

- KJ Hansen, PD Jones and JP Giesy: Perfluorooctane Sulfonate in Fish-Eating Water Birds Including Bald Eagles and Albatrosses. *Environ Sci Technol* 35, 3065-3070 (2001)
- 3) K Kannan, J Koistinen, K Beckmen, T Evans, JF Gorzelany, KJ Hansen, PD Jones, E Helle, M Nyman and JP Giesy: Accumulation of Perfluorooctane Sulfonate in Marine Mammals. *Environ Sci Technol* 35, 1593-1598 (2001)
- 4) K Kannan, J Koistinen, K Beckmen, T Evans, JF Gorzelany, KJ Hansen, PD Jones, E Helle, M Nyman and JP Giesy: Accumulation of Perfluorooctane Sulfonate in Marine Mammals. *Environ Sci Technol* 35, 1593-1598 (2001)
- 5) K Kannan, KJ Hansen, TL Wade and JP Giesy: Perfluorooctane Sulfonate in Oysters, *Crassostrea virginica*, from the Gulf of Mexico and the Chesapeake Bay, USA. *Arch Environ Contam Toxicol* 42, 313-318 (2002)
- 6) S Taniyasu, K Kannan, Y Horii, N Hanari and N Yamashita: A Survey of Perfluorooctane Sulfonate and Related Perfluorinated Organic Compounds in Water, Fish, Birds, and Humans from Japan. *Environ Sci Technol* 37, 2634-2639 (2003)
- 7) GW Olsen, KJ Hansen, LA Stevenson, JN Burris and JH Mandel: Human Donor liver and serum concentrations of perfluorooctanesulfonate and other perfluorochemicals. *Environ Sci Technol* 37, 888-891 (2003)
- 8) FD Gilliland and JS Mandel Mortality among employees of a perfluorooctanoic acid production plant. *J Occup Med* 35, 950-954 (1993)
- 9) Ca Moody, GN Hebert, SH Strauss and JA Field: Occurrence and persistence of perfluorooctanesulfonate and other perfluorinated surfactants in groundwater at a fire-training area at Wurtsmith Air Force Base, Michigan, USA. *Environ Monit* 5, 341-345 (2003)
- 10) CA Moody, JW Martin, WC Kwan, DCG Muir and SA Mabury: Monitoring Perfluorinated Surfactants in Biota and Surface Water Samples Following an Accidental Release of Fire-Fighting Foam into Etobicoke Creek. *Environ Sci Technol* 36, 545-551 (2002)
- 11) KJ Hansen, HO Johnson, JS Eldrige, JL Butenhoff and LA Dick: Quantitative characterization of trace levels of PFOS and PFOA in the Tennessee River. *Environ Sci Technol* 36, 1681-1685 (2002)
- 12) MD Johnson, JT Wolter, GE Colaizy, PA Rethwill, RM Nelson: Quantification of Perfluorooctanoate and Perfluorooctanesulfonate in Human Serum using ion-pair extraction and high performance liquid chromatography-thermospray mass spectrometry with automated sample preparation. St. Paul, MN: 3M Environmental Laboratory (1996)
- 13) JW Martin, DCG Muir, CA Moody, DA Ellis, WC Kwan, KR Solomon and SA Mabury: Collection of Airborne Fluorinated Organics and Analysis by Gas Chromatography/Chemical Ionization Mass Spectrometry. *Anal Chem* 74, 584-590 (2002)
- F. 健康危険情報
特になし。
- G. 研究発表
1. 論文発表
1. Saito N, Sasaki K, Nakatome K, Harada K, Yoshinaga T, Koizumi A (2003): Perfluorooctane sulfonate concentration in surface water in Japan. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.* 45: 149-158
2. Saito N, Harada K, Inoue K, Sasaki K, Yoshinaga T, Koizumi K (2004): Perfluorooctanoate and perfluorooctane sulfonate concentration in surface water in Japan. *J Occup. Health.* 46: 49-59
3. Sasaki K, Harada K, Saito N, Tsutsui T, Nakanishi S, Tsuzuki H, Koizumi A (2003): Impact of airborne perfluorooctane sulfonate on the human body burden and the ecological system. *Bull. Environ. Contam. Toxicol.* 71: 408-413
4. Harada K, Saito N, Sasaki K, Inoue K, Koizumi K, (2003): Perfluorooctane sulfonate contamination of drinking water in the Tama River, Japan: Estimated effects on resident serum levels., *Bull. Environ. Contam. Toxicol.* 71, 31-36.
2. 学会発表
- 佐々木和明, 齋藤憲光, 金一和, 原田浩二, 小泉昭夫: 環境水中の PFOS の分析. 第 12 回環境科学討論会. 新潟市, 2003 年 6 月 25-27 日
- 齋藤憲光, 八重樫香, 佐々木和明, 原田浩二, 小泉昭夫: 環境水中のパーフルオロオクタンスルホ

ネート（PFOS）の分析. 第62回日本産業衛生学会東北地方会. 秋田市, 2003年7月25-26日

佐々木和明, 齋藤憲光, 金一和, 原田浩二, 小泉昭夫, 2003 : 環境試料中のPFOSの分析. 第12回環境化学討論会, 新潟市, 2003年6月25日-27日

中西貞博, 都築英明, 筒井剛毅, 佐々木和明, 齋藤憲光, 原田浩二, 小泉昭夫, 2003 : 大気エアゾル中のPFOS濃度. 第44回大気環境学会年会, 京都市, 2003年9月24日-26日

Yi-he Jin, Kazuaki Sasaki, Norimitsu Saito, Kouji Harada, Akio Koizumi, 2003 : Current Perfluorooctane Sulfonate Pollution in Aquatic Environment of China. The 6th Annual Meeting of Japan Society of Endocrine Disrupters Research, Sendai, 2003年12月2日-3日.

H. 知的財産の出願・登録状況
特になし。

厚生労働科学研究費補助金（化学物質リスク研究事業）
分担研究報告書

Perfluorooctane sulfonate および Perfluorooctanoic acid の処理に関する研究

分担研究者 藤井 滋穂 京都大学大学院工学研究科附属環境質制御研究センター
教授

研究要旨：本研究では、PFOS・PFOA の処理方法として吸着に着目し、その処理性の基本特性を検討した。まず PFOS・PFOA の簡易定量方法として、吸光度、蛍光度、全有機炭素（TOC）の適用を検討した結果、TOC 計での PFOS・PFOA の定量が可能であることを見出した。PFOS・PFOA の吸着特性については、比較有機物としてビタミン B₁₂ を、吸着材として活性炭を用いて回分実験により検討した。活性炭により PFOS・PFOA が短時間・高効率で吸着されることを見出した。さらに、回分実験結果を通水ろ過装置などの実処理設計へ適用するために理論展開を行った。

A. 研究目的

本研究では、PFOS・PFOA の処理方法として吸着処理に着目し、PFOS・PFOA の基本的吸着特性を検討するとともに、その結果から装置化のための手法を導くことを目的とした。

B. 研究方法と C. 研究結果

1) PFOS・PFOA の簡易定量方法の検討

吸着特性把握実験では、多数の吸着対象物質の濃度測定が必要となり、その簡易な濃度測定方法が望まれる。そこで、吸光度、蛍光度、TOC による測定を検討した。PFOS (Wako 508-53921 : perfluorooctanesulfonic acid potassium salt)、PFOA (Wako 163-09542 : perfluorooctanoic acid) をそれぞれ精製水に溶かし、吸光度計 (UV-2500PC、スキャンモード)、蛍光度計 (F-4500、スキャンモード) で測定した。その結果、各々濃度 52、160 mg/L の溶液に対して、吸光度 (波長 200~800 nm) では 0.03 以下、蛍光度 (励起波長 200~250 nm) はバックグラウンドレベルで、実質的に測定不可能であった。

一方、同溶液について TOC を測定し、図 1 に示す PFOS、PFOA と TOC 値との関係を得た。TOC の分析では TOC 5000A (SHIMADZU) を使用した。PFOS、PFOA とともに TOC 2~20 mg/L でほぼ線形の関係が見られた。また、理論値 (TOC/PFOS (or

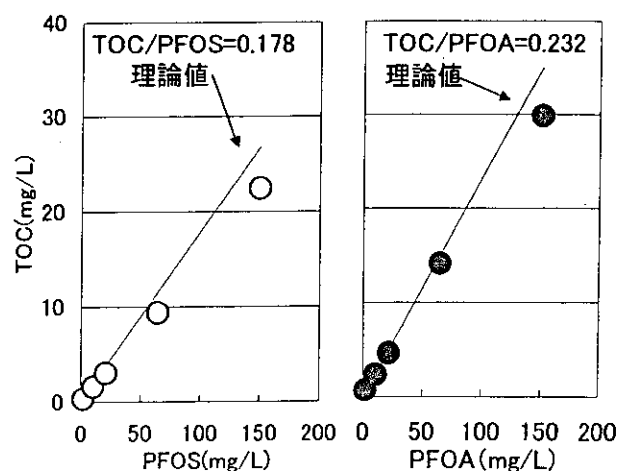


図1 PFOS・PFOA濃度とTOCとの関係

PFOS)) と比較した結果、ほぼ測定値が一致した。すなわち、PFOS・PFOA とも TOC での分解条件 (680℃) で、その炭素はほぼ CO₂ に分解され、TOC でその定量が概ね可能であ

表1 活性炭による吸着バッチ実験の条件一覧

Run	活性炭粒径 (μm)	対象物質	初期濃度 (mg/L)	測定方法	活性炭量 (g/L)					採取時間 (hour)					
					2	5	13	36		1	2	4	7	8	24
Run 1	250~500	ビタミン B_{12}	50.0	吸光度計	2	5	13	36		1	2	4	7	8	24
Run 2	500~1000		20.0		1	2	3	9	29	1	2	4	7	10	
Run 3			31.3		2	3	8	16	25	2	6	12	23	47	
Run 4	1180~1400	PFOS	38.6	TOC計	1	4	12			1	6	19	25	50	
Run 5		PFOA	97.8		1	4	11			1	6	19	25	50	
Run 6		PFOS	29.5		1	4	12	18		6	20	24	51		
Run 7		PFOA	95.5		1	4	11	17		6	20	24	51		

振とう速度120rpm、温度25°C、pH7.0

ることが分かった。よって、本吸着実験では TOC により、PFOS、PFOA 濃度を測定することとした。

2)活性炭による吸着回分実験

PFOS・PFOA の吸着実験を、吸着剤として活性炭を、比較有機物としてビタミン B_{12} を用いて回分条件で表 1 に示す実験条件で実施した。Run 1~3 ではビタミン B_{12} を、Run 4,6 では PFOS を、Run 5,7 では PFOA を対象に吸着バッチ実験を行った。本実験では、粒状活性炭 (Wako 030-02125) を粉碎し、ふるいにより粒径 250~500 μm 、500~1000 μm 、1180~1400 μm の活性炭を作成した。活性炭吸着試験物質 (ビタミン B_{12} 、PFOS、PFOA) の初期濃度は Run ごとに異なるが、振とう速度、温度、pH については 120 rpm、25°C、7.0 で一定とした。また、各 Run についてさらに 4~5 通りの活性炭投入量およびサンプリング時間を設けた。

最初に対象物質溶液 (10 mL)、活性炭懸濁液 + 精製水 (10 mL)、リン酸緩衝液 (0.061MK H_2PO_4 、0.031MK $_2\text{HPO}_4$) (10 mL) 合計 30 mL を 51 mL 容量の BOD 瓶に入れ、恒温振とう器 (EYELA UNI Thermo shaker NTS-1300s) により、25°C、pH7、振とう速度 120rpm の条件で実験を開始した。BOD 瓶は各 Run で 20 セット用意し、活性炭懸濁液添加量を変化させた 3~5 系列各 4~6 本を作成

した。なお、活性炭懸濁液は上記のフルイ分け活性炭を精製水中に加え、それを吸引、脱気して懸濁状態としたものを用いた。

実験装置概要を図 2 に示す。振とう開始後、一定間隔ごとにサンプルを採取し、ろ過後、活性炭乾燥重要、ろ液の PFOS、PFOA 濃度を TOC 計 (5000A SHIMADZU) で、ビタミン

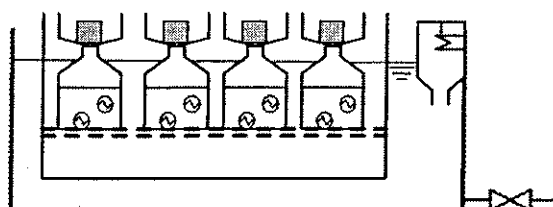


図2 吸着回分実験の概要

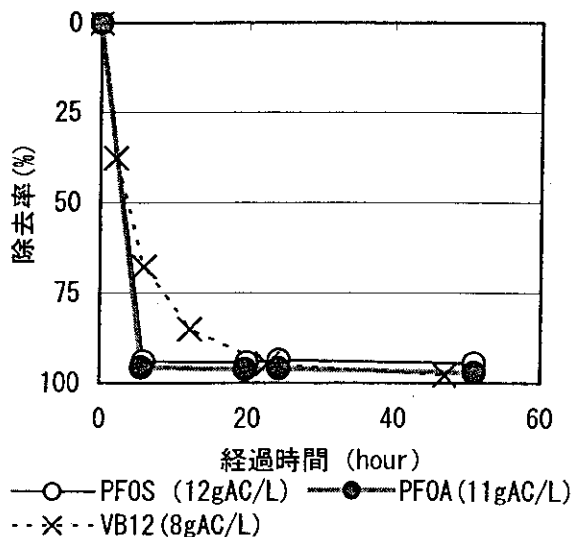


図3 活性炭 (1180~1400 μm) 添加後の PFOS・PFOA 除去率の経時変化

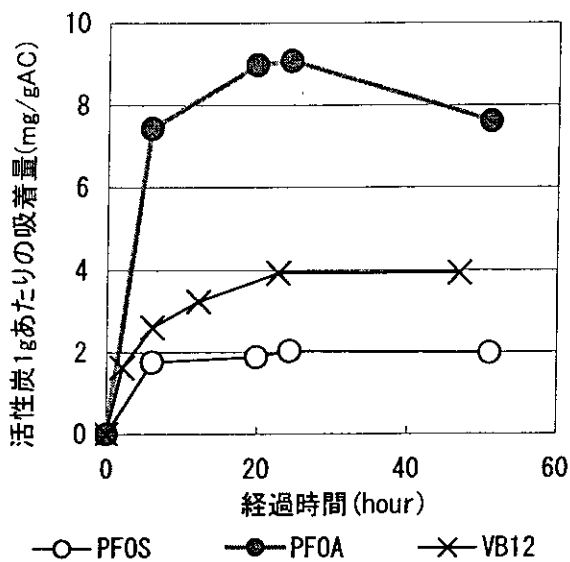


図4 活性炭1gあたりの吸着量の経時変化

B₁₂濃度を吸光度計 (UV-2500PC、波長360nm) で測定した。

PFOS、PFOAの経時変化の例 (Run6, 7で活性炭量はそれぞれ約12、11 g/Lのケース) をビタミンB₁₂ (Run 3で活性炭量、約8 g/Lのケース) と比較し、図3に示す。PFOS、PFOAは振とう開始後6以内に90%以上が活性炭に吸着し、ビタミンB₁₂ (68%) と比較しても、吸着率、吸着速度とも速かった。活性炭1gあたりのPFOS、PFOA吸着量を初期値 (設定) と濃度の差から求め、経時変化を、Run 3と比較し図4に示す。ビタミンB₁₂が約23時間で90%以上除去されたのに対して、PFOS、PFOAの吸着が短時間で起こった様子が確認できた。

水中濃度と活性炭吸着量との関係 (吸着等温式) の一例を図5に示す。PFOS、PFOA濃度が上昇すると、活性炭1gあたりの吸着量も増加する傾向を示した。

D. 考察

回分実験により、活性炭によるPFOS、PFOAの吸着特性の概略が分かった。この結果を実際の吸着処理装置設計に適用するために

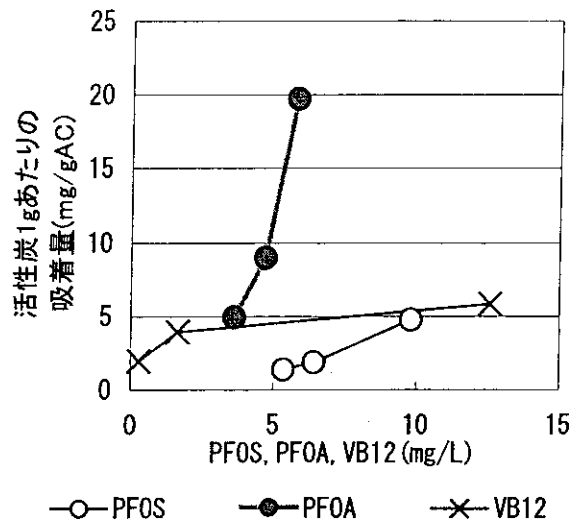


図5 活性炭 (1180~1400 μm) 添加後のPFOS、PFOA、VB₁₂濃度と活性炭1gあたりの吸着量との関係 (20時間)

は、最大吸着量や吸着速度などの各種パラメータを求める必要がある。そこで、吸着回分実験で得られた結果をもとに、吸着特性を以下のように理論的に考察した。

Cと同様の回分実験を想定し、その活性炭添加量を S (gAC/L)、振とう開始から t 時間経過後の対象物質濃度を $C(t)$ (g/L)、単位活性炭あたりの対象物質吸着量を X (g/gAC) で定義する。

活性炭に吸着した対象物質質量と、溶媒中の対象物質質量の和は、活性炭へ未吸着時の初期対象物質濃度に等しいので、その濃度 C_0 (g/L) を用いることで、以下の式が成立する。

$$X \cdot S + C(t) = C_0 \quad \dots \text{式 (1)}$$

これを变形して、以下の X の式を得る。

$$X = (C_0 - C(t)) / S \quad \dots \text{式 (2)}$$

対象物質の濃度変化速度は、対象物質濃度 $C(t)$ に比例し、平衡時に吸着しうる量 SX^* とその時の吸着量 SX との差に比例すると仮定すると、以下の式を得る。

$$\frac{dC(t)}{dt} = -r \cdot C(t) \cdot (X^* - X) \cdot S \quad \dots \text{式 (3)}$$

ここで X^* は、平衡吸着量 (g/gAC) であり、 r は吸着速度定数 (L/g/hr) である。

固体表面に溶質分子を吸着できる場所があり、そこが満席になればそれ以上吸着は起こらないと仮定する Langmuir 式を用いると、平衡吸着量 X^* は、以下の式で表される。

$$X^* = \frac{k \cdot C(t)}{1 + k \cdot C(t)} X_{\max} \quad \dots \text{式 (4)}$$

ここで、 X_{\max} は活性炭 1g あたりの最大吸着量 (g/gAC)、 k は吸着定数 (L/g) である。

式 (3) に式 (4) および式 (2) を代入し、 $C(t)$ についての微分方程式を求め、積分して解を求めると、以下の式を得る。

$$A_1 \ln|C(t)| + A_2 \ln|C(t) - \alpha_1| + A_3 \ln|C(t) - \alpha_2| = t + \beta \quad \dots \text{式 (5)}$$

ただし、

$$\alpha_1 = \frac{(SX_{\max} k - C_0 k + 1) + \sqrt{\Delta}}{2k}$$

$$\alpha_2 = \frac{(SX_{\max} k - C_0 k + 1) - \sqrt{\Delta}}{2k}$$

$$A_1 = \frac{\sqrt{\Delta}}{rC_0}$$

$$A_2 = -\frac{2 + 2k/\sqrt{\Delta}}{r[(SX_{\max} k - kC_0 + 1) + k\sqrt{\Delta}]}$$

$$A_3 = -\frac{2 - 2k/\sqrt{\Delta}}{r[(SX_{\max} k - kC_0 + 1) - k\sqrt{\Delta}]}$$

$$\Delta = (SX_{\max} k - C_0 k + 1)^2 - 4k \cdot C_0$$

であり、 β は積分定数である。本式で $t=0$ のとき $C(t) = C_0$ の条件ができるので以下の式を得る。

$$A_1 \ln \left| \frac{C(t)}{C_0} \right| + A_2 \ln \left| \frac{C(t) - \alpha_1}{C_0 - \alpha_1} \right| + A_3 \ln \left| \frac{C(t) - \alpha_2}{C_0 - \alpha_2} \right| = t$$

・・・式 (5)

上式を実験結果に適用するためには、以下の式の Z が最小となるように吸着平衡パラメータおよび速度係数 X_{\max}, k, r を求めればよい (非線形最小二乗法)。

$$Z = \sum_i \left(A_1 \ln \left| \frac{C(t)}{C_0} \right| + A_2 \ln \left| \frac{C(t) - \alpha_1}{C_0 - \alpha_1} \right| + A_3 \ln \left| \frac{C(t) - \alpha_2}{C_0 - \alpha_2} \right| - t \right)^2$$

・・・式 (6)

以上の式を吸着回分実験 Run 3 に適用した結果を表 2 に示す。このように、理論展開を行うことで、吸着処理装置設計のためのパラメータの推定が可能であることが導かれた。

表2 最大吸着量の計算結果 (Run3)

S gAC/l	k (gVB/l) ⁻¹	X _{max} gVB/gAC	r (hr.g/l) ⁻¹
1.5	53	0.017	1.6
3.0	76	0.016	2.9
7.8	981	0.012	2.5
16.4	1243	0.010	4.8
25.3	267	0.011	5.3

E. 結論

本研究では、PFOS・PFOA の処理方法として吸着に着目し、基本的吸着特性を検討した。まず PFOS・PFOA の定量方法として、吸光度、蛍光度、全有機炭素 (TOC) の適用を検討し、TOC 計での PFOS・PFOA の定量が可能であることを見出した。PFOS・PFOA の吸着特性については、比較有機物としてビタミン B₁₂ を、吸着材として活性炭を用いて回分実験により検討した。その結果、活性炭による PFOS・PFOA が短時間・高効率で吸着されることを見出した。さらに、回分実験結果を通水ろ過装置など実処理設計へ適用するための理論展開を行った。

ただし、本実験は非常に高濃度の PFOS・PFOA を対象としているため、今後は低濃度の PFOS・PFOA を対象とした実験を行う必要が

ある。そのために、現在、HPLC/MSによるPFOSの定量を検討しており、1~100 μ g/Lでの定量が可能となった段階である。今後は、PFOAについても同程度までの定量を可能とする方法を検討し、本報告で示した吸着回分実験を低濃度レベルで行う予定である。また、その実験と並行して、HPLC/MS/MSモードでのPFOS・PFOAの定量方法を検討し、より低濃度で信頼性における測定法の開発を行いたいと考えている。そして、有機物などの共存物添加時の吸着特性の検討、ろ過装置による連続実験等から、PFOS・PFOAの効率的な処理方法の開発を行う予定である。

F. 健康危険情報

なし

G : 研究発表

H. Ihara, S. Fujii, H. Narae, M. Moriya, P. Songprasert, Y. Simizu, Development of a Distributed Model of water Quality and Quantity in a River and its Application for River in Japan CD proceeding of IWA, 2003

H. 知的財産の出願・登録状況

特になし。

研究成果の刊行に関する一覧表

著書

著者氏名	論文タイトル名	書籍全体の編集者名	書籍名	出版社名	出版地	出版年	ページ
竹下達也	飲酒	分子予防環境医学研究会	分子予防環境医学	本の泉社	東京	2003	361-367
佐藤一博、 日下幸則	職業性アレルギー、金属アレルギーなど	室内空気質健康影響協会	室内空気質と健康影響	ぎょうせい	東京	2004	197-207
和田安彦	老化	分子予防環境医学研究会	分子予防環境医学	本の泉社	東京	2003	337-347
井上悠輔、 小泉昭夫	遺伝情報管理システム	分子予防環境医学研究会	分子予防環境医学	本の泉社	東京	2003	674-686
原田浩二、 井上佳代子、 小泉昭夫	難分解性環境汚染物質	分子予防環境医学研究会	分子予防環境医学	本の泉社	東京	2003	638-647

雑誌

発表者氏名	論文タイトル名	発表誌名	巻号	ページ	出版年
Ogawa K., Tsubono Y., Nishino Y., Watanabe Y., Ohkubo T., Watanabe T., Nakatsuka N., Takahashi N., Kawamura M., Tsuji I. and Hisamichi S.	Validation of a food-frequency questionnaire for cohort studies in rural Japan	Public Health Nutrition	6(2)	147-157	2003
Kim E.S., Ko, Y.S., Kim J., Matsuda-Inoguchi N., Nakatsuka H., Watanabe T., Shimbo S. and Ikeda M.	Food composition table-based estimation of energy and major nutrient intake in comparison with chemical analysis: a validation study in Korea	The Tohoku Journal of Experimental Medicine	200	7-15	2003

Kim E.S., Kim J.S., Yim M.H., Jenong Y., Ko Y.S., Watanabe T., Nakatsuka H., Nakatsuka S., Matsuda-Inoguchi N., Shimbo S. and Ikeda M.	Dietary taurine intake and serum taurine levels of women on Jeju Island	Advance in Experimental Medicine and Biology	526	277-283	2003
中塚晴夫、松山恒 博	表計算ソフトによる栄養 計算プログラムの開発	健康・体力・栄 養	2(1)	22-31	2003
松山恒博、半沢真 理子、中塚晴夫	表計算ソフトを利用した 学校給食管理用プログラ ムの開発	健康・体力・栄 養	2(1)	32-41	2003
Murata K., Weihe P., Budtz-Jørgensen E., Jørgensen PJ. and Grandjean P.	Delayed brainstem auditory evoked potential latencies in 14-year-old children exposed to methylmercury	Journal of Pediatrics	144	177-183	2004
Grandjean P., Murata K., Budtz-Jørgensen E. and Weihe P.	Cardiac autonomic activity in methylmercury neurotoxicity: 14-year follow-up of a Faroese birth cohort	Journal of Pediatrics	144	169-176	2004
Iwasaki Y., Sakamoto M., Nakai K., Oka T., Dakeishi M., Iwata T., Satoh H. and Murata K.	Estimation of daily mercury intake from seafood in Japanese women: Akita cross-sectional study	Tohoku Journal of Experimental Medicine	200	67-73	2003
Murata K., Sakai T., Morita Y, Iwata T. and Dakeishi M.	Critical dose of lead affecting delta-aminolevulinic acid levels	Journal of Occupational Health	45	209-214	2003
嶽石美和子、小野 崎幾之助、坂井公、 森田陽子、岩田豊 人、村田勝敬	仏壇製造に従事する女 性労働者における有機 溶剤曝露による自律神 経機能への影響	産業衛生学雑 誌	45	194-196	2003
村田勝敬、嶽石美 和子、佐藤洋	メチル水銀基準摂取量 のゆくえ	公衆衛生	67	531-533	2003
村田勝敬	鯨と環境保健	秋田県公衆衛 生学雑誌	1	47-49	2003

Kikuchi Y., Nomiya T., Kumagai N., Dekio F., Uemura T., Takebayashi T., Nishiwaki Y., Matsumoto Y., Sano Y., Hosoda K., Watanabe S., Sakura H. and Omae K.	Uptake of Cadmium in Meals from the Digestive Tract of Young Non-smoking Japanese Female Volunteers	Journal of Occupational Health	45	43-52	2003
Narita M., Kitagawa K., Nagai Y., Hougaku H., Hashimoto H., Sakaguchi M., Yang X., Takeshita T., Morimoto K., Matsumoto M. and Hori M.	Effects of aldehyde dehydrogenase genotypes on carotid atherosclerosis	Ultrasound in Medicine and Biology	29(10)	1415-1419	2003
Nishibayashi H., Nakayama S., Yamamoto K., Miyazaki Y., Yasunaga Y., Shinomura Y., Takeshita T., Takeuchi T., Morimoto K. and Matsuzawa Y.	Helicobacter pylori-induced enlarged-fold gastritis is associated with increased mutagenicity of gastric juice, increased oxidative DNA damage, and an increased risk of gastric carcinoma	Journal of Gastroenterolo gy and Hepatology	18	1384-1391	2003
Yamada S., Koizumi A., Iso H., Wada Y., Watanabe Y., Date C., Yamamoto A., Kikuchi S., Inaba Y., Toyoshima H., Kondo T. and Tamakoshi A.; for the JACC Study Group	Risk factors for fatal subarachnoid hemorrhage: The Japan Collaborative Cohort Study	Stroke	34	2781-2787	2003
Kumagai S., Koda S. and Oda H.	Exposure evaluation of dioxins in municipal waste incinerator workers	Industrial Health	41	167-174	2003
熊谷信二、織田 肇、田淵武夫、赤 坂進、小坂博、 吉田仁、甲田茂 樹、毛利一平	自治体焼却施設におけ る堆積粉塵中ダイオキシ ン類濃度と労働者の血 清中ダイオキシン類濃度 との関係	産業衛生学雑 誌	46	1-9	2004
Yasutake A., Matsumoto M., Yamaguchi M. and Hachiya N.	Current hair mercury levels in Japanese: Survey in Five Districts	Tohoku Journal of Experimental Medicine	199	161-169	2003

Yasutake A., Matsumoto M., Yamaguchi M. and Hachiya N.	Current hair mercury levels in Japanese for estimation of methylmercury exposure	Journal of Health Science	50	1-6	2004
蜂谷紀之, 安武章, 山口雅子, 宮本清香, 衛藤光明	魚介類を介したメチル水銀曝露のリスクについて (2)日本人集団の曝露状況	日本リスク研究会第16回研究発表会講演論文集	16	273-276	2003
Saito N., Harada K., Inoue K., Sasaki K., Yoshinaga T. and Koizumi A.	Perfluorooctanoate and perfluorooctane sulfonate concentrations in surface water in Japan	Journal of Occupational Health	46(1)	49-59	2004
Harada K., Saito N., Inoue K., Yoshinaga T., Watanabe T., Sasaki S., Kamiyama S. and Koizumi A.	The influence of time, sex and geographic factors on levels of perfluorooctane sulfonate and perfluorooctanoate in human serum over the last 25 years	Journal of Occupational Health	46(2)	141-147	2004
Sasaki K., Harada K., Saito N., Tsutsui T., Nakanishi S., Tsuzuki H. and Koizumi A.	Impact of airborne perfluorooctane sulfonate on the human body burden and the ecological system	Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology	71(2)	408-413	2003
Saito N., Sasaki K., Nakatome K., Harada K., Yoshinaga T. and Koizumi A.	Perfluorooctane sulfonate concentrations in surface water in Japan	Archives of Environmental Contamination and Toxicology	45(2)	149-158	2003
Harada K., Saito N., Sasaki K., Inoue K. and Koizumi A.	Perfluorooctane sulfonate contamination of drinking water in the Tama River, Japan: Estimated effects on resident serum levels	Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology	71(1)	31-36	2003
Hirai T., Fujimine Y., Watanabe S., Hata J. and Watanabe S.	Concentration of polybrominated Diphenyl Ethers (PBDES) in human sample in Japanese	Organohalogen Compounds,	61	151-154	2003
Hirai T., Fujimine Y., Watanabe S. and Nakano T.	Analysis of all 209 polychlorinated biphenyls congeners in human pooled blood sample in Japan	Organohalogen Compounds	63	417-420	2003
Ihara H., Fujii S., Nagare H., Moriya M., Songprasert P. and Shimizu Y.	Development of a distributed model for water quality and quantity in a river and its application for a river in Japan	CD Proceedings of IWA 2003 Asia-Pacific Regional Conference	—	CD-1Q5A01	2003