

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
(19KA2001)

令和元年度研究分担報告書

有害物質の摂取量推定に不可欠な分析法開発に関する研究
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 本研究では、有機フッ素化合物（PFCs）を対象として、食品からのヒト曝露に関する調査研究を進めてきた。前年度まで、国際的な情報収集と分析対象PFCsの算定などを実施し、今年度においては具体的な分析法開発とモニタリング調査を実施した。分析法には、液体クロマトグラフィータンデム質量分析法（LC-MS/MS）を採用し、エレクトロスプレーイオン化法によるNegativeモードを採用し、分離カラムにはInerSustain C₈を用いた。分析対象をR-COOH（7種類）、R-SO₃H（7種類）、その他（NaDONA, F-53B）の16種類とした。また、実験前処理での汚染状況を調査した結果、PFNA, PFHxA, PFOAなどの微量のバックグラウンドも観察され、実験に使用する水を活性炭処理して低減化を目指した。そのうえで、今回は、飲料に伴う食品の調査を目的として、添加回収実験を行った結果、良好な回収率や再現性を得ることができた。本分析法を用いて、飲料水や市販飲料などを調査した結果、殆ど5 ng/L以下となった。

A. 研究目的

現在まで継続してきた有機フッ素化合物（Perfluorocompounds: PFCs）に関する調査研究において、本報告書で国際的及び国内の食品ばく露を含めた現状を議論してきた。そのような中、厚生労働省水質基準逐次改正検討会が開催され、ペルフルオロオクタン酸（PFOS）及びペルフルオロオクタン酸（PFOA）の水質基準等の体系の要検討項目と位置づけ、暫定目標値をPFOS及びPFOAの量の和を0.00005 mg/L (50 ng/L) とすることが議論された。その一方で、具体的な国際的かつ国内の法的処置も進んでおり、現在では、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、国内でも今後、条約の義務を担保するための各種措置がとられた。そのうえ、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。そして、第15回会合（POPRC15）でも、条約対象物質への追加として、PFHxSとその塩及びPFHxS関連物質が検討され、今後はこれらを含めた環境モニタリング調査が国内でも求められると予想される。

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、Tolerable weekly intake (TWI) をPFOSで13 ng/kg body weight (bw)/week, PFOAで6 ng/kg bw/weekと立案した。その後、2020年4月20日に意見案「Public consultation on the draft scientific opinion on the risks to human

health related to the presence of perfluoroalkyl substances in food (PFCs の食品ばく露リスクに関する科学的意見案)」を取りまとめることになっている¹⁾。いずれにおいても、本研究プロジェクトについて、国内でも食品ばく露評価を示す必要があると考えられる。よって、これらの背景をもとに PFCs の食品ばく露評価に基づく、国内基盤を構築する。

B. 研究方法

標準品:今回、分析対象とした PFCs の略名、構造式、LC-MS/MS 分析条件などを表 1 に示す。

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

LC-MS/MS 条件は、表 2 にまとめた。

また、前処理については、図 1 に示す。今

回用いた試料量は 35 mL とした。試料は国内で入手可能な飲料水などを用いた。

C. 研究結果

C.1. 飲料水に関する定量限界などの設定

今回、代表的な研究論文をもとに検討をすることとした。Kaboré らの研究では、29 種類 PFCs を対象に 9 か国 41 地域の飲料水(ボトル水及び水道水)を調査した²⁾。その結果を図 2 に示す。定量限界(LOQ, S/N=10)は 0.03~0.23 ng/L としている。また、最大検出値としては、ボトル水で 2.0 ng/L (PFDoDA)、水道水で 39 ng/L (5:3FTCA)となった。この研究では、LOQ が低いため、多くの PFCs において高い検出率となっている。次に、Harrad らの研究では、10 種類 PFCs を対象に英国内で入手できる飲料水を調査している³⁾。その結果を図 3 に示す。LOQ は 0.05~0.2 ng/L としている。また、この研究では、PFBS が最大 15.06 ng/L (水道水)、51 ng/L (ボトル水)となっている。Ünlü らの研究では、10 種類 PFCs を対象にトルコで入手できる飲料水を調査している⁴⁾。その結果を図 4 に示す。Method detection limit を設定しており、0.07~0.12 ng/L としている。ボトルで最大 0.46 ng/L (PFBA)、水道水で最大 2.9 ng/L (PFHxA)となっている。本論文では、ほかに 27 報の報告例も比較した水道水のデータを示している(表 3)。いずれも PFCs について、0.1 ng/L 以上の検出値もあるが、最大値を示したのが、図 5 である。カットオフを 50 ng/L (厚生労働省の検討している水道水の限度値)とした場合、それを超えて検出される確率は 10%程度であり、その 10 分の 1 (5 ng/L) とした場合、30%程度となる。一方で、飲料水における国際的なガイドラインレベルを検討した報告では、PFOA で 14~1000 ng/L、PFOS で 13~560 ng/L としている⁵⁾。これらのことを考慮して、5~10 ng/L を目標とする定量の下限値と設定し、測定を進めることが食品のばく露を想定した場合、最適と考えた。よって、以降の飲料

食品の定量の目標下限値を 5 ng/L とした。

C.2. LC-MS/MS による分析法の検討

本研究では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。目標値 (5 ng/L) において、LC-MS/MS の測定条件や検出限界などは表 1 に示した。その後、目標値を設定し、前処理プロトコール (今後の食品分析も考慮している) を図 1 に示した。しかし、前処理過程でのブランクピークが観察された (図 6)。そのため、最も危惧される実験用水をすべて活性炭処理 (InertSep Slim-JAC, GL サイエンス社製) をすることで、低減化を目指した。それらを考慮して、PFPeA, PFHxA, PFHpA, PFNA の測定の定量値を 15 ng/L とした。また、それ以外の PFCs は目標値 (5 ng/L) と設定した。表 4 に飲料水を用いた添加回収実験の結果を示す。PFPeA, PFHxA, PFHpA は低濃度の添加回収でバックグラウンド影響と考えられる高値を示した。また、内標準物質の補正も不十分と考えられ、今後との課題と思われる。緑茶を用いた添加回収実験においても、PFPeA, PFHpA で同じように高値を示した。また、PFNA (35 ng/L) で 47.5% であったが、こちらも再検討が必要である。その他、野菜ジュースなどでも添加回収を実施した。いずれも 70% 以上となった。そのときのクロマトグラムを図 7 に示す。

C.3. 飲料への応用

本手法 (LC-MS/MS) を用いて、飲料水 (ボトル水) の調査を実施した。国内で入手可能な海外製品 (10 種類)、日本製品 (14 種類) を 2019 年 11 月から 2020 年 2 月までの間で入手した。LC-MS/MS 測定した結果、PFNA が常にバックグラウンドとして検出されたが、前処理からの汚染も考えられるため、定量の下限値を 15 ng/L としてすべて不検出と判断した。また、目標値 5 ng/L 以下であるが、トレースレベル (0.5~1 ng/L 程

度) で海外製品 1 検体及び日本製品 1 検体から PFOS が検出された。その他の PFCs は不検出であった。次に、緑茶 (5 種類)、ほうじ茶 (1 種類)、麦茶 (1 種類)、烏龍茶 (1 種類)、ジャスミン茶 (1 種類)、玄米茶 (1 種類)、紅茶 (2 種類) を入手し、分析を実施した。いずれも、PFNA がバックグラウンドで検出されるが、これも 15 ng/L 以下と判断した。目標値以下であるがトレースレベルは、PFHxA (緑茶 2 検体)、PFOA (緑茶 2 検体、紅茶 1 検体)、PFBS (緑茶 3 検体) が検出された。次に、フルーツジュース (9 種類)、野菜ジュース (3 種類) を検討した結果、上記と同様となった。トレースレベルとして、PFHpA (フルーツジュース 1 検体、野菜ジュース 1 検体)、PFOA (野菜ジュース 3 検体)、PFOS (野菜ジュース 1 検体) が検出された。本検討では、対象とした試料すべてにおいて、5 ng/L (PFPeA, PFHxA, PFHpA, PFNA は 15 ng/L) 以下という結果となった。

D. 考察

昨年度に引き続き、食品からの PFCs ヒト曝露調査の基礎的検討を進めてきた。近年では EFSA から、総合的な食品分析 (PFCs トータル) の結果に基づく、リスクアセスメントが必要であることが検討されている。

本研究では、LC-MS/MS による PFCs の分析法に関して、再評価を行った。今回、主課題としたのは、飲料水などの食品を対象として検討を進めた。前処理において、図 1 のプロトコール (他の食品も考慮している：昨年度までの報告) に基づいて、試料を 35 mL とした。バックグラウンドの測定結果では、PFPeA, PFHxA, PFHpA, PFNA において 0.1~0.5 ng/L 程度のピークが検出された (図 6)。そのため、定量する目標値は上記の化合物について、15 ng/L とし、それ以外の PFCs を 5 ng/L と設定した。本手法を用いて、国内で入手可能な飲料水 (ボトル)、お茶、野菜ジュース、フルーツジュースを測定した結果、すべてにおいて、目標値以下であっ

た。しかしながら、PFCsの化合物によってはLOQ付近(0.1~1 ng/L)でピークが観察されるものもあった。いずれにおいても、さらなる検討が必要と考えられる。しかしながら、図5のように既報のデータ(水道水)を取りまとめると、50 ng/Lで10%程度、5 ng/Lで30%程度の最大検出例を想定すれば、食品のばく露評価として、飲料食品は5 ng/L程度で評価することが妥当と考える。

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による分析では、16種類のPFCsの一斉分析を提案する。また、今後はEFSAの報告から17種類(PFBA, PFPeA, PFHxA, PFHpA, PFOA, PFNA, PFDA, PFUnDA, PFDoDA, PFTTrDA, PFTeDA, PFBS, PFHxS, PFHpS, PFOS, PFDS, FOSA)を対象とすることが望まれる。

・飲料食品35 mLに対して、目標とする定量値の下限を5 ng/Lとする。また、PFPeA, PFHxA, PFHpA, PFNAにおいては前処理でのバックグラウンド考慮して、15 ng/Lとする。

・国内で市販される飲料水(ボトル)、お茶、野菜ジュース、フルーツジュースを分析した結果、すべて目標とする定量値の下限以下であった。その一方で、LOQに近い値で数検体は検出された。しかし、それらについては更なる検討が必要と思われる。

F. 研究発表

1. 論文発表

特になし

2. 学会発表

1) Igarashi, Y., Takahashi, M., Tsutsumi, T., Akiyama, H., Inoue, K. "Development of LC-MS/MS method for the determination of

perfluorocompounds in foods and assessment of human exposure from Japanese food style" DIOXIN 2019, Aug. 25-30, Kyoto International Conference Center (2019)

2) 五十嵐由樹, 高橋未来, 堤 智昭, 穠山 浩, 井之上浩一: 食品中の有機フッ素化合物の摂取量推定を目的としたLC-MS/MSによる一斉分析法の開発 第115回日本食品衛生学会(東京), 2019年10月

3) 五十嵐由樹, 高橋未来, 堤 智昭, 穠山 浩, 井之上浩一: 国内飲料中の有機フッ素化合物(PFCs)の一斉分析 日本薬学会第140年会(京都), 2020年3月

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), 20 April 2020, <https://www.efsa.europa.eu/en/consultations/cal/public-consultation-draft-scientific-opinion-risks-human-health>.

2) Kaboré HA, Vo Duy S, Munoz G, Méité L, Desrosiers M, Liu J, Sory TK, Sauvé S. Worldwide drinking water occurrence and levels of newly-identified perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances. *Sci. Total. Environ.* 616-7, 1089-1100. (2018)

3) Harrad S, Wemken N, Drage DS, Abdallah MA, Coggins AM. Perfluoroalkyl Substances in Drinking Water, Indoor Air and Dust from Ireland: Implications for Human Exposure. *Environ. Sci. Technol.* 53, 13449-13457. (2019)

4) Ünlü Endirlik B, Bakır E, Boşgelmez İİ, Eken A, Narin İ, Gürbay A. Assessment of perfluoroalkyl substances levels in tap and bottled water samples from Turkey. *Chemosphere* 235, 1162-1171. (2019)

5) Corder A, De La Rosa VY, Schaidt LA, Rudel RA, Richter L, Brown P. Guideline levels for PFOA and PFOS in drinking water: the role of scientific uncertainty, risk assessment decisions, and social factors. *J. Expo. Sci. Environ. Epidemiol.* 29, 157-171. (2019)

固相抽出カートリッジ
(Presep® PFC- II , 60 mg/3 mL)

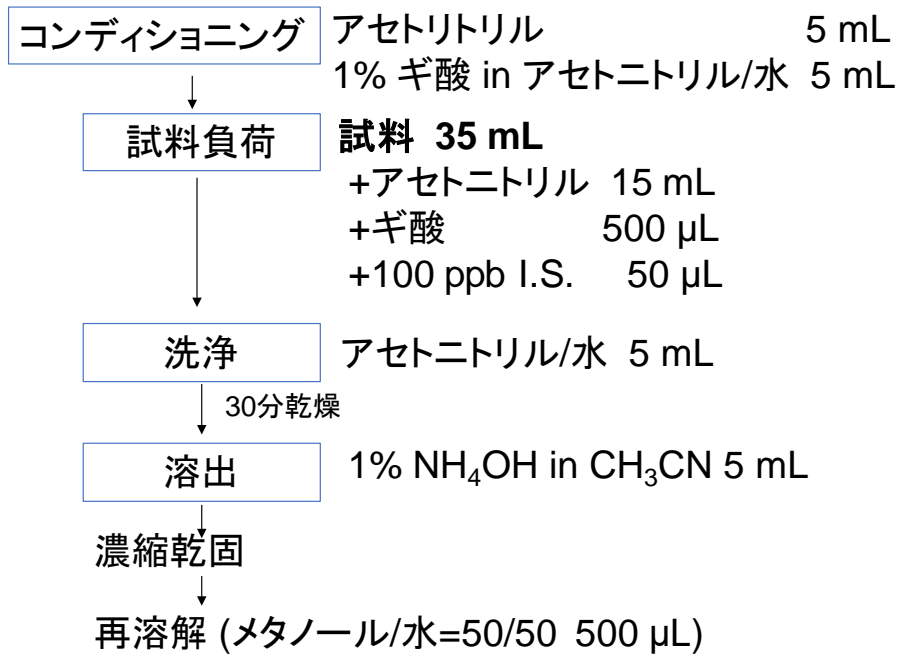


図 1. 前処理のプロトコール

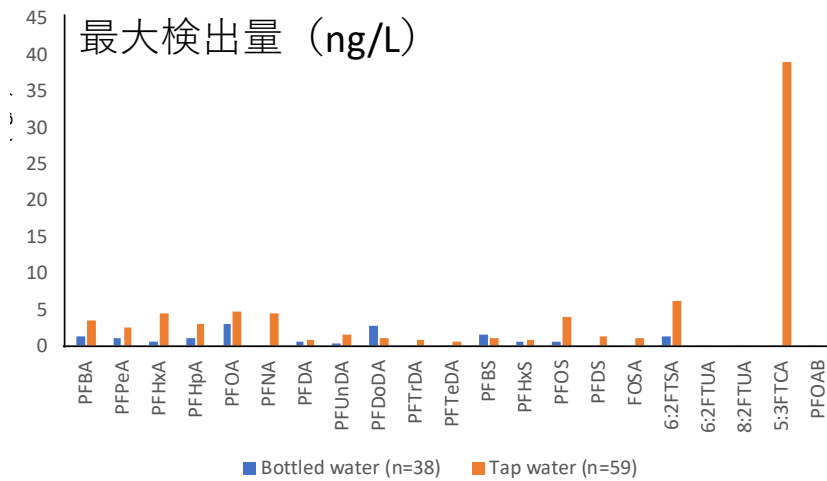
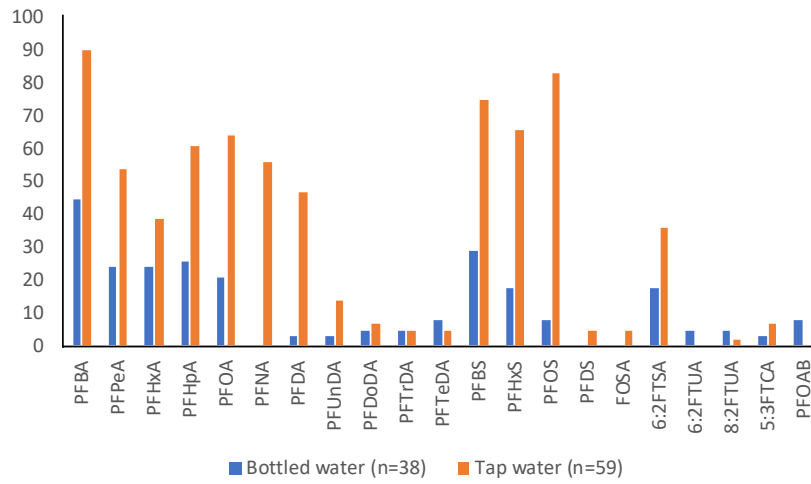


図2. Kaboréらによる報告例
Sci Total Environ. 2018 Mar;616-617:1089-1100.

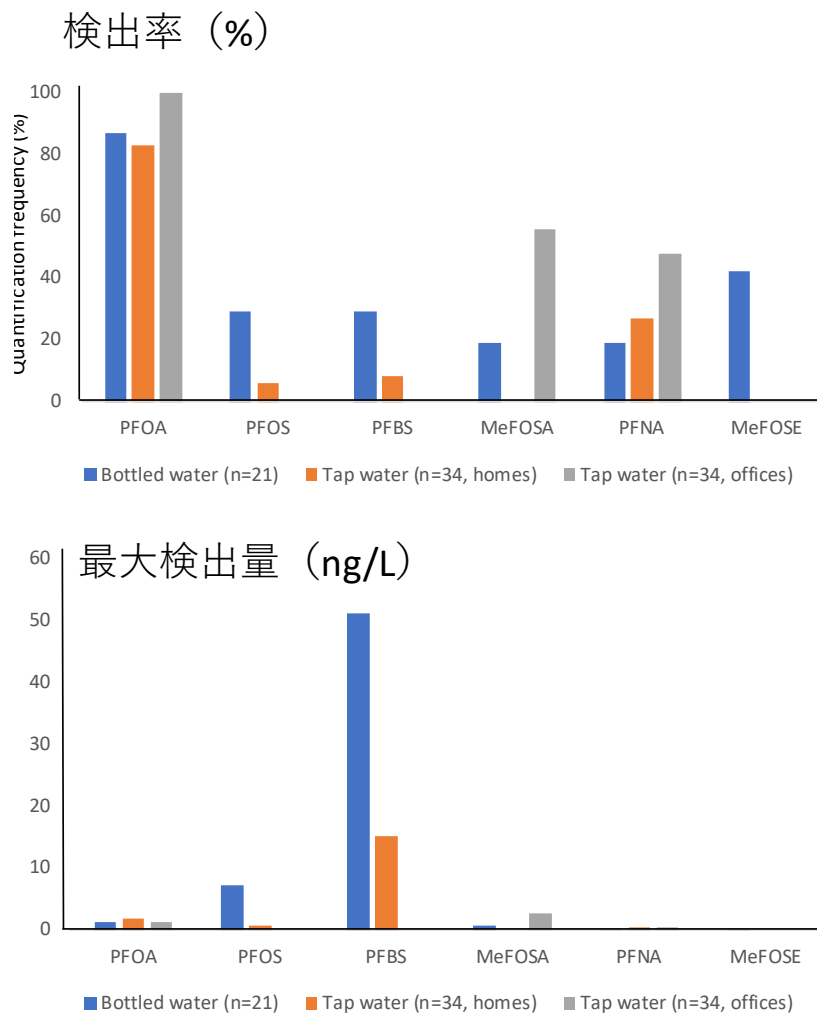


図 3. Harrad らによる報告例
Environ Sci Technol. 2019 Nov 19;53(22):13449-13457.

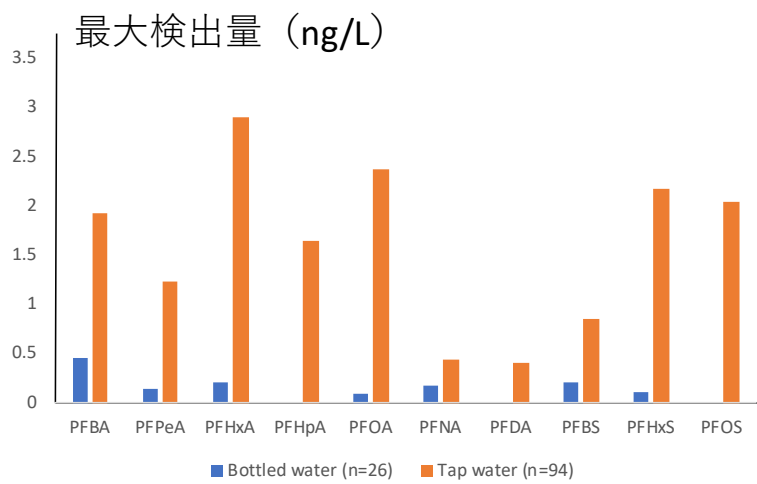
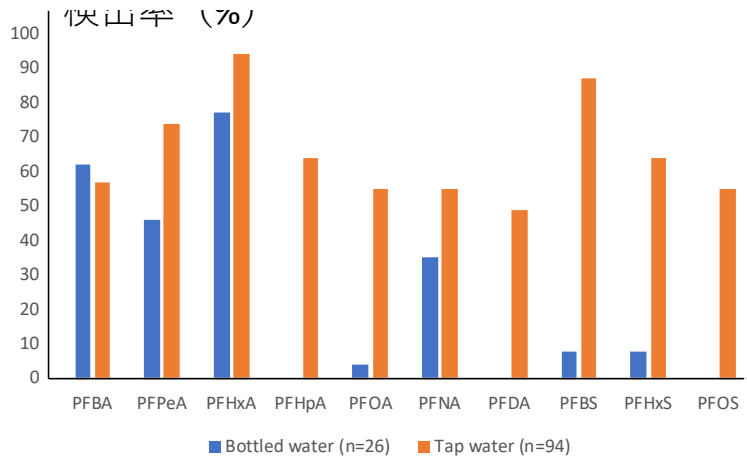


図 4. Ünlüらによる報告例
Chemosphere. 2019 Nov;235:1162-1171.

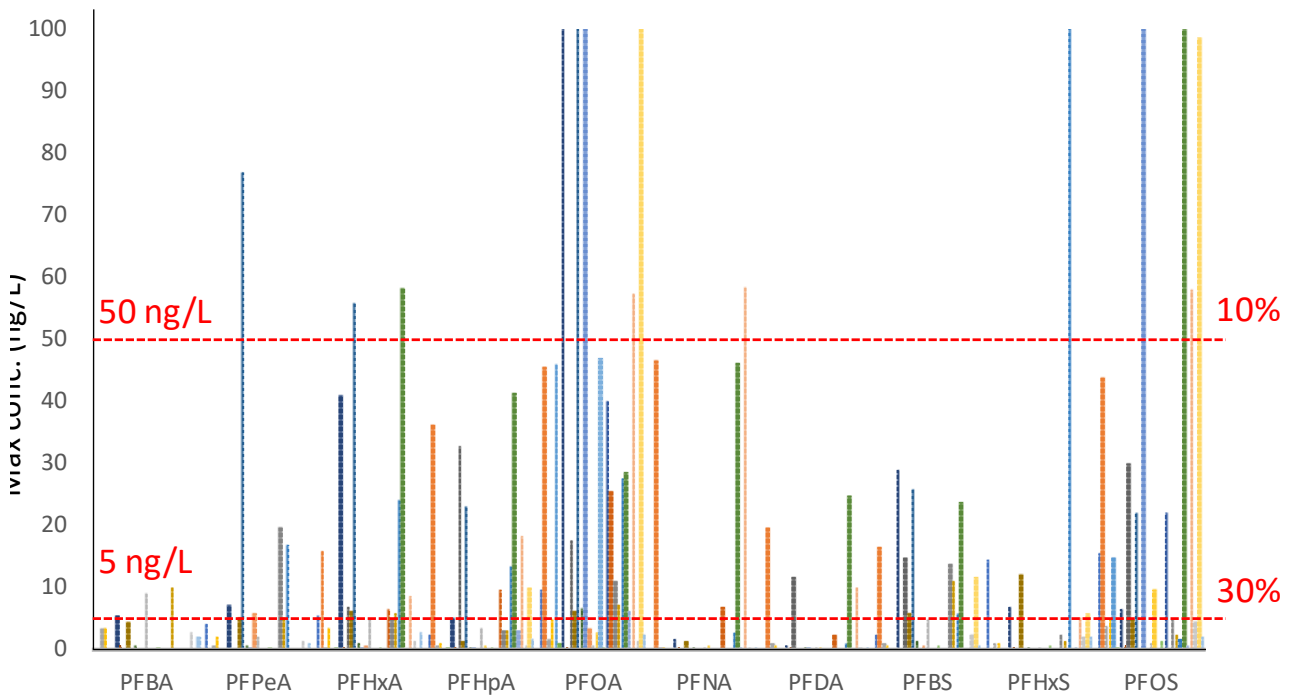
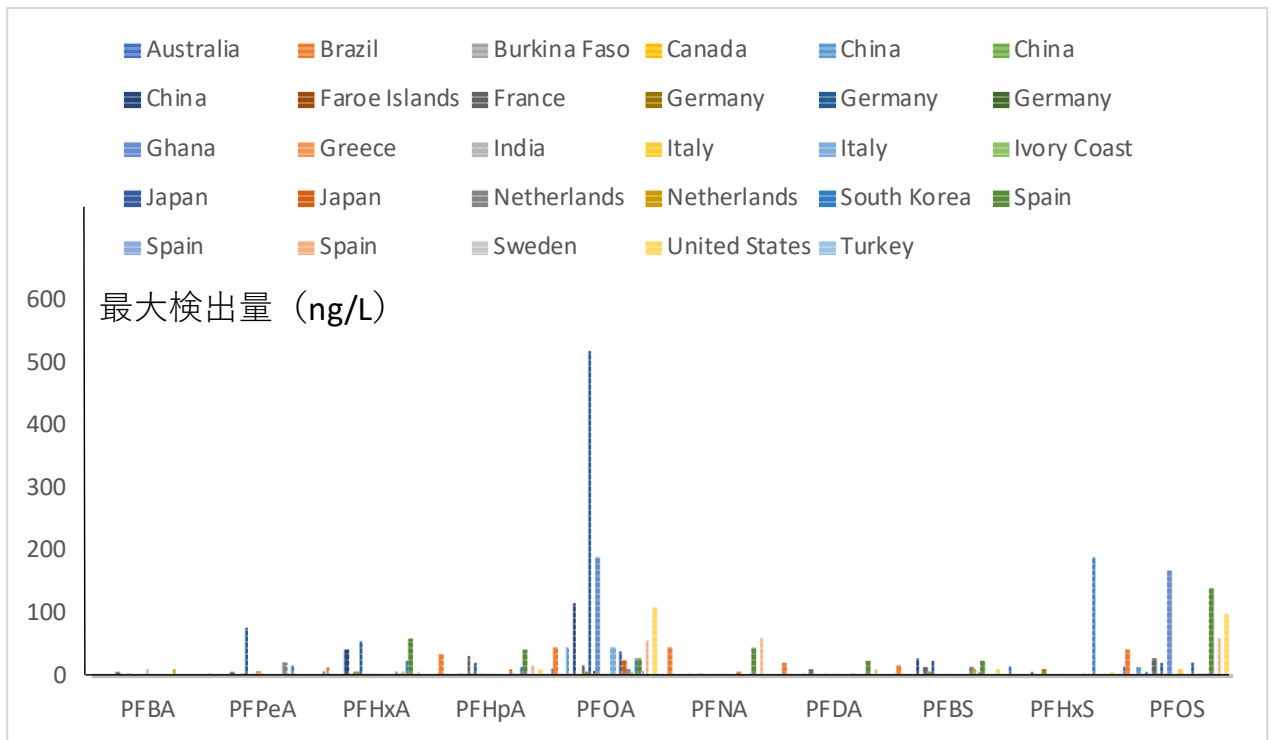


図 5. 水道水における PFCs 濃度 (最大値) レベル⁴⁾

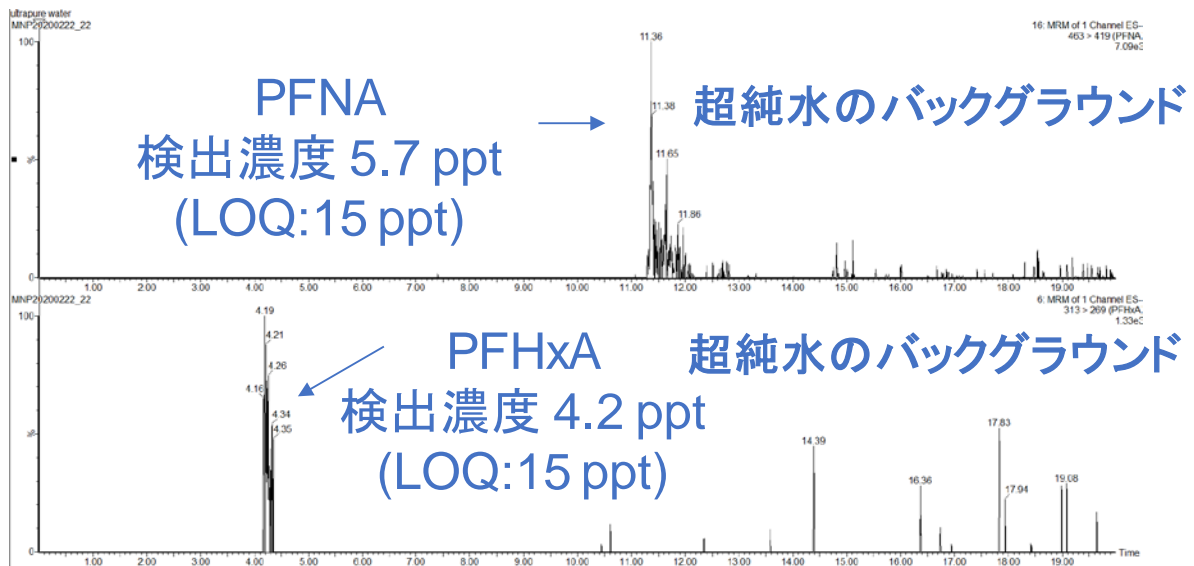


図 6. 前処理過程に伴うバックグラウンド

水

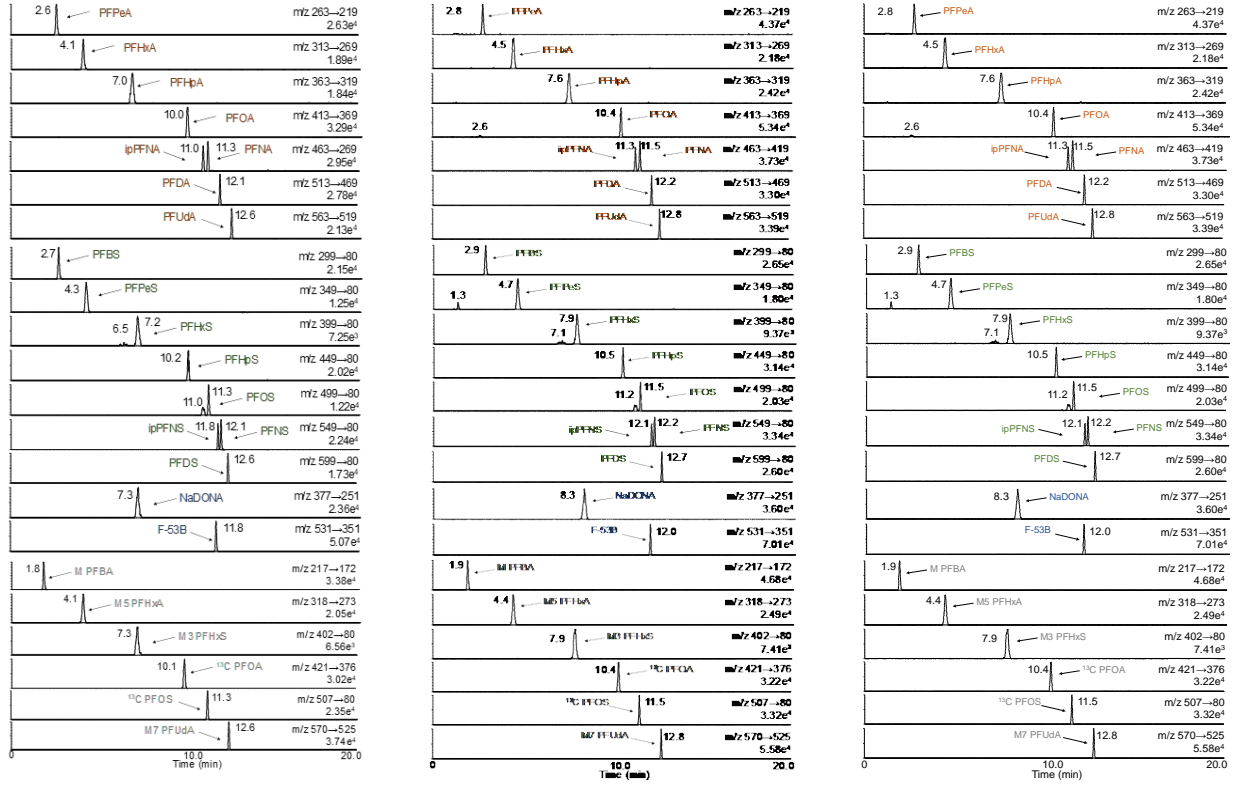


図 7. MRM クロマトグラム (添加回収 : 140 ng/L)

表 1. 分析対象 PFCs 及び LC-MS/MS 分析条件

Compounds			Precursor ion (<i>m/z</i>)	Quantitative ion (<i>m/z</i>)	Cone Voltage (V)	Collision energy (eV)	LOD (ng/mL)	LOQ (ng/mL)	I.S.	Coefficient of determination R ²
Functional group	Number	Name								
-COOH	C ₄	PFPeA	263	219	20	10	0.4	0.8	¹³ C ₅ PFHxA	0.999
	C ₅	PFHxA	313	269	20	10	0.4	0.8	¹³ C ₅ PFHxA	0.999
	C ₆	PFHpA	363	319	20	10	0.4	0.8	¹³ C ₅ PFHxA	0.999
	C ₇	PFOA	413	369	20	10	0.1	0.2	¹³ C ₈ PFOA	0.999
	C ₈	PFNA	463	419	25	10	0.8	1.6	¹³ C PFOA	0.999
	C ₉	PFDA	513	469	25	10	0.1	0.2	¹³ C ₇ PFUdA	0.999
	C ₁₀	PFUdA	563	519	25	10	0.1	0.2	¹³ C ₇ PFUdA	0.999
-SO₃H	C ₄	PFBS	299	80	55	30	0.1	0.2	¹³ C ₃ PFHxS	0.999
	C ₅	PFPeS	349	80	55	35	0.1	0.2	¹³ C ₃ PFHxS	0.999
	C ₆	PFHxS	399	80	60	40	0.1	0.2	¹³ C ₃ PFHxS	0.999
	C ₇	PFHpS	449	80	65	45	0.1	0.2	¹³ C ₃ PFHxS	0.999
	C ₈	PFOS	499	80	65	50	0.1	0.2	¹³ C ₈ PFOS	0.999
	C ₉	PFNS	549	80	60	50	0.1	0.2	¹³ C ₈ PFOS	0.999
	C ₁₀	PFDS	599	80	65	50	0.1	0.2	¹³ C ₈ PFOS	0.999
Other	C ₆	NaDONA	377	251	25	10	0.1	0.2	¹³ C ₅ PFHxA	0.999
	C ₈	F-53B	531	351	50	25	0.1	0.2	¹³ C ₈ PFOS	0.999

表 2. LC-MS/MS 分析条件

LC/MS	ACQUITY UPLC H-Class PLUS/Xevo TQD (Waters Co., Ltd.)
Column	InertSustain C8 (2.1 × 100 mm, 3 μm, GL Sciences Inc.)
Mobile phase (Gradient A/B)	20 mM ammonium acetate in water(A)/methanol(B) (A/B: 45/55(0-3 min)→42/58(6 min)→10/90(11 min) →2/98(15-18 min)→45/55(18.1-20 min))
Column temperature	40°C
Flow rate	0.2 mL/min
Injection volume	10 μL
Ion mode	ESI negative mode
Capillary voltage	2.0 kV
Source temperature	150°C
Desolation temperature	400°C

表 3. 既報による水道水の PFCs レベル (ng/L) ⁴⁾

Country	PFBA	PFPeA	PFHxA	PFHpA	PFOA	PFNA	PFDA	PFBS	PFHxS	PFOS	References
Australia		1.17–4.23	0.64–5.53	0.90–2.54	0.54–9.66			0.72–2.52	1.20–14.4	0.76–15.6	Thompson et al. (2011)
Brazil			n.d.–15.90	5.21–36.11	2.98–45.62	6.54–46.75	10.39–19.65	0.48–16.48	<2.3	4.58–43.83	Schwanz et al. (2016)
Burkina Faso	0.78–3.52	0.24–0.76	0.24–0.53	0.13–0.66	0.22–1.89	0.12–0.35	0.12–0.98	0.12–0.96	0.12–0.97	0.12–3.85	Kaboré et al. (2018)
Canada	0.54–3.58	0.20–2.24	0.28–3.49	0.17–0.96	0.25–4.86	0.14–0.47	0.14–0.78	0.13–0.87	0.16–0.97	0.19–4.99	Kaboré et al. (2018)
China					0.1–45.9					0.1–14.8	Jin et al. (2009)
China			0.11–0.12	0.14–0.21	0.10–0.92	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	0.24–0.30	Zhang et al. (2011)
China	0.2–5.6	0.8–7.2	1.0–41.2	1.1–5.2	5.6–115.4	0.4–1.8	0.3–0.6	1.1–29.0	2.9–6.9	1.6–6.67	Lu et al. (2017)
Faroe Islands	0.570–0.820	<0.029	<0.067–0.080	0.208–0.220	0.230–0.250	0.160–0.170	0.027–0.032	<0.016	0.028–0.047	0.170–0.610	Eriksson et al. (2013)
France			5.78–6.81	12.89–32.87	8.75–17.55	<2.1	<3.1–11.87	1.99–14.98	<2.3	11.99–29.99	Schwanz et al. (2016)
Germany	1.5–4.4	1.4–5.2	1–6.4	1.3–1.5	1.1–6.1	<1–1.4	<1	1.2–5.8	1.1–12.1	1.0–4.7	Gellrich et al. (2013)
Germany		3–77	3–56	2–23	22–519			3–26		3–22	Skutlarek et al. (2006)
Germany	0.54–0.57	0.51–0.59	0.91–0.93	0.16–0.21	5.80–6.50	0.30–0.48	0.24–0.26	1.23–1.30	0.04–0.06		Shafique et al. (2017)
Ghana		0.03–0.09	0.01–0.08	0.06	66–190		0.05–0.08			16.2–168	Essumang et al. (2017)
Greece		1.0–5.9	<0.6–0.7	<0.6	0.8–3.63	<0.6	<0.6	<0.6–0.7	<0.6	<0.6	Zafeiraki et al. (2015)
India	0.06–9.15	0.43–2.15	0.80–4.90	0.46–3.46	0.05–0.76	0.04–0.22	0.01–0.10	0.78–4.87	0.02–0.08	0.02–1.13	Sharma et al. (2016)
Italy				0.3–0.8	1.0–2.9	0.3–0.7	0.1–0.3			6.2–9.7	Loos et al. (2007)
Italy					2–47						Castiglioni et al. (2015)
Ivory Coast	0.16–0.28	0.25–0.36	0.25–0.38	0.14–0.15	0.30–0.35	<0.1	n.d.	0.12–0.74	0.21–0.82	0.23–1.32	Kaboré et al. (2018)
Japan					2.3–40					0.16–22	Takagi et al. (2008)
Japan			1.81–6.57	1.78–9.53	6.17–25.55	0.812–7.03	0.308–2.50				Shiwaku et al. (2016)
Netherlands		0.8–19.8	2.4–4.9	1.0–3.0	1.4–11.1	<0.6	<0.6	0.7–13.7	0.7–2.3	3.0–5.0	Zafeiraki et al. (2015)
Netherlands	8.6–10	4.9–5.1	1.6–5.9	2.1–3.2	1.9–7.1	<0.5	<0.5	2.5–11	0.6–1.3	1.1–2.6	Brandsma et al. (2019)
South Korea		0.874–17	0.567–24.1	0.382–13.5	0.755–27.7	0.222–2.95	0.167–0.947	0.338–5.738	0.381–189.6	0.315–1.78	Park et al. (2018)
Spain			13.81–58.21	4.08–41.58	3.85–28.75	8.71–46.33	11.57–24.99	2.82–23.82	<2.3	1.99–140.48	Schwanz et al. (2016)
Spain			<0.87	0.64–3.02	0.32–6.28	0.22–0.52	<0.82		<0.18–0.28	0.39–0.87	Ericson et al. (2008)
Spain			0.18–8.55	0.53–18.40	0.85–57.43	0.15–58.21	0.18–10.00		0.02–5.30	0.12–58.12	Ericson et al. (2009)
Sweden	0.364–2.92	0.856–1.50	0.066–1.35	0.043–0.678	0.071–1.50	0.022–0.308	0.058–0.148	0.007–2.315	0.026–2.15	0.026–4.64	Filipovic and Berger, (2015)
United States				0.64–10.0	2.5–108			2.7–11.7	0.77–6.0	1.9–98.6	Dasu et al. (2017)
Turkey	0.27–1.93	0.08–1.23	0.08–2.90	0.08–1.65	0.10–2.37	0.07–0.44	0.08–0.41	0.11–0.85	0.10–2.18	0.09–2.04	Ünlü et al. (2019)

表 4. 添加回收実験（飲料水）

Analytes	Recovery test (% , n=3)			
	20 ng/L	35 ng/L	70 ng/L	140 ng/L
PFPeA	136.7±4.8	100.7±4.4	117.1±5.8	101.0±0.2
PFHxA	130.7±4.1	111.3±7.3	103.1±0.8	93.8±0.4
PFHpA	124.1±2.4	97.9±9.1	108.2±2.9	80.0±0.1
PFOA	90.5±4.6	91.4±4.8	86.7±1.5	89.1±0.7
PFNA	94.6±3.0	74.9±3.1	87.4±3.7	101.0±0.3
PFDA	103.2±3.5	107.7±2.8	106.3±2.9	101.0±0.4
PFUdA	104.5±4.7	98.3±1.6	106.3±2.6	94.2±0.4
PFBS	105.0±10.2	96.3±7.6	99.0±1.7	99.6±0.1
PFPeS	103.4±8.9	106.9±7.8	102.1±4.1	104.0±0.2
PFHxS	94.4±16.2	95.1±2.8	100.3±1.8	95.6±0.4
PFHpS	98.7±7.7	98.9±6.5	101.4±3.7	98.5±0.4
PFOS	103.2±7.0	100.8±0.9	102.3±2.9	94.5±0.5
PFNS	113.0±6.7	103.2±3.1	101.2±3.2	101.0±0.3
PFDS	114.6±2.9	103.2±6.8	100.4±4.6	97.0±0.5
NaDONA	93.4±0.8	89.6±3.2	101.9±5.3	95.6±0.2
F-53B	96.6±4.1	92.8±0.7	105.3±1.0	96.3±0.2

表 5. 添加回收実験（緑茶）

Analytes	Recovery test (% , n=3)		
	35 ng/L	70 ng/L	140 ng/L
PFHxA	94.4±8.7	98.7±2.3	102.2±0.4
PFHpA	156.1±3.8	93.9±3.7	105.0±0.4
PFOA	89.7±5.0	96.5±6.7	103.0±0.1
PFNA	47.5±10.9	70.5±4.2	94.2±0.3
PFDA	91.7±2.3	90.6±2.8	102.0±0.3
PFUdA	103.5±2.6	102.7±3.9	97.8±0.3
PFBS	100.1±5.8	93.4±4.6	96.2±0.4
PFPeS	101.1±6.2	91.2±1.4	98.7±0.5
PFHxS	100.0±6.7	91.8±0.8	85.8±0.1
PFHpS	97.3±2.5	98.9±3.6	95.9±0.3
PFOS	100.0±0.6	100.4±1.3	97.7±0.5
PFNS	100.9±3.2	108.6±1.1	101.0±0.4
PFDS	108.1±6.2	109.8±3.4	99.0±0.6
NaDONA	95.7±2.8	78.3±2.7	94.3±0.4
F-53B	105.9±1.5	104.4±3.6	97.9±0.3