添加剂用途、预期可释放的聚合物单体类型, 并参考 GB 9685-2016^[44]中添加剂特定迁移总量限量分组标准, 本研究中的典型毒害物质主要包括有机化合物、多环芳烃、增塑剂、抗氧化剂和紫外线吸收剂, 如表 5 所示。

(4) 对于未检测出的值用检测限/2 或定量限/2 替代;

(5) 采用暴露评估最严苛原则, 将迁移量最大值作为最终实验数据, 并以 “mg/dm²” 表示。

1.3.2 模型程序化

为便于暴露计算、风险表征结果可视化以及模型应用推广, 本文基于 MATLAB 内置 GUI 平台编写塑料餐具中毒害物质的暴露评估模型程序, 程序设计结构图和主界面如图 3、图 4 所示 (主要源代码见 https://gitee.com/Mi_Manchii/Plastic-tableware)。

表 4 食物模拟物划分依据

Table 4 Classification basis of food simulants

类别	食物模拟物	描述
水性食品	蒸馏水、10%乙醇	水、果蔬汁等水性饮料, 干湿米面制品, 表面不含油脂的蒸煮食品, 豆制品, 水果罐头, 果酱等
酸性食品	3%乙酸、4%乙酸	酸性及含有果浆的软饮料, 表面含有油脂的蒸煮食品, 果泥蜜饯, 卤菜, 奶油奶酪等
酒精类食品	15%乙醇、20%乙醇、50%乙醇 (酒精类食品)	酒精类饮料, 冰激凌, 豆浆, 酒心巧克力等酒精类糖果零食, 海鲜等
油脂类食品	50%乙醇 (乳制品)、95%乙醇、异辛烷、正己烷、植物油、Tenax TA	点心、面包、甜点等烘烤食品, 油炸食品, 含油脂的各类罐头食品, 坚果等

表 5 塑料餐具中典型毒害物质划分依据

Table 5 Classification basis of typical toxic substances in plastic tableware

类别	特定迁移物
有机化合物	乙苯、苯乙烯、三聚氰胺、甲醛、异丙醇、乙酸乙酯、乙酸丁酯
多环芳烃	茶、芘、菲、苯并芘
增塑剂	邻苯二甲酸二甲酯 (Dimethyl phthalate, DMP)、邻苯二甲酸二乙酯 (Diethyl phthalate, DEP)、邻苯二甲酸二正丁酯 (Dibutyl phthalate, DBP)、邻苯二甲酸二(2-乙基己)酯 (Bis(2-ethylhexyl) phthalate, DEHP)、邻苯二甲酸二异丁酯 (Diisobutyl phthalate, DIBP)、乙酰柠檬酸三丁酯 (Acetyl tributyl citrate, ATBC)、
抗氧化剂	2,6-二叔丁基-4-甲基苯酚 (Butylated Hydroxytoluene, BHT)、过氧化苯甲酰 (Benzoyl peroxide, BP)、抗氧化剂 168、抗氧化剂 245、抗氧化剂 565、抗氧化剂 1010、抗氧化剂 1035、抗氧化剂 1076、抗氧化剂 1330、抗氧化剂 2246、抗氧化剂 3025
紫外线吸收剂	UV-120、UV-531、UV-326、UV-P、UV-328

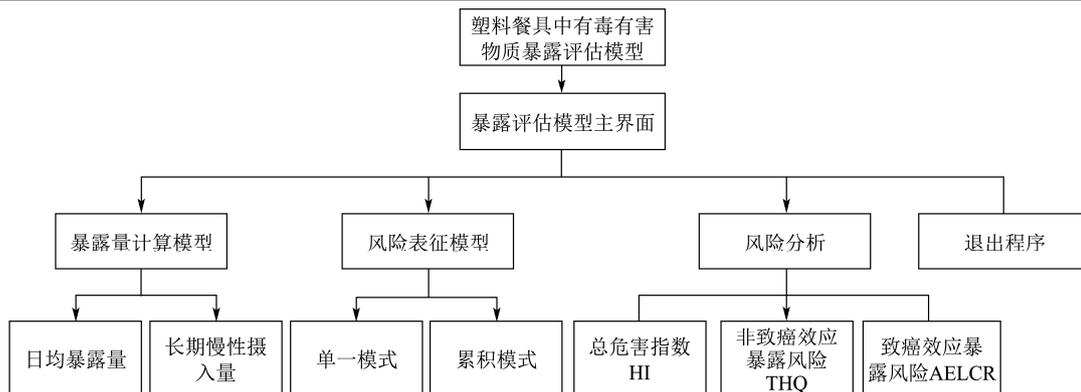


图3 塑料餐具中毒害物质暴露评估模型程序设计结构图

Fig.3 Program design structure diagram of toxic substance exposure assessment model for plastic tableware



图4 塑料餐具中毒害物质暴露评估模型主界面

Fig.4 Main interface of toxic substance exposure assessment model for plastic tableware

2 结果与讨论

基于上节获取的数据，利用暴露评估模型和程序评估塑料餐具对人体的暴露风险水平。由于不同材质塑料餐具在不同类型食物模拟物中的迁移特性不同，本文分别针对餐具类型和食品类型评估毒害物质在日均暴露影响下对人体的暴露风险-单一模式下的暴露风险。除此之外，用餐群体的使用习惯会长期影响其经口腔摄入毒害物质的剂量，这类影响不同于餐具类型和食品类型对人体的影响，它通常会伴随群体整个生命周期，因此本文针对使用习惯评估毒害物质在长期慢性暴露的条件下对人体的暴露风险-累积模式下的暴露风险。根据毒害物质对人体暴露影响的特点针对性地选择不同的风险表征模式，有利于明晰塑料餐具中毒害物质的暴露风险，进一步指导用餐群体的用餐选择。

单一模式下，毒害物质对人体暴露风险的评判标准根据 EPA 规定^[47]，当 $HI \geq 1.00$ 时，表明该毒害物质对人体存在不可接受的风险，可能危害到人体健康安全，当 $HI < 1.00$ 时，表明其对人体的暴露风险在可接受范围内，可认定其对人体健康安全没有危害。累积模式下，当 $THQ > 1.00$ 时，表明毒害物质对人体存在不可接受的非致癌效应暴露风险^[48]，当 $AELCR > 5.00 \times 10^{-5}$ 时，表明存在不可接受的致癌效应暴露风险^[49]。

2.1 不同类型塑料餐具的暴露评估

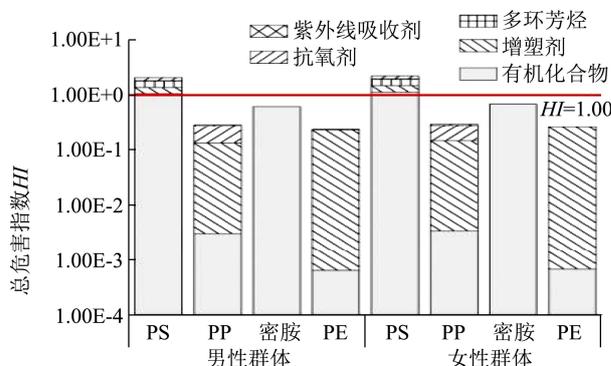


图5 四类塑料餐具对暴露群体的暴露风险水平

Fig.5 Exposure risk level of four types of plastic tableware to exposed groups

综合分析四类不同材质塑料餐具对男性、女性群体单一模式下的暴露风险水平，如图5所示。四类塑料餐具的总危害指数大小排序为（数值以女性群体为例）：PS ($HI=2.24E+00$) > 密胺 ($HI=6.94E-01$) > PP ($HI=2.98E-01$) > PE ($HI=2.66E-01$)，且 PS 类塑料餐具对男、女两类暴露群体的 HI 分别为 $2.09E+00$ 、 $2.24E+00$ ，均大于 1.00，对人体存在不可接受的暴露风险。

PS 类塑料餐具中有机化合物对男性和女性群体的 HI 分别为 $1.07E+00$ 、 $1.14E+00$ ，均大于 1.00，且占比最大，分别为 51.38%、50.88%。尽管其他毒害

物质的 HI 小于 1.00, 但人体在同时接触多类毒害物质时, HI 由于累加影响大于 1.00, 因此, 应当降低使用 PS 类塑料餐具的频率, 降低对人体的暴露风险。此外, PP 和 PE 类塑料餐具中毒害物质对两类暴露群体的影响类似, 总危害指数 HI 大小排序为: 添加剂 (增塑剂、紫外线吸收剂、抗氧化剂) > 有机化合物, 表明其主要风险来源于各类塑料添加剂, 应当警惕添加剂存在的潜在风险。密胺餐具的主要风险来源于有机化合物 (三聚氰胺、甲醛), 即原料, 应当警惕原料本身存在的潜在风险。

2.2 不同类型食品的暴露评估

塑料餐具接触不同食品时对人的危害指数 HI 如表 6 所示: 餐具在接触油脂类食品时暴露风险水平最高, 约为水性、酸性、酒精类食品 HI 的 5.25、2.57、5.75 倍, 且 HI 远大于 1.00, 表明暴露风险水平极高。此外, PS 类餐具接触油脂类食品时对两类群体的 HI 均大于 1.00, 存在不可接受的暴露风险, 这与 Cai 等^[6] 的发现-PS 类塑料餐具在橄榄油中迁移量最大一致。而其他三类餐具接触不同食品时的 HI 均小于 1.00, 风险水平较低, 但密胺餐具接触酸性食品时的 HI 是略小于 1.00, 也应当警惕这类餐具接触酸性食品。

2.3 不同使用习惯的累积暴露评估

2.3.1 不同食品贮存周期下的累积暴露评估

根据一般居民的习惯, 将贮存周期划分为短期 (3 d)、中期 (7 d)、长期 (30 d)。综合分析不同周期下塑料餐具对人体的非致癌效应总暴露风险水平, 如图 6 所示。风险水平随贮存周期变长呈现上升趋势, 最大值是长期贮存下 PS 类餐具对女性群体的 $TTHQ=5.81E+00$, 最小值是短期贮存下 PP 类餐具对

男性群体的 $TTHQ=1.81E-01$; 中/长期贮存下 PS 类和密胺餐具的 $TTHQ>1.00$, 均存在不可接受的非致癌效应暴露风险, 短期贮存下 PS 类餐具也存在不可接受的非致癌效应暴露风险。

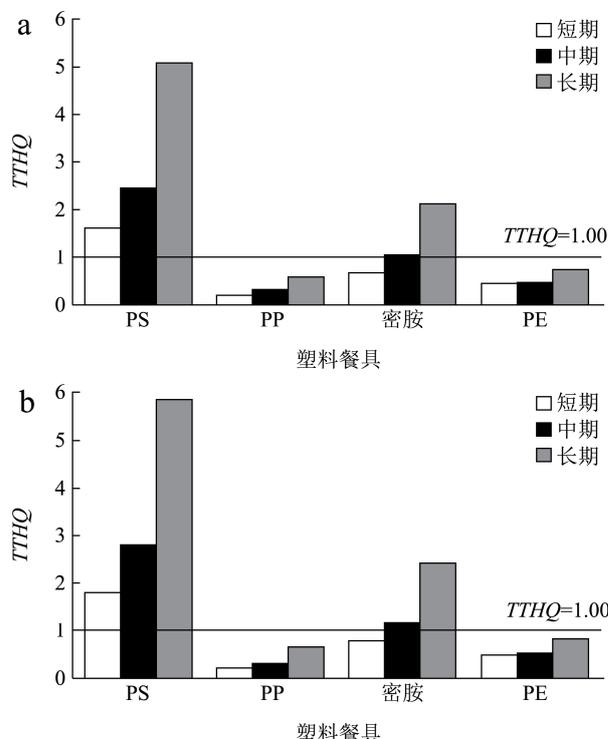


图 6 不同贮存周期下的非致癌效应总暴露风险水平

Fig.6 Total exposure risk levels of non-carcinogenic effects in different storage cycles

注: a: 男性群体; b: 女性群体。图 8~10 同。

除此之外, 评估具有致癌影响的苯并芘 (主要来自 PS 类塑料餐具) 和 DEHP (在 PS、PP、PE 塑料餐具中均检测到) 的致癌效应暴露风险, 其在不同贮存周期下的 $AELCR$ 计算结果如图 7、图 8 所示。

表 6 四种食品类型 HI 计算结果

Table 6 HI calculation results of four food types

暴露群体	塑料餐具	HI			
		水性食品	酸性食品	酒精类食品	油脂类食品
男性群体	PS				2.09E+00
	PP	2.25E-01	2.08E-01	3.98E-02	1.03E-01
	密胺	3.51E-01	7.50E-01	3.81E-01	
	PE	1.69E-03	9.65E-03		2.29E-01
	ΣHI	5.78E-01	9.69E-01	4.19E-01	2.42E+00
女性群体	PS				2.24E+00
	PP	2.92E-02	1.54E-01	4.55E-02	1.18E-01
	密胺	3.88E-01	8.39E-01	4.12E-01	
	PE	4.44E-06	5.81E-05		2.61E-01
	ΣHI	4.16E-01	9.94E-01	4.58E-01	2.62E+00

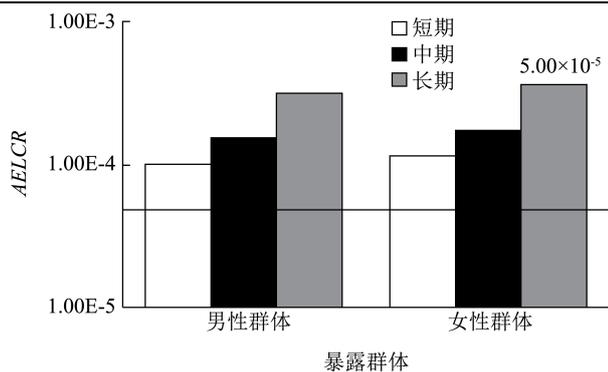


图7 苯并芘在不同贮存周期下的致癌效应暴露风险水平

Fig.7 Exposure risk levels of carcinogenic effects of benzo[a]pyrene in different storage cycles

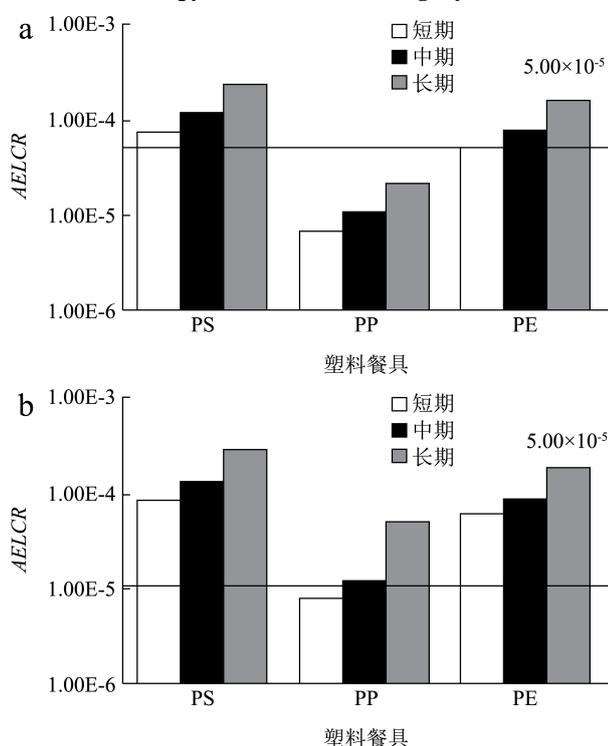


图8 DEHP 在不同贮存周期下的致癌效应暴露风险水平

Fig.8 Exposure risk level of carcinogenic effects of DEHP in different storage cycles

在不同周期下, 苯并芘的 $AELCR$ 最大值是长期贮存下对女性群体的 $AELCR=3.67E-04$, 最小值是短期贮存下对男性群体的 $AELCR=1.01E-04$, 均高于 5.00×10^{-5} , 表明苯并芘对男性和女性暴露群体均存在不可接受的致癌效应暴露风险。在三类塑料餐具中 DEHP 对两类暴露群体的 $AELCR$ 大小排序为: $AELCR(PS) > AELCR(PE) > AELCR(PP)$, 且 PS 和 PE 类餐具存在不可接受的致癌效应暴露风险。从这两张图中均可以看出, $AELCR(\text{男性}) < AELCR(\text{女性})$, 主要因为在日均摄入量相当的情况下, 女性体重更轻, 使得女性的单位体重长期慢性摄入量高于男性, 致癌效应暴露风险水平更高。

综合分析塑料餐具在不同贮存周期下对人体的非致癌和致癌效应总暴露风险水平可以得到: PS 类餐具均具有最高的暴露风险, PP 类餐具的暴露风险最低且在可接受范围内。因此, 推荐使用 PP 类餐具贮存食品, 避免使用 PS、密胺、PE 类餐具贮存食品。

2.3.2 不同微波炉加热时间下的累积暴露评估

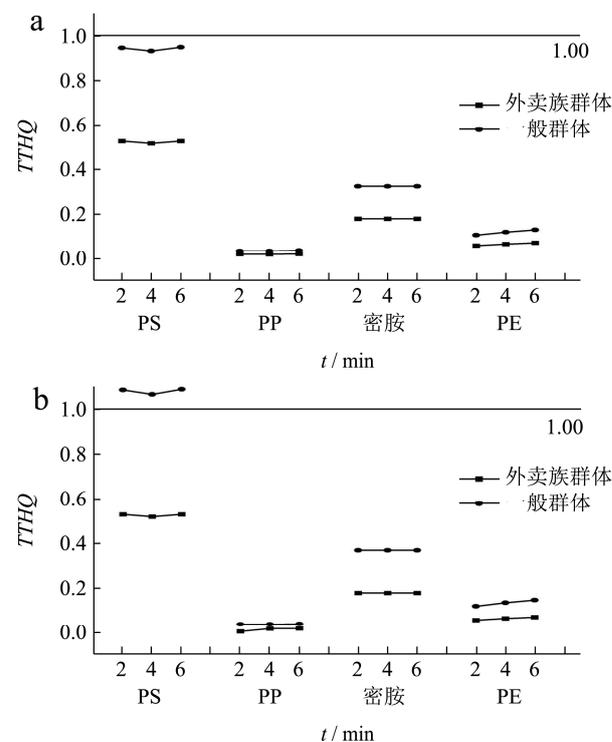


图9 不同微波炉加热时间下的非致癌效应总暴露风险水平

Fig.9 Total exposure risk level of non-carcinogenic effects in different microwave oven heating time

综合分析暴露群体在微波炉加热下使用餐具的非致癌效应总暴露风险水平, 如图9所示。风险水平整体上与加热时间呈正相关, 最大值是加热 6 min 下 PS 类餐具对女性一般群体的 $TTHQ=1.09E+00$ 。其中, PS 类餐具对女性一般群体存在不可接受的非致癌效应暴露风险, 不适用于微波炉加热, PP、密胺、PE 类餐具的风险在可接受范围内。除此之外, 评估其致癌效应暴露风险, 如图10所示。使用 PS、PP、PE 类塑料餐具用于微波炉加热时, 整体上 DEHP 的 $AELCR$ 大小排序为: $AELCR(PS) > AELCR(PE) > AELCR(PP)$, 这与非致癌效应暴露风险水平高低排序类似, 其中 PS 类餐具对女性一般群体在不同加热时间下的 $AELCR$ 分别为 $5.12E-5$ 、 $5.04E-5$ 、 $5.15E-5$, 均大于 5.00×10^{-5} , 存在不可接受的致癌效应暴露风险。不难看出, 女性一般群体面对着最大的暴露风险, 这是因为除了女性体重较男性轻之外, 一般群体的持续暴露时间也较外卖族群体长。

就目前而言, 国内外关于塑料餐具的暴露评估仍

然较少,且研究对象、评估模型多样,尤其是饮食情况、人体参数较为复杂,导致数据结果难以比较。如:Cai等^[6]的研究对象是PS、PP、PET速食包装容器毒害物质总迁移率而不是某个塑料餐具或某种毒害物质迁移率,Joung等^[50]的暴露评估模型中得到的最后结果是每日摄入量,而不是危害指数。虽然数据不易比较,但规律基本是一致的。如:Dong等^[17]得出邻苯二甲酸酯的暴露风险水平与接触塑料包装食品的频率呈正相关,不同塑料材料中邻苯二甲酸酯暴露量存在差异-即毒害物质暴露风险水平与接触频率成正相关、不同塑料材料的毒害物质暴露量不同。Cirillo等^[51]发现在PET盘中包装的餐食随着储存时间的延长,污染物水平显著增加,即风险水平与食物储存时间成正相关。

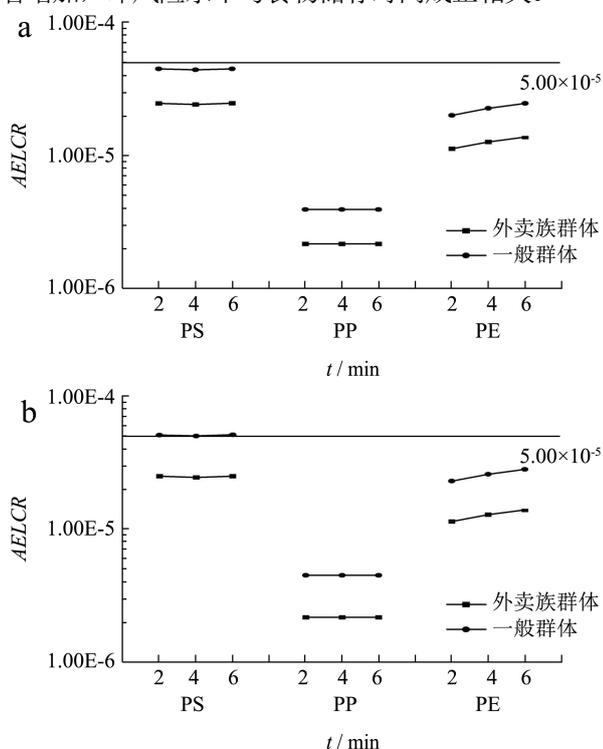


图10 不同微波炉加热时间下的DEHP致癌效应暴露风险水平
Fig.10 Exposure risk level of carcinogenic effect of DEHP in different microwave oven heating time

3 结论

四类塑料餐具按毒害物质总危害指数排序:PS>密胺>PP>PE,且PS类餐具对人体存在不可接受的暴露风险,我国相关标准仍需完善。除此之外,在餐具使用过程中,不同类型食品、不同使用习惯对人体产生的风险不同,在一定情况下还会对人体产生不可接受的风险,消费者不仅要重视餐具的质量,还要重视餐具的使用。生物监测评估可对人体暴露影响进行直接分析,但实验条件苛刻,在此方面较少应用,若有条件,以后的研究可以向此方向深入。

参考文献

- [1] 杨三保.浅谈食品包装材料对食品的危害[J].肉类工业,2013,6:33-35
YANG Sanbao. The harm of food packaging materials to food [J]. Meat Industry, 2013, 6: 33-35
- [2] 应晓虹.食品接触材料中有害物质迁移行为的研究[D].杭州:浙江大学,2012
YING Xiaohong. Research of migrating behavior of harmful substance in food contact materials [D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2012
- [3] Sauer U G, Reid K. Draft E U commission implementing regulation on applications for the authorisation of genetically modified food and feed [J]. Alternatives to Laboratory Animals: ATLA, 2012, 40(3): 183-185
- [4] 姜丹丹.塑料食品接触材料与制品标准体系解读[J].中国食品药品监管,2019,3:53-55
JIANG Dandan. Interpretation of standard system for plastic food contact materials and products [J]. China Food & Drug Administration Magazine, 2019, 3: 53-55
- [5] Poovarodom N, Junsrisuriyawong K, Sangmahamad R, et al. Effects of microwave heating on the migration of substances from melamine formaldehyde tableware [J]. Food Additives & Contaminants, 2014, 31(9): 1616-1624
- [6] Cai R Y. Effect of microwave heating on the migration of additives from PS, PP and PET container into food simulants [D]. Rochester: Rochester Institute of Technology, 2013
- [7] Mariusz M A R Ć. Emissions of selected monoaromatic hydrocarbons as a factor affecting the removal of single-use polymer barbecue and kitchen utensils from everyday use [J]. Science of The Total Environment, 2020, 720: 137485
- [8] Verónica Garcíaibarra, Perfecto Paseiro Losada, Raquel Sendón, et al. Identification of intentionally and non-intentionally added substances in plastic packaging materials and their migration into food products [J]. Analytical & Bioanalytical Chemistry, 2018, 410(16): 3789-3803
- [9] 谢利,贾大鹏,慈继豪,等.可加热塑料食品包装中VOCs分析[J].包装工程,2014,35(1):34-37,68
XIE Li, JIA Dapeng, CI Jihao, et al. Analysis of volatile organic compounds in heatable plastic food packages [J]. Packaging Engineering, 2014, 35(1): 34-37, 68
- [10] Naziruddina M A, Sulaimanbc R, Lim S A, et al. The effect of fat contents and conditions of contact in actual use on styrene monomer migrated from general-purpose polystyrene

- into selected fatty dishes and beverage [J]. *Food Packaging and Shelf Life*, 2020, 23: 100461
- [11] Song X C, Wrona M, Nerin C, et al. Volatile non-intentionally added substances (NIAS) identified in recycled expanded polystyrene containers and their migration into food simulants [J]. *Food Packaging and Shelf Life*, 2019, 20: 100318
- [12] Chang Y, Kang K, Park S J, et al. Experimental and theoretical study of polypropylene: antioxidant migration with different food simulants and temperatures [J]. *Journal of Food Engineering*, 2018, 244: 142-149
- [13] Wang J, Liu X, Wei Y. Magnetic solid-phase extraction based on magnetic zeolitic imazolate framework-8 coupled with high performance liquid chromatography for the determination of polymer additives in drinks and foods packed with plastic [J]. *Food Chemistry*, 2018, 256: 358-366
- [14] USEPA. Risk assessment guidance for superfund volume human health evaluation manual (part A) [R]. Washington D C: Office of Emergency and Remedial Response EPA, 1989
- [15] EPA/630/R-92/001, Framework for Ecological Risk Assessment [S]
- [16] EPA/630/R-95/002F, Guidelines for Ecological Risk Assessment [S]
- [17] DONG Ruihua, ZHANG Han, ZHANG Meiru, et al. Association between phthalate exposure and the use of plastic containers in Shanghai adults [J]. *Biomedical and Environmental Sciences*, 2017, 30(10): 727-736
- [18] Verónica García Ibarra, Raquel Sendón, Juana Bustos, et al. Estimates of dietary exposure of Spanish population to packaging contaminants from cereal-based foods contained in plastic mater [J]. *Food and Chemical Toxicology*, 2019, 128: 180-192
- [19] 郭海倩,吴晓红,李晨,等.基于分层理念的食品包装材料迁移物暴露评估方法[J].*中国塑料*,2019,33(6):106-111
GUO Haiqian, WU Xiaohong, LI Chen, et al. Exposure assessment of substances migrated from food packaging materials based on tiered approach [J]. *China Plastics*, 2019, 33(6): 106-111
- [20] 方凤满,谢宏芳,王海东,等.芜湖市土壤和地表灰尘中 As 含量分布及健康风险评估[J].*环境化学*,2010,29(5):880-883
FANG Fengman, XIE Hongfang, WANG Haidong, et al. Concentrations and health risk assessment of arsenic in soil and road dust in Wuhu urban [J]. *Environmental Chemistry*, 2010, 29(5): 880-883
- [21] 董峰光,王朝霞,宫春波,等.烟台市市售谷物及其制品重金属污染状况及暴露风险评估[J].*职业与健康*,2017,33(6): 756-759
DONG Fengguang, WANG Zhaoxiao, GONG Chunbo, et al. Pollution and risk assessment of exposure to heavy metals in cereals and cereal products in Yantai market [J]. *Occupation and Health*, 2017, 33(6): 756-759
- [22] 谷传玲,王俊平,王硕.饮用水中重金属的暴露评估[J].*食品工业科技*,2011,11:374-376
GU Chuanling, WANG Junping, WANG Shuo. Exposure assessment for heavy metals in drinking water [J]. *Science and Technology of Food Industry*, 2011, 11: 374-376
- [23] 刘伟,毛伟峰,赵榕,等.我国饮料食品接触材料暴露评估参数构建研究[J].*中国食品卫生杂志*,2019,31(2):159-162
LIU Wei, MAO Weifeng, ZHAO Rong, et al. Study on the establishment of exposure assessment parameters of food contact materials for use in beverage packaging of China [J]. *Chinese Journal of Food Hygiene*, 2019, 31(2): 159-162
- [24] 马鑫,隋海霞,杜振霞.食品接触用聚对苯二甲酸乙二醇酯材料回收再利用风险评估方法学进展[J].*中国食品卫生杂志*,2019,31(6):592-597
MA Xin, SUI Haixia, DU Zhenxia. Advances in risk assessment methodology for recycling polyethylene terephthalate materials for food contact [J]. *Chinese Journal of Food Hygiene*, 2019, 31(6): 592-597
- [25] 王向未,仇厚援,张志恒,等.食品中膳食暴露评估模型研究进展[J].*浙江农业学报*,2012,24(4):733-738
WANG Xiangwei, QIU Houyuan, ZHANG Zhiheng, et al. Diet exposure assessment methods in food [J]. *Acta Agriculturae Zhejiangensis*, 2012, 24(4): 733-738
- [26] GB 9685-2016,食品安全国家标准 食品接触材料及制品用添加剂使用标准[S]
GB 9685-2016, National Food Safety Standard: Standard for Use of Additives for Food Contact Materials and Products [S]
- [27] GB 4806.6-2016,食品安全国家标准 食品接触用塑料树脂[S]
GB 4806.6-2016, National Food Safety Standard: Resin for Food Contact Plastics [S]
- [28] Sarikhani Yaser, Shojaei Payam, Rafiee Mohammad, et al. Analyzing the interaction of main components of hidden curriculum in medical education using interpretive structural modeling method [J]. *BMC Medical Education*, 2020, 20(1): 176-185
- [29] 章文杰,解武杰.ISM 模型在风险结构分析中的应用[J].*商业研究*,2002,239(3):1-3
ZHANG Wenjie, XIE Wujie. The application of ISM in risks structure analysis [J]. *Commercial Research*, 2002, 239(3):

- 1-3
- [30] 刘鑫萌.建筑施工领域不安全行为管控研究[D].吉林:吉林建筑大学,2019
- LIU Xinmeng. Research on the management and control of unsafe behavior in the field of construction [D]. Jilin: Jilin Jianzhu University, 2019
- [31] Derya Biryol, John Wambaugh, Katherine Phillips, et al. High-throughput dietary exposure predictions for chemical migrants from food contact substances for use in chemical prioritization [J]. *Environment International*, 2017, 108: 185-194
- [32] Isabel A O'connor, Mark A J Huijbregts, Ad M J Ragas, et al. Predicting the oral uptake efficiency of chemicals in mammals: Combining the hydrophilic and lipophilic range [J]. *Toxicology and Applied Pharmacology*, 2013, 266: 150-156
- [33] Ilyasova Dora, Schwartz Gary G. Cadmium and renal cancer [J]. *Toxicology & Applied Pharmacology*, 2005, 207(2): 179-186
- [34] 段小丽.中国人群暴露参数手册[M].北京:中国环境出版社, 2013:20,54
- DUAN Xiaoli. Exposure Factors Handbook of Chinese Population [M]. Beijing: China Environmental Press, 2013: 20, 54
- [35] O'Connor I A, Huijbregts M A J, Ragas A M J, et al. Predicting the oral uptake efficiency of chemicals in mammals: Combining the hydrophilic and lipophilic range [J]. *Toxicology and Applied Pharmacology*, 2013, 266: 150-156
- [36] GB 31604.1-2015,食品接触材料及制品迁移试验通则[S]
- GB 31604.1-2015, General Rules for Migration Test of Food Contact Materials and Products [S]
- [37] 化学品MSDS查询系统[DB].北京:北京西林布克网络科技有限公司
- Chemicalbook. Chemical MSDS query system [DB]. Beijing: Beijing Chemicalbook Network Technology Co Ltd
- [38] 中国化学品安全网.危化品应急处置方案查询系统[DB].青岛:青岛诺诚化学品安全科技有限公司
- NRCC. Query system for emergency disposal plan of hazardous chemicals [DB]. Qingdao: Qingdao Nuocheng Chemical Safety Technology Co Ltd
- [39] USEPA. Exposure factors handbook 2011 edition (Final) [R]. Washington DC: United States Environmental Protection Agency, 2011
- [40] USEPA. A review of the reference dose and reference concentration processes [R]. Washington DC: United States Environmental Protection Agency, Risk Assessment Forum, 2002
- [41] USEPA. Guidelines for carcinogen risk assessment [R]. Washington DC: United States Environmental Protection Agency, Risk Assessment Forum, 2005
- [42] USEPA. Integrated risk information system(IRIS) [DB]. Washington DC: United States Environmental Protection Agency
- [43] JECFA. Food additives contaminants JECFA database [DB]. Rome: Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives
- [44] EFSA. Chemical hazards database: OpenFoodTox [DB]. Parma: European Food Safety Authority
- [45] USEPA. Human health risk assessment protocol (HHRAP) for hazardous waste combustion facilities [R]. Washington DC: United States Environmental Protection Agency, 2005
- [46] GB 5009.156-2016,食品安全国家标准 食品接触材料及制品迁移试验预处理方法通则[S]
- GB 5009.156-2016, National Food Safety Standard: General Rules for Pretreatment Methods of Migration Test of food Contact Materials and Products [S]
- [47] Committee on the Health Risks of Phthalates, National Research Council. Phthalates and cumulative risk assessment: the tasks ahead [J]. *Phthalates & Cumulative Risk Assessment the Task Ahead*, 2008, 23(2): 196-217
- [48] Paustenbach D J. Human and Ecological Risk Assessment: Theory and Practice [M]. New York: John Wiley and Sons, 2002: 85-150
- [49] 王彩霞,刘宇,郭蓉,等.陕西生鲜肉类中重金属污染状况调查及健康风险评估研究[J].*现代预防医学*,2018,45(1):35-39
- WANG Caixia, LIU Yu, GUO Rong, et al. Dietary exposure and health risk assessment of heavy metals in meat, Shaanxi [J]. *Modern Preventive Medicine*, 2018, 45(1): 35-39
- [50] Joung Boon Hwang, Subi Lee, Jinhwa Yeum, et al. HS-GC/MS method development and exposure assessment of volatile organic compounds from food packaging into food simulants [J]. *Food Additives & Contaminants: Part A*, 2019, 36(10): 1573-1583
- [51] Cirillo Teresa, Fasano Evelina, Esposito Francesco, et al. Study on the influence of temperature, storage time and packaging type on di-n-butylphthalate and di(2-ethylhexyl)phthalate release into packed meals [J]. *Food Additives & Contaminants. Part A, Chemistry, Analysis, Control, Exposure & Risk Assessment*, 2013, 30(2): 403-411