

## 報告 (Note)

## マイクロプラスチックに吸着した有機フッ素化合物の分析

三島聡子  
(調査研究部)

## Analysis of perfluorinated compounds on microplastics

Satoko MISHIMA  
(Research Division)

キーワード：マイクロプラスチック，有機フッ素化合物，分析

## 1 はじめに

水環境中の直径 5 mm 以下のプラスチック粒子，マイクロプラスチック (MP) 汚染については，近年，世界的に問題となっており<sup>1-3)</sup>，相模湾においても，MP 汚染の現況把握が必要となってきた。また，MP については，海洋中の極低濃度の POPs (残留性有機汚染物質) の MP への吸着・濃縮，MP による遠隔地への POPs の到達<sup>4,5)</sup>及び海洋生態系への影響の懸念についても高まっている<sup>6,7)</sup>。POPs のうち，ペルフルオロオクタンスルホン酸 (PFOS) については，ストックホルム条約 (POPs 条約) において世界的に製造・輸出入・使用の規制等が規定され，化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律 (化審法) の第一種特定化学物質に指定され，製造及び輸入が事実上禁止されているが，引地川において県内の他の河川と比較して高濃度で検出されており<sup>8)</sup>，相模湾の MP への吸着・濃縮が懸念される。そこで，PFOS 等の有機フッ素化合物 (PFCs) について，MP への吸着量を測定するため，MP に吸着した有機フッ素化合物の分析法を検討した。

## 2 方法

## 2.1 対象物質及び試薬等

本研究で対象とした PFCs の 14 物質，ペルフルオロヘキサンスルホン酸 (PFHxS)，ペルフルオロヘプタンスルホン酸 (PFHpS)，ペルフルオロノナンスルホン酸 (PFNS)，ペルフルオロデカンスルホン酸 (PFDS)，ペルフルオロヘキサ酸 (PFHxA)，ペルフルオロヘプタン酸 (PFHpA)，ペルフルオロノナン酸 (PFNA)，ペルフルオロデカン酸 (PFDA)，ペルフルオロ

ウンデカン酸 (PFUnDA)，ペルフルオロドデカン酸 (PFDoDA)，ペルフルオロトリデカン酸 (PFTrDA) 及びペルフルオロテトラデカン酸 (PFTeDA) については，Wellington Laboratories, Inc. の 10 µg/mL 混合標準液を用いた。分析全般における補正のためのサロゲート内標準物質については，PFOS の 8 箇所の炭素を <sup>13</sup>C で置換された安定同位体置換物質の <sup>13</sup>C<sub>8</sub>-PFOS は，Wellington Laboratories, Inc. 製の 2 µg/ml 標準液を，PFOA の 8 箇所の炭素を <sup>13</sup>C で置換された <sup>13</sup>C<sub>8</sub>-PFOA については，Cambridge Isotope Laboratories, Inc. 製の 50 µg/mL 標準液を使用した。抽出溶媒に使用したメタノールは和光純薬工業(株)製の PFOS・PFOA 分析用を使用した。水試料から対象物質を抽出するための固相カートリッジは，既報<sup>9-11)</sup>の水中の PFCs 分析で使用されている和光純薬(株)製の Presep PFC-II，クリーンアップのための固相カートリッジについては，昭和電工(株)製の Autoprep MF-1 (100 mg/1 mL) 及びジーエルサイエンス(株)製の InertSep GC(150 mg/3 mL)を使用した。液体クロマトグラフ及び質量分析計 (LC/MS/MS) の溶離液に用いたメタノール及び酢酸アンモニウムについては和光純薬工業(株)製の LC/MS 用を用いた。超純水は和光純薬工業(株)製の PFOS・PFOA 分析用を使用した。

## 2.2 定量方法

PFCs の定量には LC/MS/MS (株島津製作所製 LCMS-8050) を用いた。LC/MS/MS の液体クロマトグラフ条件及び質量分析条件を表 1 に，ブリーカーサーイオン及びプロダクトイオンを表 2 に示す。プロダクトイオンについては測定イオ

表1 液体クロマトグラフ条件及び質量分析条件

(1) 液体クロマトグラフ条件 (Shimadzu Nexera X2)	
カラム	Acquity UPLC™ BEH Shield RP18 (1.7µm 2.1mm×100mm)
流動相	A: 5mM 酢酸アンモニウム水溶液 B: アセトニトリル
グラジエント条件	80%A(0.5min)-(liner gradient 4.5min)-95% B(3min)
流量	200µL/min
オープン温度	40 °C
注入量	5µL
(2) 質量分析条件 (Shimadzu LCMS-8050)	
イオン化モード	Negative-ESI
インターフェース電圧	4kV
ヒートブロック温度	400 °C
インターフェース温度	300 °C
デソルベーションライン温度	250 °C
ドライガス流量	10L/hr
ヒーティングガス流量	10L/hr
ネブライザーガス流量	3L/min

表2 プリカーサーイオン及びプロダクトイオン

PFCs	炭素数	m/z 測定対象物質		定量 下限値 (ng/mL)	m/z サロゲート		
		プリカーサー イオン	プロダクトイオン 測定イオン 確認イオン		プリカーサー イオン	プロダクト イオン 測定イオン	
PFHxS	6	399.0	> 80.1	98.9	0.06		
PFHpS	7	449.0	> 80.1	98.9	0.08		
PFOS	8	499.0	> 80.1	98.9	0.06	<sup>13</sup> C <sub>8</sub> -PFOS	507.0 > 80.1
PFNS	9	549.0	> 80.1	98.9	0.06		
PFDS	10	599.0	> 80.1	98.9	0.07		
PFHxA	6	313.1	> 269.0	119.0	0.11		
PFHpA	7	363.1	> 319.0	169.0	0.10		
PFOA	8	413.1	> 369.0	169.0	0.11		
PFNA	9	463.1	> 419.0	169.0	0.15		
PFDA	10	513.1	> 469.0	169.0	0.09	<sup>13</sup> C <sub>8</sub> -PFOA	415.1 > 370.0
PFUnDA	11	563.1	> 519.0	169.0	0.09		
PFDoDA	12	613.1	> 569.0	169.0	0.09		
PFTTrDA	13	663.1	> 619.0	169.0	0.11		
PFTeDA	14	713.1	> 669.0	169.0	0.10		

ンと確認イオンを設定した。PFHxS, PFHpS, PFNS 及び PFDS のサロゲート内標準物質には <sup>13</sup>C<sub>8</sub>-PFOS を, PFHxA, PFHpA, PFNA, PFDA, PFUnDA, PFDoDA, PFTTrDA 及び PFTeDA には <sup>13</sup>C<sub>8</sub>-PFOA を使用した。

### 2. 3 抽出回数

分析のフローを図1に示す。MP の分析は、既報<sup>12)</sup>にならぬ、5粒を1組とし、化学物質の溶出を防ぐため、水洗等せず、そのまま溶媒抽出した。0.1%アンモニア/メタノール溶液で抽出、濃縮した後、超純水に添加し、固相カートリッジで抽出した。海岸の砂浜から採取した MP 試料を用いて抽出回数を検討した。MP 試料からの抽出は、0.1%アンモニア/メタノール溶液 3 mL で、15 分間超音波抽出した。抽出液は、窒素吹き付けで 1 mL に濃縮し、サロゲートを 1

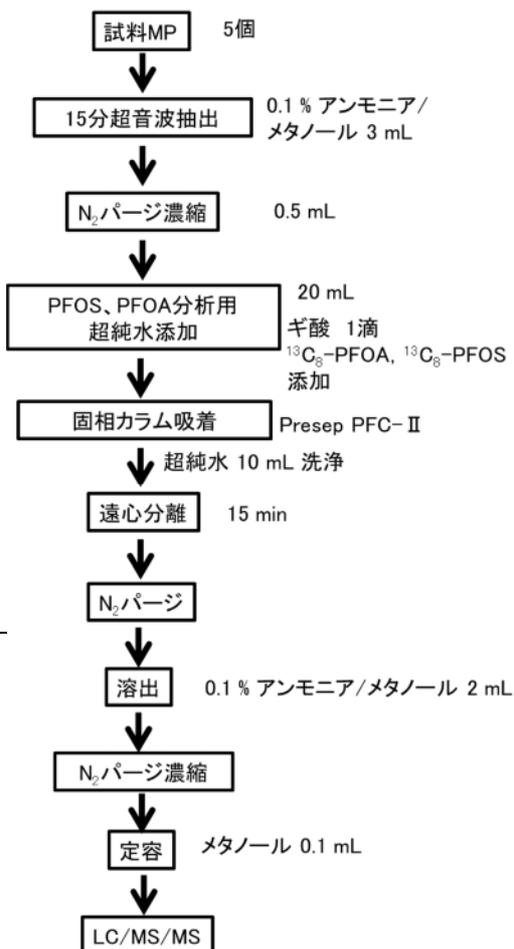


図1 分析フロー

ng 添加し、LC/MS/MS で分析した。MP 試料の材質は、一回反射 ATR 測定装置 (日本分光製 Jasco FT/IR-4600 ATR PRO ONE) により、抽出回数検討後に判別を行った。

### 2. 4 固相カートリッジ窒素ガス乾燥時間

海岸の MP 抽出溶液は、塩分を含み、そのまま LC/MS/MS に注入すると、目詰まり等が生じるので、図1の分析フローに示したように、超純水に添加し、固相カートリッジで抽出するが、固相カートリッジに水分が残っていると、溶出溶液に水分が移行し、0.1 mL 以下に濃縮するときに障害が生じたり、水と溶媒との割合が試料により差がでてしまう。固相カートリッジの水分を取り除くには、乾燥した窒素ガス吹き付けが遠心分離より多くの水分を除くことができると考えられる。松山ら<sup>11)</sup>は、0.2 mL に濃縮する

際、窒素吹き付けしながら吸引脱水を 10 min 行っているが、窒素吹き付け操作は、溶液の濃縮にも使われ、他の分析操作との窒素吹き付け装置の効率的な使用及び窒素ガスの節約の点から、3000 min<sup>-1</sup>で15分間の遠心分離によりある程度水分を取り除いてからと窒素吹き付けによる脱水乾燥を検討した。窒素ガス乾燥後の固相カートリッジの水分をヘキサンで押し出し、窒素ガスでヘキサンを留去し、得られた水分をマイクロシリンジで引き上げて水分量を測った。

## 2.5 超音波抽出・超純水添加・固相抽出操作における添加回収率

夾雑物の多い試料の前処理に関しては、有害物質分析ハンドブック<sup>13)</sup>の底質のPFOS及びPFOAの分析、既報<sup>9,10)</sup>の底質のPFCs分析で、底質のメタノール抽出液に超純水を添加し、固相抽出している。超純水を添加し固相抽出すると、塩類を含む夾雑物の除去効果があると考えられる。本分析は、最終溶液を0.1 mL以下に濃縮するので、夾雑物はなるべく除いたほうが良いため、既報にならい、同様の操作を行った。超音波抽出・超純水添加・固相抽出操作におけるPFCsの添加回収試験を行った。試料のpH調整については中堀ら<sup>14)</sup>が、逆相系及びアニオン交換系(AE系)のカートリッジについて、通水時のpHを6, 3, 2とした際のPFCsの回収率を検討したとこと、AE系のPFC IIについては、逆相系ポリマーに比べて、中性の場合のPFBSやPFPeAのような高極性物質の回収率の低下、酸性の場合のPFDSやPFTeDA低極性物質の回収率低下は抑えられる傾向にあり、本研究で対象にしたPFHxS, PFHpS, PFNS, PFDS, PFHxA, PFHpA, PFNA, PFDA, PFUnDA, PFDODA, PFTrDA, PFTeDAのpH3及びpH6サロゲートなしの回収率については、70%以上であることを報告している。本研究では、試料ごとのpHを一定にするために、ギ酸を一滴加えて、溶液のpHを約3.5にして分析した。

また、固相抽出をする際は、ガラス注射筒を使用するが、まず、その際のガラス注射筒へのPFCsの吸着量について試験した。20 mLのガラス注射筒に3%NaCl水20 mLを入れ、ギ酸1滴及びPFCsを0.5 ng添加し、固相カートリッジを通した際の固相からの溶出液及びガラス注射筒の内壁に吸着したPFCsを0.1%アンモニア/

メタノールで洗浄した溶液をLC/MS/MSで分析した。

次に、塩が共存MP、塩非共存のMPについて、本操作による回収率を比較した。ポリエチレン(PE)、ポリプロピレン(PP)の未使用製品ペレット及びポリスチレン(PS)の未使用製品フォームのMPについて、全操作におけるPFCsの添加回収試験を行った。各MPとも、あらかじめ超純水及び3%塩化ナトリウム水溶液中に入れて1日攪拌した後、乾燥させたものを使用した。各MPについて、5粒を1組として5組取り、各組の1粒にPFCsを0.05 ng添加した。各組について、0.1%アンモニア/メタノール溶液3 mLで、15分間超音波抽出をし、0.1%アンモニア/メタノール溶液を分取、同様の抽出操作を3回繰り返した。抽出液は、窒素吹き付けで0.5 mLに濃縮し、20 mL超純水の入ったガラス注射筒に加え、ギ酸を一滴加えた後、サロゲートを0.1 ng添加し、Presep PFC-IIに通液後、3000 min<sup>-1</sup>で15分間の遠心分離、窒素ガス乾燥をし、0.1%アンモニア/メタノール溶液2 mLで溶出した。溶出液は、窒素吹き付けで0.1 mLに濃縮し、LC/MS/MSで分析した。

## 2.6 クリーナップ操作における添加回収率

超音波抽出液を超純水添加して固相抽出しても、プラスチックから溶出した色素等は除去できず、LC/MS/MS分析の障害となる恐れがあったので、クリーナップカートリッジAutoprep MF-1及びInertSep GCでクリーナップを検討した。0.1%アンモニア/メタノール溶液1 mLにPFCsを0.5 ng添加し、Autoprep MF-1に通液、さらに0.1%アンモニア/メタノール4 mLを通液したもの及び0.1%アンモニア/メタノール溶液2 mLにPFCsを0.5 ng添加し、InertSep GCに通液、さらに0.1%アンモニア/メタノール4 mLを通液したものにそれぞれサロゲートを0.5 ng添加し、0.1 mLに濃縮してLC/MS/MSで分析した。

また、あらかじめ3%塩化ナトリウム水溶液中に入れて1日攪拌した後、乾燥させたPE, PPの未使用製品ペレット及びPSの未使用製品フォームのMPについて、クリーナップ操作を加えた全操作におけるPFCsの添加回収試験を行った。各MPについて、5粒を1組として5

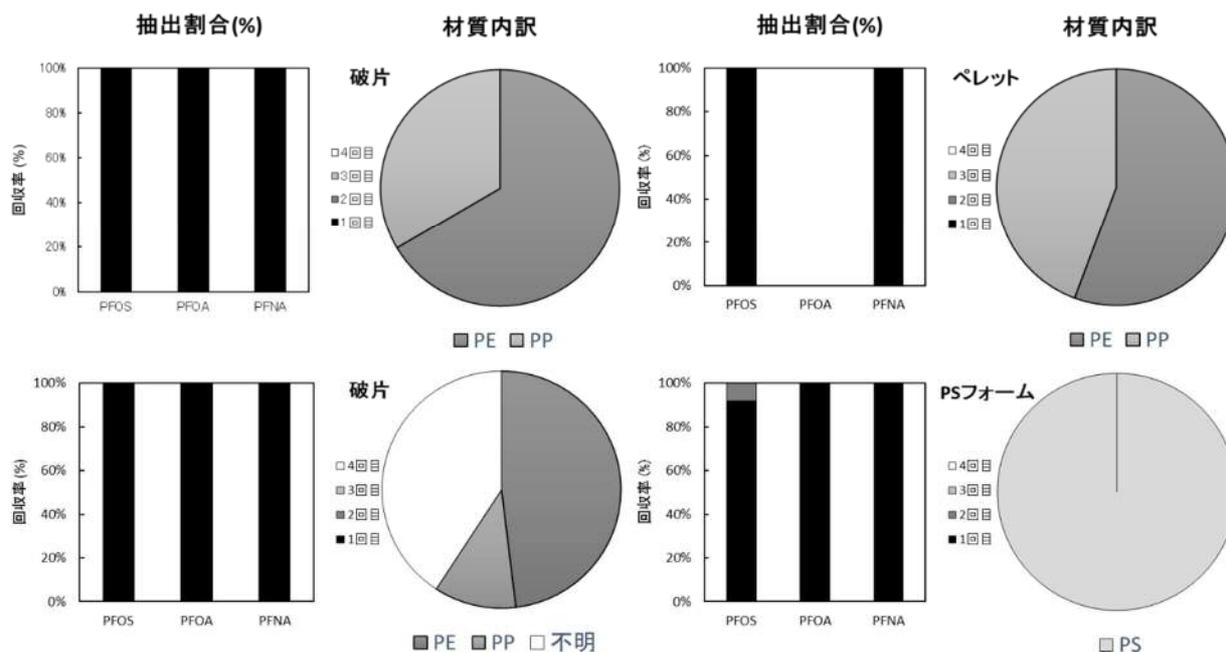


図2 採取MP試料の抽出回数

組取り,各組の1粒にPFCsを0.5 ng添加して,0.1%アンモニア/メタノール溶液3 mLで15分間超音波抽出し,抽出液を分取,同様の抽出操作を3回繰り返した。得られた抽出液に,海岸の砂浜から採取した5粒1組のMPの抽出液のうち色素が溶出し,PFCsが検出されなかった液を加え,窒素吹き付けで0.5 mLに濃縮後,20 mL超純水に加え,ギ酸一滴及びビスロゲートを0.5 ng添加し,Presep PFC-IIに通液後,3000 min<sup>-1</sup>で15分間の遠心分離,2分間の窒素ガス乾燥をし,Presep PFC-IIの下にクリーンアップカートリッジを連結させ,0.1%アンモニア/メタノール溶液2 mLで溶出,4 mLの0.1%アンモニア/メタノール溶液で固相抽出に使用したガラス注射筒を洗浄した溶液も通液して合わせ,窒素吹き付けで0.1 mLに濃縮し,LC/MS/MSで分析した。

### 3 結果及び考察

#### 3.1 抽出回数

海岸の砂浜から採取したMP試料を使って,抽出回数を検討した結果を図2に示す。破片とペレットについては,材質の重量割合が異なっても,1回目の抽出率は100%で,2回目の抽出でPFCsは検出されなかった。PSフォームについては,1回目と2回目の合計の抽出率は100%で,3回目の抽出でPFCsは検出されなかった。

また,抽出後のPSフォームを,ジクロロメタンに溶解した後,ジクロロメタン溶液をメタノール中に少量ずつ投入し,PSを再沈殿させた。メタノール溶液はろ過した後濃縮してLC/MS/MSで測定したところ,PFCsは検出されなかった。

#### 3.2 固相カートリッジ窒素ガス乾燥時間

試料を0.1 mL以下に濃縮するため,遠心分離によりある程度水分を取り除いてからと窒素吹き付けによる脱水乾燥を検討した。n=5で,検討したところ,遠心分離のみでは,水分が10.5-50.7 µL残った。試料によっては,0.1 mL以下に

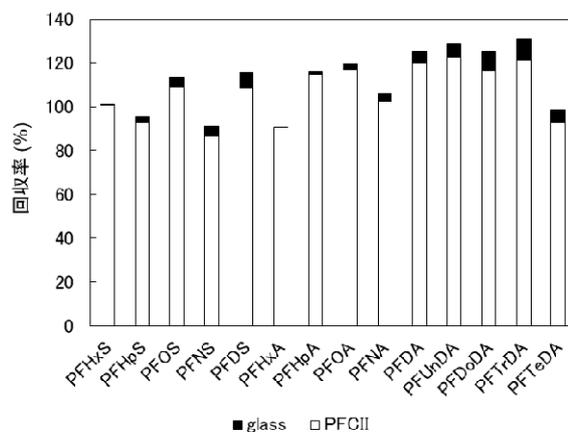


図3 ガラス注射筒の内壁に吸着したPFCs回収率及び固相カートリッジからの回収率 (n = 5)

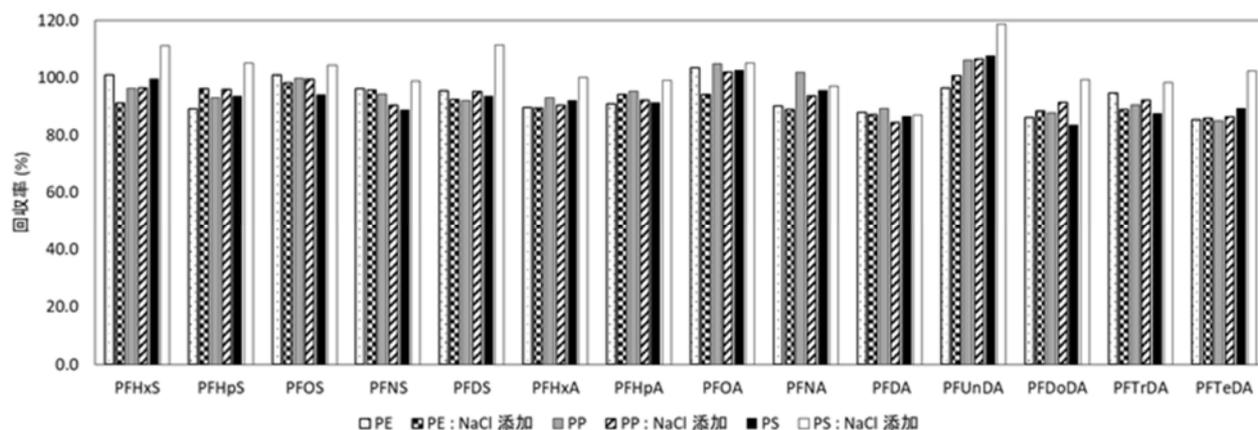


図 4 超音波抽出・超純水添加・固相抽出操作における PFCs の添加回収率 (n = 5)

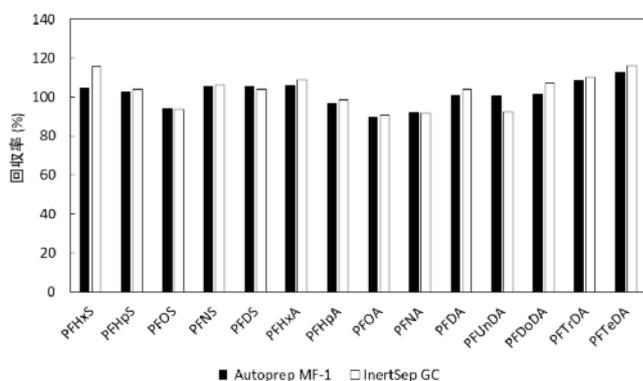


図 5 クリーンアップ操作における PFCs の添加回収率 (n = 5)

濃縮するとき障害が生じたり、水と溶媒との割合が試料により差が生じてしまうと考えられる。約 13 mL/s で 1 分間の窒素吹き付け操作を追加すると、2.2–7.0  $\mu\text{L}$ 、2 分間の窒素吹き付け操作を追加すると、1  $\mu\text{L}$  以下になった。遠心分離によりある程度水分を取り除いてから窒素吹き付けによる脱水乾燥することにより、窒素吹き付け装置の効率的な使用及び窒素ガスの節約を図りながら 0.1 mL に定容できることが分かった。

### 3.3 超音波抽出・超純水添加・固相抽出操作における添加回収率

超音波抽出・超純水添加・固相抽出操作における PFCs の添加回収試験を行った。まず、ガラス注射筒の内壁に吸着した PFCs の回収率及び固相カートリッジからの回収率を算出した。

結果を図 3 に示す。ガラス注射筒に吸着した PFCs は 9.8 % 以下、固相溶出液中の PFCs は 86.7 % 以上であった。ガラス注射筒への吸着量は 9.8 % 以下と少なかったが、回収率をなるべく上げるため、0.1 % アンモニア/メタノールで洗浄し、固相カートリッジ溶出液と合わせることにした。

塩が共存 MP、塩非共存の MP について、本操作による回収率を比較した。PE、PP の未使用製品ペレット及び PS の未使用製品フォームの MP について、超音波抽出・超純水添加・固相抽出操作における PFCs の添加回収試験を行った。ガラス注射筒は自然乾燥後、0.1 % アンモニア/メタノールで洗浄し、固相カートリッジ溶出液と合わせた。各 PFCs の添加回収率を図 4 に示す。あらかじめ 3 % 塩化ナトリウム水溶液中加入し、塩が共存している MP、塩が非共存の MP いずれにおいても回収率は 80 % 以上であった。0.1 mL の塩の濃い試料の塩の影響については、LC/MS/MS への注入を避けているので明らかではないが、本操作により、塩が共存している MP、塩が非共存の MP いずれにおいても回収率が良好であった。

### 3.4 クリーンアップ操作における添加回収率

プラスチックから溶出した色素等の除去のため、クリーンアップカートリッジ、Autoprep MF-1 及び InertSep GC について検討した。結果を図 5 に示す。PFCs を 0.5 ng 添加したものの回収率については、Autoprep MF-1 が 92.0 % 以上、

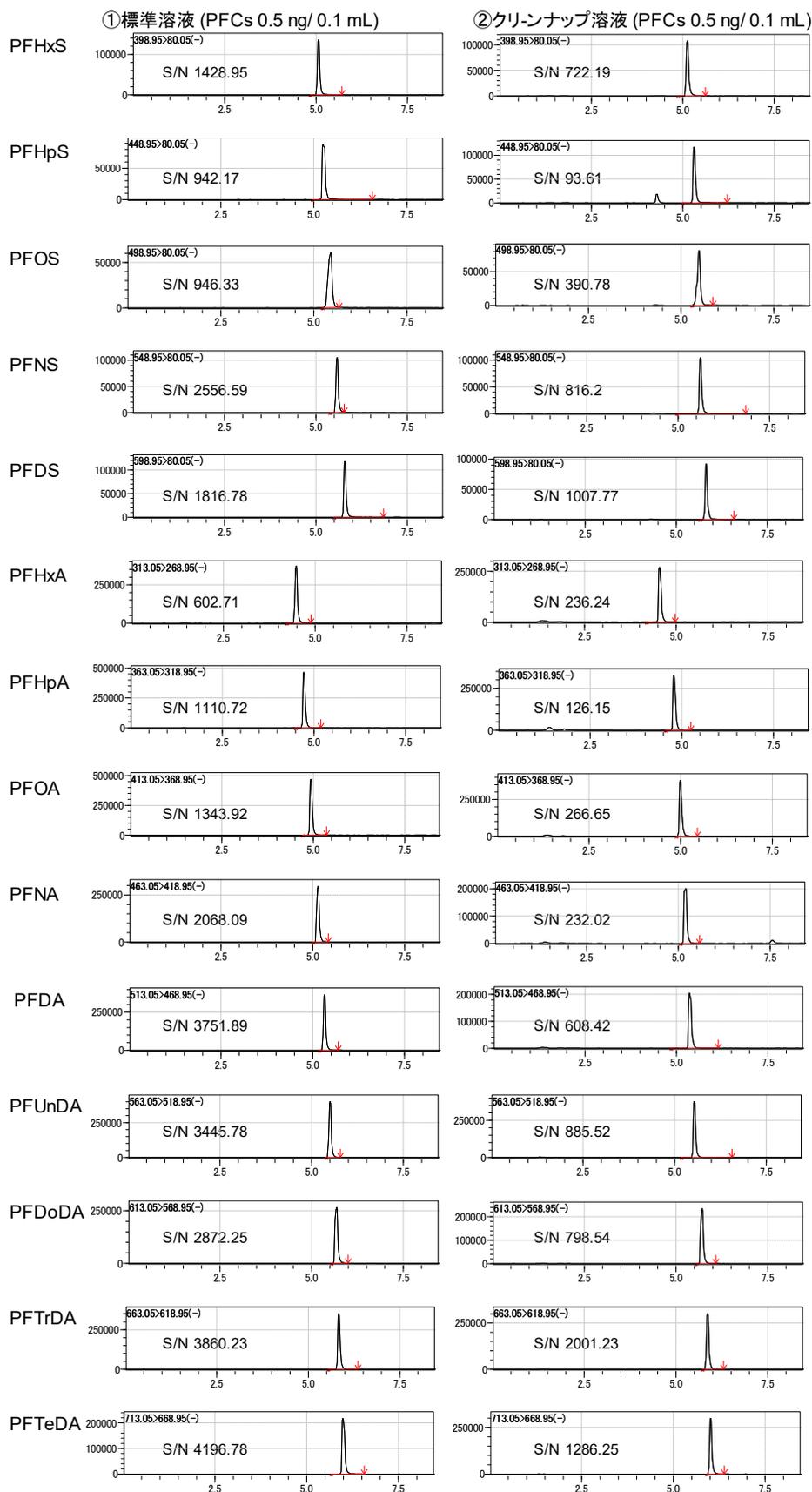


図 6 標準溶液及び標準添加クリーンアップ試料のクロマトグラム

InertSep GC が 89.4 % 以上と、ほぼ同じであった。操作性については、Autoprep MF-1 は通液量が最大 1 mL であり、Presep PFC- II の溶出液 2 mL をいったん濃縮しないと通液出来ないが、InertSep GC は、通液量を 1 mL 以上にすることが可能で、Presep PFC- II との連結操作が出来た。また、① PFCs 0.5 ng/0.1 mL の標準溶液、② 海岸 MP を超音波抽出・超純水添加・固相抽出し、色素が残った溶液を InertSep GC でクリーンアップした 0.1 mL 溶液のうち、PFCs が検出されなかった液に PFCs を 0.5 ng 添加したクロマトグラムを図 6 に示す。②のクリーンアップ試料は、S/N 値は標準溶液より減少し、PFHxA, PFHpA, PFNA, PFDA, PFUnDA, PFDODA, PFTTrDA, PFTeDA のピーク強度が弱まっている傾向があるが、クリーンアップで除ききれなかった夾雑成分によってイオン化の抑制<sup>15)</sup>が起こっているものと考えられるが、目視では色素は除去できており、面積値は、標準溶液の 80 % 以上であり、定量に障害はなかった。以上のことからクリーンアップには InertSep GC を使用することとした。

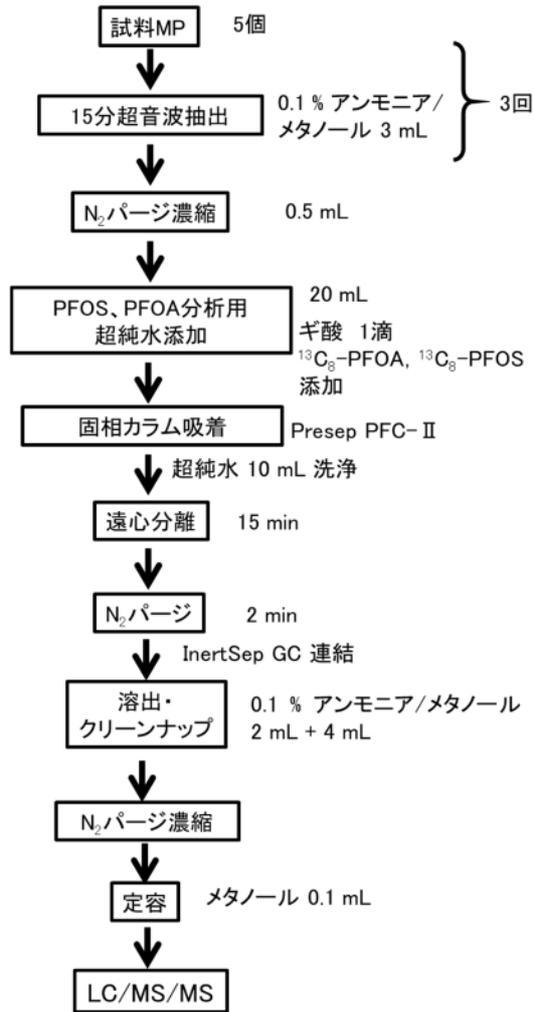


図7 全分析操作のフロー

### 3.5 分析法全操作における添加回収率

本研究で確立した分析のフローを図7に示す。PE, PPの未使用製品ペレット及びPSの未使用製品フォームのMPについて、クリーンナップ操作を加えた図7に示す全操作におけるPFCsの添加回収試験を行った。5粒1組の未使用製品MPにPFCsを0.5 ng添加し超音波抽出で得られた抽出液に、海岸の砂浜から採取した5粒1組のMPの抽出液のうち色素が溶出し、PFCsが検出されなかった液を加えたものをクリーンナップして得られた結果を表3に示す。色素も除去でき、89.4%以上の回収率が得られた。サロゲート内標準物質の<sup>13</sup>C<sub>8</sub>-PFOS及び<sup>13</sup>C<sub>8</sub>-PFOAの回収率は、環境省化学物質環境実態調査実施の手引き<sup>16)</sup>で示された50-120%の範囲内であった。また、本研究における装置検出下限値(IDL)、定量下限値も表3に示す。IDLに

表3 全操作におけるPFCsの添加回収率 (n = 5)

PFCs	PE		PP		PS		装置検出下限値 (ng/mL)	定量下限値 (ng/mL)
	回収率 (%)	相対的標準偏差 (%)	回収率 (%)	相対的標準偏差 (%)	回収率 (%)	相対的標準偏差 (%)		
PFHxS	101.1	10.0	90.9	9.9	92.5	9.2	0.03	0.06
PFHpS	108.6	7.7	107.2	9.7	103.3	12.3	0.03	0.08
PFOS	91.7	9.3	97.0	13.2	101.2	12.2	0.03	0.06
PFNS	95.2	7.1	100.9	11.0	100.4	6.3	0.03	0.06
PFDS	103.5	12.2	109.9	4.4	104.8	9.9	0.03	0.07
PFHxA	104.5	11.6	91.5	11.6	89.7	8.1	0.05	0.11
PFHpA	92.8	10.8	92.2	11.8	101.1	14.7	0.04	0.10
PFOA	103.8	10.7	94.6	13.9	105.0	12.8	0.02	0.11
PFNA	92.5	10.7	99.6	3.9	101.2	10.9	0.04	0.15
PFDA	109.6	4.6	102.1	12.3	103.7	11.7	0.04	0.09
PFUnDA	105.6	9.7	102.6	15.1	97.0	7.0	0.04	0.09
PFDoDA	98.6	11.9	94.0	14.7	94.4	16.1	0.04	0.09
PFTtDA	99.9	14.0	107.6	14.3	106.2	8.0	0.04	0.11
PFTeDA	114.1	3.7	89.4	7.8	94.3	7.5	0.04	0.10
<sup>13</sup> C <sub>8</sub> -PFOS	98.5	11.5	92.6	10.1	86.2	9.4	-	-
<sup>13</sup> C <sub>8</sub> -PFOA	91.2	11.0	96.7	9.4	94.2	15.8	-	-

ついては、S/N=10以上が得られる、検量線作成用の最低濃度(0.1 ng/mL)を7回繰り返しLC/MS/MSに導入して分析し、一連の分析値の標準偏差を求め、2倍し、有意水準とした95%信頼上限(片側)の値(1.9432)を乗じて求めた<sup>16)</sup>。定量下限値については、MPの分析は、5個を一組の試料とし、試料により重量が異なるため、一組の最終溶液0.1 mLにおいて得られた操作ブランクのピークについて、対象物質が溶出する位置でのSN比の10倍に相当するピークの濃度を定量下限値とした。

### 4 まとめ

マイクロプラスチックに吸着した有機フッ素化合物の分析において、超音波抽出と固相カラム吸着・溶出を組み合わせることにより、分析の妨害となる塩類を除去して抽出する方法を開発した。また、本方法における色素等の夾雑物のクリーンナップ方法は、Presep PFC-IIからのPFCs溶出の際、クリーンナップカートリッジInertSep GCを下に連結させるだけで簡単にクリーンナップできる方法であり、各物質の添加回収率は89.4%以上が得られた。

### 参考文献

- 1) Carpenter, E. J., Anderson, S. J., Harvey, G. R., Miklas, H. P., Peck, B. B. : Polystyrene Spherules in Coastal Waters, Science, 178(4062), 749-750(1972)
- 2) Colton, J. B., Knapp, F. D., Burns, B. R. : Plastic Particles in Surface Waters of the Northwestern Atlantic, Science, 185(9), 491-

- 497(1974)
- 3) 山下麗, 田中厚資, 高田秀重: 海洋プラスチック汚染: 海洋生態系におけるプラスチックの動態と生物への影響, 日本生態学会誌, 66(6), 51-68(2016)
  - 4) Mato, Y., Isobe, T., Takada, H., Kanehiro, H., Ohtake, C., Kaminuma, T.: Plastic Resin Pellets as a Transport Medium for Toxic Chemicals in the Marine Environment, Environ. Sci. Technol., 35(2), 318-324(2001)
  - 5) 間藤ゆき枝, 高田秀重, モハマド パウジ ザカリヤ, 栗山雄司, 兼広春之: 海岸漂着プラスチック粒(レジンペレット)中の有機汚染物質-汚染物質含有量の地域差と樹脂種による相違-. 環境科学会誌, 15(6), 415-423(2002)
  - 6) Rochman, C. M., Tahir, A., Williams, S. L., Baxa, D. V., Lam, R., Miller, J. T., Teh, F. C., Werorilangi, S., Teh, S. J.: Anthropogenic debris in seafood: Plastic debris and fibers from textiles in fish and bivalves sold for human consumption, Sci. Rep., 5(14340), 14340(2015)
  - 7) Tanaka, K., Takada, H.: Microplastic fragments and microbeads in digestive tracts of planktivorous fish from urban coastal waters, Sci. Rep., 6(34351), 34351(2016)
  - 8) 三島聡子: 神奈川県内の河川における有機フッ素化合物の実態, 神奈川県環境科学センター研究報告, 39(1), 11-18(2016)
  - 9) 竹峰秀祐, 山本勝也, 高田光康, 松村千里, 渡邊信久, 英保次郎, 中野武: 管理型最終処分場における有機フッ素化合物の挙動について, 第20回環境化学討論会要旨集, 606-607 (2011)
  - 10) 三島聡子: 神奈川県内の河川における有機フッ素化合物の実態, 神奈川県環境科学センター研究報告, 39(1), 11-18(2016)
  - 11) 松山明, 山本美穂, 千室麻由子, 鴨志田均: 川崎市内の水環境における有機フッ素化合物の環境実態調査, 川崎市環境総合研究所年報, 1(1), 58-62(2013)
  - 12) Ogata, Y., Tagata, H., Mizukawa, K., Hirai, H., Iwasa, S., Endo, S., Mato, Y., Saha, M., Okuda, K., Nakashima, A., Murakami, M., Zurcher, N., Booyatumanondo, R., Mohamad, P. Z., Dung, L. Q., Gordon, M., Miguez, C., Suzuki, S., Moore, C., Karapanagioti, H. K., Weets, S., McClurg, T., Bures, E., Smith, W., Velkenburg, M. V., Lang, J. S., Lang, R. C., Laursen, D., Danner, B., Stewardson, N., Thompson, R. C.: International Pellet Watch: Global monitoring of persistent organic pollutants (POPs) in coastal waters. 1. Initial phase data on PCBs, DDTs, and HCHs, Mar. Pollut. Bull., 58(10), 1437-1446(2009)
  - 13) 鈴木茂, 石井善昭, 上堀美知子, 長谷川敦子, 吉田寧子: 有害物質分析ハンドブック, 87, (株)朝倉書店(1997)
  - 14) 中堀靖範: 有機フッ素化合物(PFCs)と直鎖アルキルベンゼンスルホン酸及びその塩(LAS)の同時分析法の開発及び農薬分析への適用性の評価, 熊本県保健環境科学研究所報, 43(1), 50-57(2013)
  - 15) 四ノ宮美保: LC-MS/MSによる河川水中農薬分析におけるマトリックス効果, 環境化学, 26(4), 191-201(2016)
  - 16) 環境省環境保健部環境安全課: 化学物質環境実態調査実施の手引き(平成27年度版), [https://www.env.go.jp/chemi/kurohon/tebiki/ma\\_t01.pdf](https://www.env.go.jp/chemi/kurohon/tebiki/ma_t01.pdf) (参照; 2018.8)