

厚生労働行政推進調査事業費補助金（食品の安全確保推進研究事業）
食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究
（H28-30-食品-指定-010）
平成28-30年度研究分担報告書

研究分担課題：有害物質（有機フッ素化合物）摂取量推定に不可欠な分析法開発

研究分担者 井之上 浩一

要旨 食品中には、ダイオキシン類、有害元素、PCB類や副生成物などの有害物質が含有している事があり、その基準値設定の検討を行うためには、汚染量実態・摂取量実態の把握が欠かせない。国際規格設定には我が国の汚染実態データは必須となる。そこで、本研究では、有機フッ素系化合物（PFCs）のトータルダイエツトスタディに関する必要性や分析法などの基礎的な調査研究から国内で進めるべき方向性を検証することとした。初年度では、国際的な報告をもとに現在におけるPFCsの摂取量推定に対する問題点や要点をまとめた。また、食品からのPFCs摂取量推定についてもまとめた。その結果、ヨーロッパを中心に食品からのヒト曝露に関する報告が多くあり、魚介類からのPFCs汚染が高く、それ以外にも各化合物の種類によって異なることも分かった。さらに、調理によりPFCs濃度が増加することや各国による汚染実態が異なることなど、いずれも国別の独自による見解が必要と考えられた。2年目からは、国際的な報告例をもとにPFCs種類を選別し、25種類の化合物を液体クロマトグラフィータンデム質量分析法（LC-MS/MS）による一斉分析を検証した。その結果、ESI-ネガティブイオンにより、良好にイオン化し、分離も達成できた。3年目においては、今までの分析法構築の問題点を再検討することと同時に、国際的および国内の情報をもとに、食品からのヒト曝露調査に関する調査研究を進めた。2018年度は、ストックホルム条約残留性有機汚染物質検討委員会第14回会合およびEuropean Food Safety AuthorityからPFCsに関連する報告がなされた。それらの報告を参考に、分析対象を15種類に絞り込んだ。また、目標とする定量値をCommission Recommendation 2010/161/ECの1 µg/kg以下が望ましいとの報告と本分析結果に基づくバックグラウンド値から試料量10 gから再溶解を0.5 mLとして、定量範囲を0.05～5 µg/kgとした。今後、本条件を基盤として、日本独自のトータルダイエツトスタディを進めることとする。

A. 研究目的

有機フッ素化合物（Perfluorocompounds: PFCs）は、撥水・撥油性の物理化学的物性を示すことから、撥水剤、界面活性剤、金属メッキ処理剤および調理用器具のコーティング剤などに利用されている。PFCsは、炭素鎖の長さが異なる複数の同族体を有し、その物性・化学的性質は炭素鎖の長さで異なる。特に、炭素数が8個のパーフルオロオクタン酸（Perfluorooctanoic acid, PFOA）

およびパーフルオロオクタンスルホン酸（Perfluorooctanesulfonic acid, PFOS）は残留性が高く、環境（河川、土壌、大気など）や野生生物（魚、鳥、哺乳類など）において世界的規模で検出されている。特に、ヒトへの曝露に関しては最も注目され、世界中の人々でPFOSやPFOAの血中濃度レベルが報告された。PFOSとその塩は、残留性有機汚染物質に関するストックホルム条約（POPs条約）において、第4回締約国会

議で当該条約の製造・使用を制限する措置を取るべき物質（附属書 B）に追加することが決定され、化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律施行令の改正により平成 21 年 10 月に新たに第一種特定化学物質に指定された PFOS について、海外における基準値設定例等に関する追加情報を整理及び基準策定方針が行われた。平成 30 年 9 月のストックホルム条約残留性有機汚染物質検討委員会第 14 回会合 (POPRC14) では、PFOA とその塩及び PFOA 関連物質について、条約上の廃絶対象物質（製造・使用・輸出入を禁止する措置を取るべき物質：附属書 A）への追加が決定され、国内でも化審法において、今後、条約の義務を担保するための各種措置がとられると考えられる。また、ペルフルオロヘキサンスルホン酸 (PFHxS) とその塩及び PFHxS 関連物質について、リスク管理に関する評価を検討する段階に進めることが決定された。2019 年 9 月に開催される次回会合 (POPRC15) では、PFCs の更なる議論が実施されるものと考えられる。

食品からのヒト曝露評価については、European Food Safety Authority (EFSA)より 2018 年 3 月に報告がなされた¹⁾。本報告では、主に PFOS 及び PFOA を対象として、利用可能な分析結果 (20,019 データ) に基づき、Tolerable weekly intake (TWI) を PFOS で 13 ng/kg body weight (bw)/week、PFOA で 6 ng/kg bw/week と示した。要約の最終センテンスで、「For both compounds, exposure of a considerable proportion of the population exceeds the proposed TWIs. 両化合物 (PFOS 及び PFOA) に対して、集団のかなりの割合が提案された TWI を超過していることが考えられる」と報告している¹⁾。今後、この TWI について、議論されるものと思われるが、国内での食品からのばく露実態は明確に示す必要があると考えられる。

以上より、本研究では、国内のヒト曝露実態の必要性と国際的な報告をもとに、独

自の検証を実施した。

B. 研究方法

① 国際的な研究報告の収集

PFCs 摂取量調査に関連する研究論文を収集するため、PubMed および Scopus による検索から国際的報告 (PFCs の食事経路, dietary intake および食品, food に関するもの: 2011 年 3 月から 2017 年 1 月) を算定した。

② 新たな PFCs の LC-MS/MS 分析法開発

本研究において、分析対象とする PFCs を表 1 に示す。分類としては、フッ素鎖末端にカルボキシル基をもつ 18 種類 (炭素鎖: 2~17)、スルホン酸基をもつ 12 種類 (炭素鎖: 3~12)、その他 3 種類 (Perfluorooctanesulfonamide: PFOSA, Sodium dodecafluoro-3H-4,8-dioxananoate: NaDONA, 6:2 chlorinated polyfluorinated ether sulfonate: F-53B) を対象とする。しかしながら、最終的には POPPRC 及び EFSA の報告などから、15 種類 (表 2) に絞り込んだ。分析装置には、LC 装置: Waters 社製 Acquity H Class/PDAe λ 及び MS 装置: Waters 社製 Xevo TQD を用いた。

試薬: 本実験に用いた試薬は、アセトニトリル (和光純薬社製)、メタノール (和光純薬社製)、*n*-ヘキサン (和光純薬社製)、ギ酸 (和光純薬社製)、アンモニア水 (和光純薬社製)、酢酸アンモニウム (和光純薬社製) である。

標準溶液の調製方法: 本標準品はメタノールを用いて、1000 $\mu\text{g/mL}$ (ppm) の標準原液に調製した。検量線用標準溶液は、各標準原液からメタノールで希釈し、100 ng/mL (ppb) の混合液を調整した。その後、本溶液を段階的に希釈し、検量線用標準溶液を調製した。

遠心分離機：日立社製 CF15RN
ホモジナイザー：SPEC 社製 2010
Geno/Grinder
固相抽出カラム：和光純薬社製 Presep[®] PFC-
II (60 mg/3 mL)
LC 装置：Waters 社製 Acquity H Class
MS 装置：Waters 社製 Xevo TQD

移動相には、20 mM 酢酸アンモニウム水溶液(A)/メタノール(B)を使用し、本条件を表2に示す。

カラム：GLサイエンス社製 Inertsil C8-4HP
(2.1×100 mm, 粒子径 3µm,)
カラム温度：40°C
流速：0.2 mL/min
注入量：10 µL

MS 装置：測定条件は、エレクトロスプレー
イオン化法 (ESI：ネガティブモード) で行
った。

Capillary voltage: 2.0 kV
Extractor voltage: 3 V
RF lens voltage: 2.5 V
Source temperature: 150°C
Desolvation temperature: 400°C
Cone/desolvation gas flows: 50/800 L/hr
MS/daughter scan ranges: *m/z* 50 to 1200
Cone voltage: 15-50 V
Collision energy: 15-50 eV

食品の前処理の検討：食品試料 10 g に対し
て、1%ギ酸アセトニトリル溶液 15 mL、ヘ
キサン 5 mL を加えて、2010 Geno/Grinder
(1600 rpm, 15 分間) によりホモジナイズ
を行う。添加回収実験のときは、食品試料
に 50 ppb の混合標準溶液を 100 µL 添加し、
室温で 30 分程度馴染ませてから抽出操作
を実施した。また、その際、適時、内標準
物質溶液も添加している。ホモジナイズの
後、試料溶液を遠心分離機で 12000 rpm で
20 分間行い、上清を別の遠心管に移した。

本操作は、3 回繰り返した。その後、ヘキ
サン層は除き、アセトニトリル層を濃縮し、
3 mL 程度とした。その溶液に 0.5%ギ酸水溶
液を 20 mL 程度加えて混合した。

次に、精製過程を実施する。精製には、
和光純薬社製 Presep[®] PFC- II を用いた。コ
ンディショニングには、メタノール 5 mL 及
び 0.5%ギ酸水溶液 5 mL で行った。その後、
上記の抽出溶液をカラムに添加した。抽出
液を通過後、精製水 5 mL でカラムの洗浄を
行い、溶出には 1%アンモニアメタノールも
しくはアセトニトリルで行った。本溶液を
濃縮乾固し、メタノール/水 (50/50, v/v)
100µL に希釈した。本溶液を遠心分離し、
LC-MS/MS へ注入した。

C. 研究結果

C.1. 国際的な研究報告による食品由来の PFCs 摂取量推定の評価

初年度に調査した各国から報告されてい
る食品由来の PFCs 摂取量推定に関して、表
3 に示す。また、EFSA から一日耐用摂取量
(TDI) は PFOS 150 ng/kg 体重/日及び PFOA
1,500 ng/kg 体重/日と提示し、2006 年から
2012 年までの曝露評価 (54,194 例) を用い
て、成人で平均 3.5%以下 (PFOS) 及び平
均 0.3%以下 (PFOA) と示している²⁾。そ
れ以外の PFCs に関しても、数 ng/kg 体重/
日であると結論付けている²⁾。今回調査し
た研究報告ではいずれも、TDI に対して、
5% 以下であった。その後、2018 年に
Tolerable weekly intake (TWI) を PFOS で
13 ng/kg body weight (bw)/week, PFOA で
6 ng/kg bw/week と示した¹⁾。また、本報告で
は、Commission Recommendation
2010/161/EC に基づき、定量限界 (LOQ) が
1 µg/kg 以下が望ましいと報告されている³⁾。
つまり、食品試料を 10 g と設定した場合、
10 ng 絶対量として LOQ を求めることにな
る。これらの情報をもとに PFCs の食品曝露
調査を実施することとした。また、分析法
についても、LC-MS/MS を用いた。

C.1. 食品からの PFCs 分析に関する検討

今回、EFSA からの報告を含め、本研究方針を明確に示すこととする。EFSA からの Per-/Polyfluoroalkyl substances は、C4~C16 を PFOS 及び PFOA を含め、ひとつの定義としている。POPRC14 では、PFHxS (C6) に注目していることから、C4 以上を対象とすることで妥当と考えられる。また、平成 29 年までの報告において、炭素鎖が C11 以上となると、固相抽出カラムに吸着し、溶出が困難であった。また、C3 以下では、逆にカラムへの吸着が難しく、試料添加のときに溶出してしまうことが確認された。以下に、その要点を示す (2 年目までの研究成果)。

- ・ LC-MS/MS により、25 種類の PFCs の一斉分析が達成できた。
- ・ 前処理においては、抽出に酸性条件下、アセトニトリルで行い、ヘキサンによる脱脂も望まれた。
- ・ Presep PFC- II を用いる場合、炭素鎖が短いもの (C₂もしくは C₃) では殆ど保持されず、逆に長いもの (C₁₃以上) では、その溶出が困難であることが分かった。
- ・ PFOSA は物性が異なり、同一条件にて前処理を行うことが困難であった。

これらの要点より、様々な食品に対応できる PFCs の前処理法の確立が重要なこととであり、今後、更なる改良と改善を行う必要がある。

これらの検討から、平成 30 年度には、C4~C10 を対象を絞り、表 2 を最終的な目標と定めた。また、EFSA の報告書では、直鎖及び分岐鎖の PFOS や PFOA も生産され、環境やヒト曝露サンプルで検出されていることから注意が必要であると述べている。これについては、今後の検討とする。

そこで、本研究でも昨年度より検討している LC-MS/MS を利用した PFCs の分析法を再評価することとした。Commission

Recommendation 2010/161/EC において、定量限界 (LOQ) が 1 µg/kg 以下が望ましいと報告されている³⁾。つまり、食品試料を 10 g と設定した場合、10 ng 絶対量として LOQ を求めることになる。今回、LC-MS/MS による分析法開発としては、最大の最終溶液に調製する体積量は 10 mL となる。平成 30 年度の研究成果より、再溶解量を 0.5 mL とした。以上より、食品の目標 LOQ (1 µg/kg 以下) を達することを念頭に置き、その定量範囲は、0.05~5 µg/kg とした。

C.2. 食品試料からの前処理の検討

初めにマグロ試料を用いた前処理の検討を行い、それを基盤に様々な食品試料へ展開することとした (平成 29 年度)。一般的に食品からの抽出は、酸性条件下、アセトニトリルで行い、脱脂を含めて、ヘキサンを用いた。ホモジナイズ後、上精を取り、ヘキサンで脱脂した。本溶液を様々な固相抽出カートリッジで検討した。一般的に用いられる C₁₈系及び OASIS-HLB 固相抽出カートリッジを検討した結果、いずれも回収率が 10% 以下となり、良好な結果を得ることができなかった。本研究では、PFCs 専用の和光純薬社製 Presep PFC- II を用いることとした。精製水を用いて、カートリッジの検討した結果、炭素鎖が短い C₂F₅COOH では全く保持されず、他の PFCs と同じ条件では不可能であった。また、炭素鎖が長いもの (C₁₇F₃₅FCOOH) は逆に保持が強く、メタノールもしくはアセトニトリルでは溶出することができなかった。さらに、PFOSA は、塩基性化合物であり、物理的性質が全く異なり、他の PFCs と同じような条件では前処理は困難であった。上記の条件により、様々な前処理の検討を行った。その結果、マグロ試料からの添加回収について、以下のような結果を得られた。

「マグロ試料からの回収率の結果」

PFBA (C₃F₇COOH): 不検出
PFHxA (C₅F₁₁COOH): 121.0±8.3%
PFOA (C₇F₁₅COOH): 106.9±11.2%
PFUdA (C₁₀F₂₁COOH): 123.7±10.4%
PFTTrDA (C₁₂F₂₇COOH): 123.1±29.4%
PFBS (C₄F₉SO₃H): 97.5±4.0%
PFHxS (C₆F₁₃SO₃H): 104.0±6.8%
PFOS (C₈F₁₇SO₃H): 106.3±9.0%
いずれも n=3 の繰り返し再現性

これらの予備検討の結果、カルボキシル基を有する PFCs では、炭素鎖 3 ではカートリッジに保持されない可能性があり、更なる検討が必要である。一方で、スルホン基を有する PFCs では、ある程度炭素が短くても保持されることが分かった。一方で、炭素が長くなるとカートリッジより、溶出され難くなる。そこで、メタノールのみでの溶出では、炭素鎖が 10 を超えるとその傾向が観察された。そこで、溶出液にアセトニトリルもしくはそれよりも溶出力の高い溶媒が必要である可能性が示唆された。また、食品試料によるイオン化抑制効果も予想されたため、カートリッジの洗浄に関する必要性も分かった。平成 29 年度の結果を踏まえ、和光純薬社製 Presep PFC- II を用いて、トータルダイエットスタディに基づく、食品試料のバックグランドデータを検討した。今回は、添加回収実験などを行っておらず、あくまでもバックグランドのデータとして求めた。その結果、数～数千 pg/g レベルでバックグランドが検出された。つまり、2010/161/EC³⁾で推奨する検出レベルでは、その殆どが LOQ 以下となることが分かった。次に、LC-MS/MS の LOQ は、0.005～0.39 ng/mL となり、十分に担保できると推定される。そこで、検量線の最低濃度を 1 ng/mL (LOQ×10) として、100 ng/mL まで作成した場合、その定量範囲は、0.05～5 µg/kg となる。一部、PFOS で定量範囲を超える可能性が示唆されるが、殆どの化合物

と食品群で定量範囲に入るものと思われる。また、食品群としては、4 群及び 7 群で多く検出されているが、今後の検討と考えられる。

E. 結論

本検討より、下記のことを結論とする。また、今後はさらなる高精度かつ有用な多種類へ対応できる前処理を構築することが望まれた。

- ・ LC-MS/MS により、15 種類の PFCs の一斉分析を提案する。
- ・ 試料量 10 g に対して、定量範囲を 0.05～5 µg/kg と設定する。
- ・ Presep PFC- II を用いる前処理法について、バリデーションが求められる。

F. 研究発表

1. 論文発表
特になし
2. 学会発表
特になし

G. 知的財産権の出願、登録状況

特になし

H. 健康危機情報

特になし

I. 参考文献

- 1) EFSA Panel on Contaminants in the Food Chain (CONTAM), Risk to human health related to the presence of perfluorooctane sulfonic acid and perfluorooctanoic acid in food. *EFSA Journal*, 16, 5194. (2018).
- 2) EFSA: Perfluoroalkylated substances in food: occurrence and dietary exposure. *EFSA Journal*, 10, 2743. (2012)

3) COMMISSION RECOMMENDATION of
17 March 2010 on the monitoring of
perfluoroalkylated substances in food.
2010/161/EU;

*[https://eur-lex.europa.eu/LexUriServ/LexUriSe
rv.do?uri=OJ:L:2010:068:0022:0023:EN:PDF](https://eur-lex.europa.eu/LexUriServ/LexUriSe
rv.do?uri=OJ:L:2010:068:0022:0023:EN:PDF)*

表 1. PFCs の分析対象リスト

Analytes	M.W.	Brand	Purity	Precursor ion [M-H]	cone voltage (V)	Quantitative ion (m/z)	Qualitative ion (m/z)	collision energy (eV)	
PFPrA	C ₂ F ₉ COOH	164	TCI	> 98.0%	163.1	25	68.8	118.6	20
PFBA	C ₃ F ₇ COOH	214	TCI	> 98.0%	213.1	20	169.1	213.1	10
PFPeA	C ₄ F ₉ COOH	264	TCI	> 98.0%	263.2	15	219.0	no	10
PFHxA	C ₅ F ₁₁ COOH	314	Wako	Unknown	313.2	20	269.1	118.8	10
PFHpA	C ₆ F ₁₃ COOH	364	fluorochem	Unknown	363.1	20	319.1	363.1	10
PFOA	C ₇ F ₁₅ COOH	414	Wako	> 95.0%	413.2	15	369.1	413.2	10
T-PFOA	Technical grade								
PFNA	C ₈ F ₁₇ COOH	464	fluorochem	Unknown	463.2	20	419.2	219.0	15
ipPFNA	C ₇ (CF ₃)F ₁₄ COOH	464	Wellington L.	Unknown	463.2	20	419.1	219.1	15
PFDA	C ₉ F ₁₉ COOH	514	Wako	Unknown	513.3	20	469.1	219.0	10
PFUdA	C ₁₀ F ₂₁ COOH	564	Wako	Unknown	563.3	25	519.1	319.2	10
PFDoA	C ₁₁ F ₂₃ COOH	614	Wako	Unknown	613.3	25	569.1	269.1	10
PFTrDA	C ₁₂ F ₂₅ COOH	664	Aldrich	> 97%	663.3	30	619.1	269.2	10
PFTeDA	C ₁₃ F ₂₇ COOH	714	fluorochem	Unknown	713.3	25	669.1	419.2	10
PFPeDA	C ₁₄ F ₂₉ COOH	764							
PFHxDA	C ₁₃ F ₂₇ COOH	814	fluorochem	Unknown	813.4	30	769.1	469.2	10
PFHpDA	C ₁₄ F ₃₁ COOH	864							
PFODA	C ₁₁ F ₂₅ COOH	914	Wellington L.	Unknown	913.4	35	869.0	219.3	15
PFPtS	C ₃ F ₇ SO ₃ H	250							
PFBS	C ₄ F ₉ SO ₃ H	300	Wellington L.	Unknown	299.1	50	79.9	98.9	30
PFPeS	C ₅ F ₁₁ SO ₃ H	350							
PFHxS	C ₆ F ₁₃ SO ₃ H	400	Aldrich	≥ 98.0%	399.1	50	80.0	98.9	35
PFHpS	C ₇ F ₁₅ SO ₃ H	450	Wellington L.	Unknown	449.1	50	79.9	99.0	50
PFOS	C ₈ F ₁₇ SO ₃ H	500	TCI	> 98.0%	499.1	50	79.9		45
T-PFOS	Technical grade								
PFNS	C ₉ F ₁₉ SO ₃ H	550							
ipPFNS	C ₈ (CF ₃)F ₁₆ SO ₃ H	550	Wellington L.	Unknown	549.1	50	80.0	130.0	50
PFDS	C ₁₀ F ₂₁ SO ₃ H	600	Wellington L.	Unknown	599.1	50	80.0	99.0	45
PFUdS	C ₁₁ F ₂₃ SO ₃ H	650							
PFDoS	C ₁₂ F ₂₅ SO ₃ H	700	Wellington L.	Unknown	698.8	50	79.9	98.9	
PFOSA	C ₈ F ₁₇ SO ₂ NH ₂	499	Aldrich	Unknown	498.1	50	78.0	no	30
NaDONA	C ₈ F ₁₇ O ₂ HCO ₂ Na	400	Wellington L.	Unknown	377.1	40	250.9	84.8	10
F-53B	C ₈ ClF ₁₆ OSO ₂ K	571	Wellington L.	Unknown	531.1	45	350.9	82.9	25

表 2. 本研究において、対象とする PFCs 絞り込み

Analytes	M.W.	Precursor ion	Quantitative ion	Cone voltage	Collision energy	LOD	LOQ
	(g/mol)	(m/z)	(m/z)	(V)	(eV)	(ppb)	(ppb)
-COOH	C ₄ PFPeA	264	263	219	20	10	0.2 0.39
	C ₅ PFHxA	314	313	269	20	10	0.1 0.2
	C ₆ PFHpA	364	363	319	20	10	0.1 0.2
	C ₇ PFOA	414	413	369	20	10	0.1 0.2
	C ₈ PFNA	464	463	419	25	10	0.1 0.39
	C ₉ PFDA	514	513	469	25	10	0.05 0.1
	C ₁₀ PFUdA	564	563	519	25	10	0.1 0.2
-SO ₃ H	C ₄ PFBS	300	299	80	55	30	0.1 0.2
	C ₆ PFHxS	400	399	80	60	40	0.2 0.39
	C ₇ PFHpS	450	449	80	65	45	0.2 0.39
	C ₈ PFOS	500	499	80	65	50	0.1 0.2
	C ₁₀ PFDS	600	599	80	65	50	0.05 0.1
その他	C ₆ NaDONA	400	377	251	25	10	0.025 0.05
	C ₈ PFOSA	499	498	78	60	35	0.025 0.05
	C ₈ F-53B	571	531	351	50	25	0.025 0.05

表 2. LC-MS/MS 分析条件

引用文献	タイトル	発表年	一日推定曝露量 (ng/kg 体重/日)	対象試料
14	Perfluorinated compounds in fish and blood of anglers at Lake Möhne, Sauerland area, Germany	2011	最大 17	魚介類
15	Levels of perfluorinated compounds in food and dietary intake of PFOS and PFOA in the Netherlands	2011	PFOS: 平均0.3 (最大0.6), PFOA: 平均0.2 (最大0.5)	食品類
16	Human dietary exposure to perfluoroalkyl substances in Catalonia, Spain. Temporal trend	2012	PFOS: 1.84 (成人), PFOA: 5.05 (成人)	食品類
18	Food risk assessment for perfluoroalkyl acids and brominated flame retardants in the French population: results from the second French total diet study	2014	PFOS: 平均0.66, PFOA: 平均0.74	食品類
19	Dietary exposure to perfluoroalkyl acids for the Swedish population in 1999, 2005 and 2010	2012	PFOS: 1.44 (1999年), 0.86 (2005年), 1.00 (2010年) PFOA: 0.35 (1999年), 0.50 (2005年), 0.69 (2010年)	食品類
21	Perfluoroalkyl acids and their precursors in Swedish food: the relative importance of direct and indirect dietary exposure	2015	PFOS+前駆体: 1.64 (1999年), 0.88 (2005年), 0.73 (2010年)	食品類
22	Occurrence of selected perfluorinated alkyl acids in lunch meals served at school canteens in Italy and their relevance for children's intake	2013	PFOS: 0.5-1.4, PFOA: 0.3-1.1	食品類(小学生用)
24	Fish consumption as a source of human exposure to perfluorinated alkyl substances in Italy: analysis of two edible fish from Lake Maggiore	2014	PFOS: 平均11.9, 54.39 (95%タイル値)	魚介類
27	Perfluoroalkylated substances (PFASs) in home and commercially produced chicken eggs from the Netherlands and Greece	2016	PFOS: 平均3.5 (小児), 24.8 (95%タイル値), 平均1.1 (成人), 7.6 (95%タイル値)	卵類
29	Polychlorinated biphenyls (PCBs), polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and perfluorinated alkylated substances (PFASs) in traditional seafood items from western Greenland	2014	PFOS: 6.89	魚介類
31	Perfluorinated alkylated substances in vegetables collected in four European countries: occurrence and human exposure estimations	2013	PFOA: 0.04	野菜類
32	Occurrence of perfluoroalkyl substances (PFASs) in various food items of animal origin collected in four European countries	2013	PFOS: 0.03-0.11 (魚), 0.03-0.05 (海産物), 0.01-0.03 (レバー)	動物由来食品
33	Occurrence of perfluorinated alkylated substances in cereals, salt, sweets and fruit items collected in four European countries	2015	PFOS: 1.00 (95%タイル値), PFOA: 0.35 (95%タイル値)	食品類
34	Risk assessment for human consumption of perfluorinated compound-contaminated freshwater and marine fish from Hong Kong and Xiamen	2011	PFOS: 平均2.4 (香港), 平均5.1 (廈門市) PFOA: 平均3.3 (香港), 平均3.0 (廈門市)	魚介類
35	Perfluorinated compounds in human blood, water, edible freshwater fish, and seafood in China: daily intake and regional differences in human exposures	2011	PFOS: 0.1-2.51, PFOA: 0.13-0.38	魚介類
36	Perfluorinated compounds in seafood from coastal areas in China	2012	PFOS: 0.037-0.694, PFOA: 0.008-0.914	魚介類
37	Bioaccumulation and distribution of perfluoroalkyl acids in seafood products from Bohai Bay, China	2012	PFOS: 2.44, PFOA: 0.5	魚介類
38	Tissue distribution of perfluorinated compounds in farmed freshwater fish and human exposure by consumption	2012	PFOS: 0.24, PFCs: 0.44	魚介類
39	Occurrence and assessment of perfluorinated compounds in fish from the Danjiangkou reservoir and Hanjiang river in China	2015	PFOS: 0.42-0.84, PFOA: 0.02-0.18	魚介類
40	Foodstuff analyses show that seafood and water are major perfluoroalkyl acids (PFAAs) sources to humans in Korea	2014	PFOS: 0.47-3.03, PFOA: 0.17-1.68	魚介類

* 引用論文番号は、平成 28 年度報告書より