

# VU Research Portal

## Fluorinated, Chlorinated and Brominated Contaminants in Fish for Human Consumption

van Leeuwen, S.P.J.

2009

### **document version**

Publisher's PDF, also known as Version of record

[Link to publication in VU Research Portal](#)

### **citation for published version (APA)**

van Leeuwen, S. P. J. (2009). *Fluorinated, Chlorinated and Brominated Contaminants in Fish for Human Consumption: Methods and Measurements*. [PhD-Thesis - Research and graduation internal, Vrije Universiteit Amsterdam]. S.P.J. van Leeuwen.

### **General rights**

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain
- You may freely distribute the URL identifying the publication in the public portal

### **Take down policy**

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

### **E-mail address:**

[vuresearchportal.ub@vu.nl](mailto:vuresearchportal.ub@vu.nl)

## Abbreviations

2,3,7,8-TCDD	2,3,7,8-tetrachlorodibenzo- <i>p</i> -dioxin
2,3,7,8-TCDF	2,3,7,8-tetrachlorodibenzofuran
AcN	Acetonitrile
APCI	Atmospheric pressure chemical ionization
ASE	Accelerated solvent extraction
BCR	Community bureau of reference
BFR	Brominated flame retardant
Bw	Bodyweight
CE	Collision energy
CID	Collision induced dissociation
CP	Chlorinated paraffin
CRM	Certified reference material
DCM	Dichloromethane
DDT	Dichlorodiphenyltrichloroethane
DMSO	Dimethylsulfoxide
DNFCS	Dutch national food consumption survey
dl-PCB	Dioxin-like PCB
ECD	Electron capture detection
ECF	Electrochemical fluorination
ECNI	Electron capture negative ionisation
EFSA	European food safety authority
EI	Electron ionization
ESI	Electrospray ionization
FTOH	Fluorotelomer alcohol
GC	Gas chromatography
GCxGC	Comprehensive multidimensional gas chromatography
GFF	Glass fiber filter
GPC	Gel permeation chromatography
HBCD	Hexabromocyclododecane
HCB	Hexachlorobenzene
HCBD	Hexachlorobutadiene
HCH	Hexachlorocyclohexane
HxCDD	Hexachlorodibenzo- <i>p</i> -dioxin
HxCDF	Hexachlorodibenzofuran
HpCDD	Heptachlorodibenzo- <i>p</i> -dioxin
HpCDF	Heptachlorodibenzofuran
HPLC	High performance liquid chromatography
HRMS	High resolution mass spectrometry
ILS	Interlaboratory study
IPE	Ion pair extraction
IS	Internal standard
ITMS	Ion trap mass spectrometry

LC	Liquid chromatography
LCCP	Long chain chlorinated paraffin
LLE	Liquid-liquid extraction
LOD	Limit of detection
LOQ	Limit of quantification
LRM	Laboratory reference material
LSE	Liquid solid extraction
LVI	Large volume injection
MCCP	Medium chain chlorinated paraffin
MeOH	Methanol
ML	Maximum level
MRM	Multiple reaction monitoring
MS	Mass spectrometry
MS/MS	Tandem mass spectrometry
MTBE	Methyl- <i>tert</i> -butylether
m/z	Mass-charge-ratio
NCI	Negative chemical ionisation
NOAEL	No observable adverse effect level
OCDD	Octachlorodibenzo- <i>p</i> -dioxin
OCDF	Octachlorodibenzofuran
OCP	Organochlorine pesticide
PBB	Polybrominated biphenyl
PBDE	Polybrominated diphenyl ether
PCA	Principal component analysis
PCB	Polychlorinated biphenyl
PCI	Positive chemical ionisation
PCN	Polychlorinated naphthalene
PeCDD	Pentachlorodibenzo- <i>p</i> -dioxin
PeCDF	Pentachlorodibenzofuran
PFAS	Polyfluoroalkylated substance
PFBA	Perfluorobutanoic acid
PFBS	Perfluorobutane sulfonate
PFC	Perfluorinated compound
PFCA	Perfluorocarboxylic acid
PFDA	Perfluorodecanoic acid
PFDS	Perfluorodecane sulfonate
PFDoA	Perfluorododecanoic acid
PFHpA	Perfluoroheptanoic acid
PFHxA	Perfluorohexanoic acid
PFHxS	Perfluorohexane sulfonate
PFNA	Perfluorononanoic acid
PFOA	Perfluorooctanoic acid
PFOS	Perfluorooctane sulfonate
PFOSA	Perfluorooctane sulfonamide

PFPeA	Perfluoropentanoic acid
PFSA	Perfluorinated sulfonates
PFTeA	Perfluorotetradecanoic acid
PFTrA	Perfluorotridecanoic acid
PFUnA	Perfluoroundecanoic acid
PLE	Pressurised liquid extraction
POP	Persistent organic pollutant
PUF	Polyurethane foam
QCB	Pentachlorobenzene
QQQ	Triple quadrupole
RSD	Relative standard deviation
SAQ	Standard addition quantification
SBCCQ	Solvent based calibration curve quantification
SCCP	Short chain chlorinated paraffin
SD	Standard deviation
SIM	Selected ion monitoring
SPE	Solid phase extraction
SRM	Standard reference material
SS	Standard solution
TBBP-A	Tetrabromobisphenol-A
TCDD	tetrachlorodibenzo- <i>p</i> -dioxin
TCDF	tetrachlorodibenzofuran
TDI	Tolerable Daily Intake
TEF	Toxic equivalency factors
TEQ	Toxic equivalents
TH-PFOS	Tetrahydropolyfluorooctanesulfonate
TOFMS	Time of flight mass spectrometry
WHO	World Health Organisation
ww	Wet weight

## List of publications

de Boer, J. van Leeuwen, S.P.J., Dao, Q., Kotterman, M. & Schobben, J. Thirty year monitoring of PCBs, organochlorine pesticides and brominated diphenylethers in eel from The Netherlands. *Environmental pollution*, Submitted.

Weiss, J.M., Andersson, P.L., Lamoree, M.H., Leonards, P.E.G., van Leeuwen, S.P.J. & Hamers, T. (2009) Competitive binding of poly- and perfluorinated compounds to the thyroid hormone transport protein transthyretin. *Toxicological sciences*, 109(2), 206–216.

van Leeuwen, S.P.J., Swart, K., van der Veen, I. & de Boer, J. (2009). Significant improvements in PFC analysis of water and fish: results from an interlaboratory method evaluation study. *Journal of Chromatography-A*, 1216 (3), 401-409.

van Leeuwen, S.P.J., van Velzen, M., Swart, K., van der Veen, I., Traag, W. A. & de Boer, J. (2009). Halogenated contaminants in popular farmed fish and shrimps consumed in The Netherlands. *Environmental Science & Technology*, 43(11), 4009–4015.

van Leeuwen, S.P.J. & de Boer, J. (2008). Advances in the gas chromatographic determination of persistent organic pollutants in the aquatic environment - Review. *Journal of Chromatography-A*, 1186, 161-182.

van Leeuwen, S.P.J. & de Boer, J. (2008). Brominated flame retardants in fish and shellfish – levels and contribution of fish consumption to dietary exposure of Dutch citizens to HBCD. *Molecular Nutrition and Food Research* 52, 204-216.

Bakker, M.I., Winter-Sorkina, R., Mul, A., Boon, P.E., van Donkersgoed, G., van Klaveren, J.D., Baumann, B.A., Hijman, W.C., van Leeuwen, S.P.J., de Boer, J. & Zeilmaker, M.J. (2008). Dietary intake of polybrominated diphenylethers in the Netherlands. *Molecular Nutrition and Food Research*, 52, 204-216.

de Boer, J., Leslie, H., van Leeuwen, S.P.J., Wegener, J.-W., van Bavel .B., Lindström, G., Lahoutifard, N. & Fiedler, H. (2008) UNEP intercomparison studies and training for persistent organic pollutant analysis under the Stockholm Convention. *Analytica Chimica Acta*, 617, 208-215.

de Mul, A., Bakker, M.I., Zeilmaker, M.J., Traag, W.A., van Leeuwen, S.P.J., Boon, P.E. & van Klaveren, J.D. (2008) Dietary exposure to dioxins and dioxin-like PCBs in the Netherlands anno 2004. *Regulatory Toxicology and Pharmacology*, 51, 278-287.

de Vos, M.G., Huijbregts, M., van den Heuvel-Greve, M., Vethaak, D., van de Vijver, K., Leonards, P., van Leeuwen, S.P.J., de Voogt, P. & Hendriks, J. (2008). Accumulation of perfluorooctane sulfonate (PFOS) in the food chain of the Western Scheldt estuary. Comparing field measurements with kinetic modeling. *Chemosphere*, 70, 1766–1773.

van Leeuwen, S.P.J., Leonards, P.E.G., Traag, W.A. Hoogenboom, L.A.P. & de Boer, J. (2007). Polychlorinated dibenzo-p-dioxins, dibenzofurans and biphenyls in fish from The Netherlands: concentrations, profiles and comparison with DR CALUX® bioassay results. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 389, 321–333.

van Leeuwen, S.P.J. & de Boer, J. (2007). Extraction and clean-up strategies for the analysis of poly- and perfluoroalkyl substances in environmental and human matrices – review. *Journal of Chromatography-A*, 1153, 172–185.

van Leeuwen, S.P.J., Karrman, A., van Bavel, B., de Boer, J. & Lindstrom, G. (2006). Struggle for Quality in Determination of Perfluorinated Contaminants in Environmental and Human Samples. *Environmental Science & Technology*, 40, 7854-7860.

van Leeuwen, S.P.J., van Cleuvenbergen, R., Eriksson, U., Cleemann, M., Hajslova, J. & de Boer, J. (2006). New and candidate certified reference materials for the analysis of PCBs, PCDD/Fs, OCPs, and BFRs in the environment and food. *Trends in analytical chemistry*, 25(4), 397-409.

Martin, J.W., Kannan, K., Berger, U., de Voogt, P., Field, J., Franklin, J., Giesy, J.P., Harner, T., Muir, D.C.G., Scott, B., Kaiser, M., Jarnberg, U., Jones, K.C., Mabury, S.A., Schroeder, H., Simcik, M., Sottani, C., van Bavel, B., Karrman, A., Lindstrom, G. & van Leeuwen, S.P.J. (2004). Analytical challenges hamper perfluoroalkyl research. *Environmental Science & Technology*, 38(13), 248A-255A.

Morris, S., Allchin, C.R., Zegers, B.N., Hafka, J.J.H., Boon, J.P., Belpaire, C., Leonards, P.E.G., van Leeuwen, S.P.J. & de Boer, J. (2004). Distribution and fate of HBCD and TBBPA brominated flame retardants in north sea estuaries and aquatic food webs. *Environmental Science & Technology*, 38(21), 5497-5504.

van Loco, J., van Leeuwen, S.P.J., Roos, P., Carbonnelle, S., de Boer, J., Goeyens, L. & Beernaert, H. (2004). The international validation of bio- and chemical- analytical screening methods for dioxins and dioxin-like PCBs: the DIFFERENCE project rounds 1 and 2. *Talanta*, 63(5), 1169-1182.

Carbonnelle, S., van Loco, J., van Overmeire, I., Windal, I., van Wouwe, N., van Leeuwen, S.P.J. & Goeyens, L. (2004). Importance of REP values when comparing the CALUX bioassay results with chemoanalyses results - Example with spiked vegetable oils. *Talanta*, 63(5), 1255-1259.

Hankemeier, T., van Leeuwen, S.P.J., Vreuls, R.J.J. & Brinkman, U.A.T. (1998). Use of a presol-vent to include volatile organic analytes in the application range of on-line solid-phase extraction gas chromatography mass spectrometry. *Journal of Chromatography-A*, 811(1-2), 117-133.

Carrascal, M., Schneider, K., Calaf, R.E., van Leeuwen, S.P.J., Canosa, D., Gelpi, E. & Abian, J. (1998). Quantitative electrospray LC-MS and LC-MS/MS in biomedicine. *Journal of Pharmaceutical and Biomedical Analysis*, 17(6-7), 1129-1138

### **Book**

van Leeuwen, S. P. J. & de Boer, J. (2004). Detecting organic contaminants in food: the case of fish and shellfish. In Watson, D.H. (Ed.), *Pesticide, veterinary and other residues in food*. Cambridge: Woodhead Publishing limited.

### **Other**

van Leeuwen, S.P.J. (1999). Gezondere vetzuursamenstelling melk door aangepaste voeding koe - gaschromatografie meest geschikt voor analyse vetzuren melkvet, *Voedingsmiddelentechnologie (VMT)* 32(22), 18-22.

van Leeuwen, S.P.J., van Loco, J. & de Boer, J. (2004) Nieuwe technieken voor dioxineanalyse, *Voedingsmiddelentechnologie (VMT)*, 37(22) 20 – 22.

## Dankwoord

Het is af. Hier ligt het dan. Na veel lange avonden en soms korte nachten is mijn proefschrift klaar. Het avontuur begon drie jaar geleden met de gedachte om de resultaten van een aantal studies bij elkaar te brengen. Om het een mooi geheel te maken is het uitgebreid met nog enkele studies, en nog wat, en nog wat.... En dat alles ligt nu hier voor me.

Ook ik heb het niet alleen gedaan. Ik heb met veel mensen van binnen en buiten het instituut samengewerkt. Het is een genoegen geweest om met al deze getalenteerde en gedreven collega's te werken aan een breed scala van onderwerpen. Al die mensen verdienen een bedankje.

Allereerst Jacob, een groot dank-je-wel voor jou. We werken nu zo'n negen jaar samen en ik heb erg veel van je geleerd. Of het nu de analyse van contaminanten is, het schrijven van een goed onderzoeksvoorstel of publicatie, of enkele voetstappen op het managementpad, ik heb steeds bij je binnen kunnen lopen voor advies. Je weet goede wetenschap te combineren met zakelijkheid, en daarbij creëer je ook nog een prettige omgeving om in te werken. Voor mij is het erg stimulerend om met je samen te werken. Ondanks je drukke bestaan heb jij hier ook flink wat uren in gestopt om de stukken van commentaar te voorzien en met suggesties te komen om het geheel te verbeteren. Nogmaals dank!!

En Pim, ook jij natuurlijk heel veel dank. Het is een plezier om met je samen te werken. Altijd kan ik even binnen lopen en meestal loop ik dan weer met een paar ideeën naar buiten. Van een paar stukken in dit proefschrift kunnen we nog mooie publicaties maken. Daarnaast weet je ook erg goed je weg te vinden in grote kluwen data. Na een uurtje stoeien met de gegevens rollen er dan opeens mooie profielen en PCA plots uit. Bedankt!!

En dan mijn andere C&B collega's. Ike, met jou heb ik al lang samengewerkt. Je bent op dezelfde dag begonnen op het RIVO en samen naar het IVM gegaan. Ik kan blind vertrouwen op de getallen die ik van je krijg. Aan een half woord heb je vaak al genoeg. En het is plezierig samenwerken met jou, maar dat kan ook niet anders want jij bent ook zo'n Myers-Briggs ESTP typetje (of was het nou ESTJ?).

En natuurlijk veel dank voor labhoofd Bert die zorgt dat alles altijd voor elkaar komt, Kees (de SMF tornado op de fiets), Sicco en Martin (samen sleutelen aan een lekkende GC injector in Nairobi – yes!! eindelijk scherpe pieken), Petra, Gerda, Riet, Jacco, de biojongens Peter en Jorke, de PhD's Eszter, Thijs en Adriana en alle stagiaires en gastmedewerkers. Het is altijd leuk om het lab binnen te lopen of om 3 uur met z'n allen koffie te drinken.



En niet te vergeten de collega wetenschappers. Marja zullen we binnenkort weer een voorstel in elkaar draaien? Jammer dat we het niet gehaald hadden, maar het ging als een trein. Timo en Juliette (de andere wijzen uit het Oosten), op vrijdagnacht 00.30 uur met z'n allen on-line om aan het Obelix voorstel te werken, en het was het waard. En ook Jan Willem, Bert, Heather en Harry. Dank jullie allemaal voor de lol, de inspiratie, het samenwerken en nog veel meer!!

Goede herinneringen bewaar ik ook aan de ex-collega's van IMARES. Judith, Quay, Marco, Michiel, Peter, Christiaan, Gerda, Evert en alle anderen. Zonder jullie goede inzet was een deel van dit werk niet mogelijk geweest. En het was erg leuk met jullie samen te werken. Daar doet een scheiding niets aan af.

I had the luck and pleasure to collaborate with several great (inter)national colleagues. Some parts of this work would not have been possible without your contributions. Special thanks to all (inter)national co-authors. I enjoyed the stimulating discussions at several meetings. These meetings brought me to great places like Lyon, Toronto, Tromsø, Stockholm, Barcelona, Nairobi etc. I hope to meet you all again soon.

Dit proefschrift had er niet zo mooi uitgezien als Rachel er niet bij betrokken was geraakt. Je hebt er een mooi boekje van gemaakt!! And Annika, thanks for the creating the wonderful dietary exposure picture.

Gelukkig is er naast werk ook nog een privé. Dat heb ik wel een beetje verwaarloosd de laatste tijd, maar dat halen we wel weer in. Ik begin bij mijn vrienden. Samen op vakantie, Oerol, naar het strand, eten, naar de kermis, borrelen en wandelen. Goede gesprekken over hobbies, werk, het leven en de laatste jaren vooral ook over de kroost. De WHW vakantie is elk jaar een mannen-onder-elkaar hoogtepuntje. Dat gaan we natuurlijk gewoon blijven volhouden tot we 85 zijn! Als kersverse Arnhemmer ga ik jullie -Haarlemmers- natuurlijk niet vergeten. De plannen voor korte vakanties in Haarlem zijn al gemaakt!

De Eindhovenseweg is een belangrijke plek. In een ruim en warm nest ben ik opgegroeid en gevormd, tussen de koeien, het gras en de immer volle theepot. Pap en mam, heel veel dank voor die goeie tijd op de Eindhovenseweg en het vertrouwen dat jullie in me hebben gehad. Ik beloof dat ik weer vaker een tas thee kom drinken. Heel veel plezier heb ik ook gehad met al mijn broers en zussen. Frans, Adelen, Gerie, Carla, René (ik kom weer langs voor een rondje in de duinen), Sjanette, Wilma (zet hem op he!!) en 's Jeroen. En jullie aanhang en kroost niet te vergeten. Dank!!

Maar het allerbelangrijkste, het allermooiste en het allerliefste zijn die drie lieve meiden. Lieve Jolanda, heel veel dank voor je aanmoedigingen, je steun en je geduld. Je bent een enorme lieverd!! Samen kunnen we de hele wereld aan. Ik ben nu klaar, mijn laptop gaat uit. Nog een paar dagen en dan komt er weer wat rust in mijn hoofd. Dan ben ik weer wat vaker ook geestelijk aanwezig in plaats van af en toe op te kijken vanachter het schermpje. We gaan nog heel lang genieten van elkaar en van onze twee möpkes, Pieneke en Sammie. Jullie zijn echt de allerleukste hobby die ik ooit heb gehad. Wat een feest om met jullie te spelen, daar kan echt niks tegenop. Dikke kus!!

Stefan

## Colophon

**ISBN:**

978-90-8891-108-8

**Cover design and lay-out:**

Rachel van Esschoten (Divingduck, [www.divingduck.nl](http://www.divingduck.nl))

**Photography:**

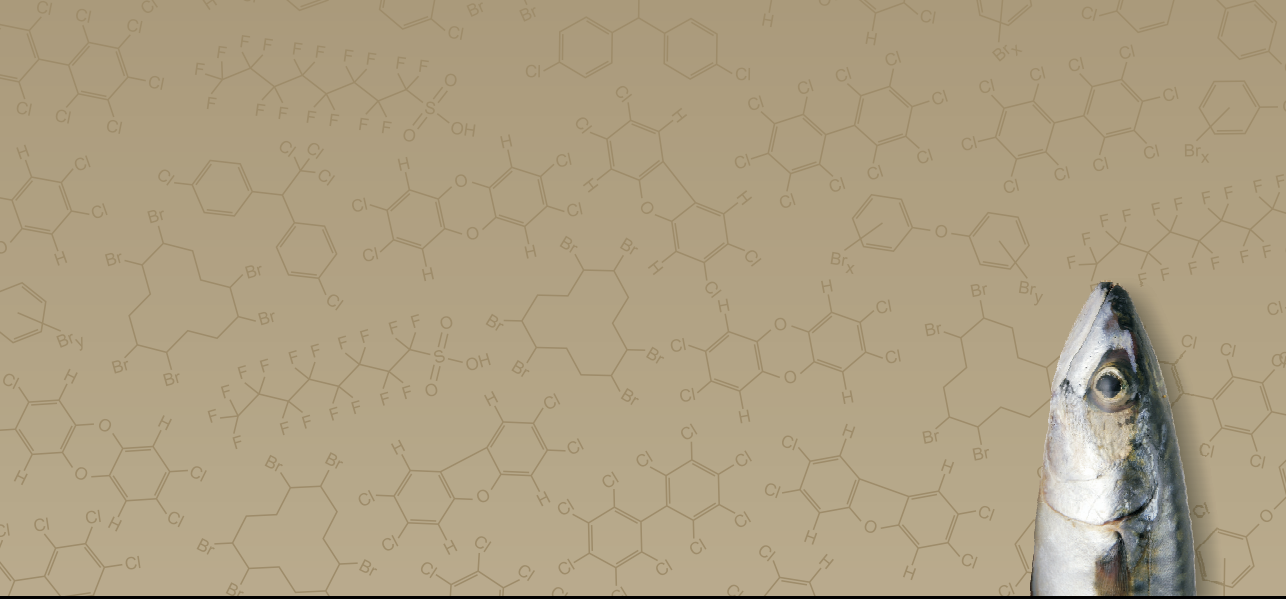
Sieto Verver (p. 9 bottom, p. 29 bottom, p. 301 bottom, p. 319 bottom)  
[www.istockphoto.com](http://www.istockphoto.com) (all other photos)

**Printed by:**

BOX Press, Oisterwijk

The printing of this thesis was financially supported by Wellington Laboratories.





Standards for Environmental Testing and Research

