

厚生労働科学研究費補助金

食品の安心・安全確保推進研究事業

食品中の有害物質等の摂取量の調査及び

評価に関する研究

平成17年度 総括・分担研究報告書

主任研究者

国立医薬品食品衛生研究所

松田りえ子

分担研究者

国立医薬品食品衛生研究所

松田りえ子

国立医薬品食品衛生研究所

米谷 民雄

国立保健医療科学院

杉山 英男

目 次

I. 総括研究報告

食品中の有害物質等の摂取量の調査及び評価に関する研究 …………… 1

松田りえ子

II. 分担研究報告

1. 日常食の汚染物摂取量及び汚染物モニタリング調査研究 …………… 11

松田りえ子

2. メチル水銀試験法の改良と魚肉中水銀分布調査への応用 …………… 29

米谷 民雄

3. 食品中の放射性核種の摂取量調査・評価研究 …………… 51

杉山 英男

III. 研究成果の刊行に関する一覧表 …………… 89

総括研究報告

食品中の有害物質等の摂取量の調査及び評価に関する研究

松田 りえ子

平成17年度 厚生労働科学研究費補助金
(食品の安心・安全確保推進研究事業)

総括研究報告書

食品中の有害物質等の摂取量の調査及び評価に関する研究

主任研究者 松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所食品部室長

研究要旨

本研究では、食品安全性評価のために広範囲の食品中に存在する有害物質に関するデータを収集するとともに、分析法に係わる関連研究を実施した。日常食の汚染物質摂取量調査研究においては、全国9カ所で各食品を通常の調理方に従って調製したトータルダイエツト試料を調製し、その汚染物濃度を測定して、1日当たりの汚染物摂取量を推定した。汚染物モニタリング調査研究においては、全国44カ所での食品中汚染物検査データ32万件を収集し、食品中の汚染物の検出率、複数の汚染物による汚染状況を明らかにした。メチル水銀試験法の改良に関する研究では、アルカリ分解—ジチゾン抽出法に準拠し、添加回収、再現性及び実用性等について検証を行うとともに、昨年度に比較的添加回収率の良かったアセトン/トルエン前処理法と比較した。その結果、抽出法Ⅰによる塩化メチル水銀の添加回収率は95-100%、抽出法Ⅱ(高濃度魚介類用)による塩化メチル水銀の添加回収率は100%であった。抽出法Ⅰによるマサバ筋肉部中の総水銀に対するメチル水銀の含有率は95-100%で、抽出法Ⅱによるメバチマグロ筋肉部中の総水銀に対するメチル水銀の含有率は96.2%であり、両魚種での相違はほとんど見られなかった。高い添加回収率及び総水銀に対するメチル水銀含有率は、標準溶液も抽出処理する検量線作成法によるものと考えられたが、本法では回収率等は高くなるが、操作が非常に煩雑で熟練を要するなどの問題点があった。一方、昨年度検討した改良法を採用し、検量線用の標準溶液を試験溶液と同様の操作で調製する方法を用いて、魚16検体中のメチル水銀の分析を行った。その結果、検量線の直線性が乏しく、再現性も得にくかったが、総水銀に対するメチル水銀の比率は69%から87%に上昇した。食品中の放射性核種の摂取量調査では、昨年につき、4カ所で調製したトータルダイエツト試料を分析して、 γ 線放出核種、 β 線を放出する

人工放射性核種の⁹⁰Sr、ウラン (²³⁸U) を対象として測定、分析を行った。その結果、これらの放射性核種濃度と1日摂取量は小さく、分布状況についても各地域で大きな差はみられなかった。これより、今回の研究では食品摂取に伴う国内各地域の公衆の成人に対する被ばく線量は小さいものと評価された。

分担研究者

松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所食品部室長

米谷 民雄 国立医薬品食品衛生研究所食品部長

杉山 英男 国立保健医療科学院生活環境部室長

A. 研究目的

種々の化学物質のヒトへの曝露はその90%以上が食事を介していると考えられており、多数の食品中の有害物質の量とその分布状態を明らかにし、化学物質による健康影響へのリスクを正しく評価することは、食品衛生における基本課題である。本研究の一課題である、日常食からの汚染物質摂取量調査研究と汚染物モニタリング調査研究では、食品衛生上重要な汚染物の食品中の存在状況を前者では平均化した見方で、後者では個別な見方から、長期間継続して調査することにより、個々の食品の汚染状況と日本国民が平均的に摂取する汚染物量の2つの側面から、食品の安全性を全体的に評価することを目的とした。

食品安全性評価のためには、食品中に存在する有害物質のデータを収集するだけでは不十分であり、正しい分析法によって得られた信頼性ある分析値に基づいて評価しなくてはならない。2004年3月にはJECFAがメチル水銀のPTWI（暫定耐容週間摂取量）を3.3

μg/kg体重/週から1.6 μg/kg体重/週に変更したことから、本研究では、魚介類中のメチル水銀分析法の改良を試みた。昨年度はアルカリ分解-システイン抽出法及びアセトン/トルエン前処理法について検討し、今年度は環境省法としても採用されているアルカリ分解-ジチゾン抽出法に準拠し、その添加回収率・再現性及び実用性等を検証した。また、昨年度に比較的添加回収率の良かったアセトン/トルエン前処理法との比較を行った。

食品中の放射性物質によるヒトへの曝露状況は、その摂取状況に関する基礎資料が乏しく、明らかになっていないのが現状である。そこで、本研究では、各種食品中の放射性核種濃度と地域分布を明らかにすること、さらに、日本人固有の食事摂取形態による放射性核種の曝露（摂取量ならびに被ばく線量）に関する評価を行うことを目的としたトータルダイエットスタディ（以下、TDSと表記する）を実施した。

以上に示したように、本研究では健康に

影響する汚染物質の摂取量・汚染状況の把握、正確な汚染状況と健康リスクを推定するための分析法の整備の観点から、食品中の有害物質の評価を行うことを目的としている。

B. 研究方法

汚染物摂取量調査

全国9カ所でマーケットバスケット方式によるトータルダイエット試料を調製し、重金属、農薬等の汚染物濃度を測定した。汚染物濃度と食品の摂取量から、1日あたりの食事からの汚染物摂取量を推定した。

汚染物モニタリング調査

全国44カ所の地方衛生研究所から食品中の汚染物分析データ32万件を収集した。収集はあらかじめ入力用のフォームを入れたフロッピーディスクに入力する形式で行った。国立医薬品食品衛生研究所食品部に送付されたデータは再度エラーチェックを行い集計した後、食品部サーバー上に構築したデータベースに追加した。

メチル水銀及び水銀試験法の改良

試料・試薬

試料は市販のサバ1試料及びメバチマグロ1試料の筋肉部を用いた。

メチル水銀の測定には残留農薬分析用の溶媒を、総水銀の測定には日本インスツルメンツ社製の添加剤を用いた。メチル水銀標準溶液：塩化メチル水銀12.5 mgをトルエンに溶解し、100 mlとした。更に、これをトルエンで100倍希釈し、メチル水銀標準溶液とした(水銀として1 µg/ml)。

装置及び器具

パックドカラムによる塩化メチル水銀分析

GC：島津製作所製 GC14A(ECD)、カラム：固定相 Hg-20A、固定相担体 Uniport HP (60-80 mesh)、ガラスカラム (3.0 mm×1 m)。カラム充填後、注入口側に 500°Cで3時間処理した NaCl を約 3 cm の高さに充填。カラム温度：180°C、注入口温度：200°C、検出器温度：220°C、キャリアガス：N₂(50 ml/min)、注入量：5 µl

キャピラリーカラムによる塩化メチル水銀分析

GC：Agilent Technologies 5890 SERIES II (ECD)、カラム：ULBON HR-Thermon-Hg (0.53 mm×15 m)、インサートの下部に 500°Cで3時間処理した NaCl を約 2.5 cm の高さに充填。カラム温度：100°C(1 min)-10°C/min-160°C(5 min)、注入口温度：200°C、検出器温度：230°C、キャリアガス：He (10 ml/min)、注入量：2 µl

総水銀分析

半自動微量水銀分析装置：日本インスツルメンツ社製〔試料加熱気化・金アマルガム捕集装置(マーキュリー/MA-1S)、水銀検出装置(マーキュリー/MD-1)]

分析法

メチル水銀

・抽出法 I (一般魚介類試料)

アルカリ/エタノール処理－塩酸微酸性ジチゾン/トルエン抽出－アルカリ洗浄－アルカリ性硫化ナトリウム溶液逆抽出－塩酸微酸性下窒素ガス通気－ジチゾン/トルエン再抽出－アルカリ洗浄－塩酸洗浄－ECD-GC 法

・抽出法 II (高濃度の水銀を含有する魚介類試料)

アルカリ/エタノール処理－塩酸微酸性ジチゾン/トルエン抽出－アルカリ性硫化

ナトリウム溶液逆抽出ー塩酸微酸性下室素ガス通気ートルエン抽出ーアルカリ洗浄ー塩酸洗浄ーECD-GC 法

・検量線用メチル水銀標準溶液の調製

メチル水銀・システイン溶液を抽出法 I 及び II に従ってそれぞれ操作し、検量線用のメチル水銀標準溶液を調製した。試薬等からのブランクをチェックするため、メチル水銀無添加の検量線標準溶液を同時に調製した。

総水銀

日本インスツルメンツ社製半自動微量水銀分析装置で分析した。

改良法において検量線作成法を変更した時の検討

昨年度検討した改良法において、検量線作成方法を変更した際の添加回収率及びメチル水銀／総水銀の比率についての検討を行った。

放射性物質摂取量調査

日本国内 4 地域（東北；仙台市、関東 I；さいたま市、近畿 I；神戸市、北九州；福岡市）において、マーケットバスケット方式によるトータルダイエット試料を調製した。試料は凍結乾燥あるいは乾熱乾燥後に、450°C で約 24 時間灰化处理した。その後、人工ならびに天然の γ 線放出核種は、 γ 線スペクトロメトリーにより分析した。油脂類は調製試料の状態に 1L のマリネリ容器に封入して計測した。 β 線放出核種の ^{90}Sr およびウランは飲料水を除いた 13 食品群全てを調理、調製した均一混合試料について、同様に乾燥、灰化处理した後に、それぞれ ^{90}Sr は放射化学分離-低バックグラウンド β 線測定装置、ウラン

(238U) は ICP-質量分析 (ICP-MS) 法により分析した。

C. 研究結果および考察

汚染物摂取量調査

総 HCH 摂取量は概ね例年通りの値となった。総 DDT 摂取量の平均値は 2001～2005 年間で、最も小さい値であった。ディルドリン摂取量は 2004 年に続きやや高い値であった。HCB 摂取量は 2004 年にはやや高かったが、本年度は例年通りの値であった。PCB 摂取量は 2001-2005 年間で最も高い値となった。

有機リン系農薬 3 種類は、全ての試料で検出されなかった。

金属類中、鉛摂取量は 2004 年に例年より 25% 程度増加したが、本年は例年通りの値となった。カドミウム摂取量にはやや低下の傾向がみられ、これとは逆に水銀の摂取量はやや増加している。

各機関が自主的に分析したクロルピリホスメチルが高率で検出された。クロルピリホスメチルが検出されるのは、ほとんどが 2 群（雑穀）及び 3 群（砂糖・菓子）で、小麦への残留の可能性が高い。

HCH は魚介類、肉類、砂糖・菓子類と有色野菜類から、DDT は主として魚介類から摂取されている。ディルドリンは野菜類及び魚介類から、ヘプタクロルエポキサイドは野菜から摂取されているが、HCB は DDT と同じく主として魚介類から摂取されている。PCB も同様に主として魚介の群から摂取されている。鉛及びカドミウムは米からの摂取が最も多く、水銀の主要な摂取源は魚介類であった。ヒ素は野菜海藻及び魚介からの摂取が多かった。

汚染物モニタリング調査

319,746 件のデータが報告され、食品部サーバーには累計約 400 万件以上のデータが保存されている。報告件数は過去 5 年間で最高となった。

何らかの汚染物が検出されたデータは 4,697 件あり、検出率は 1.5 % で最近 5 年間で最も低率であった。総試料数は 8,760 件であり、このうち何らかの汚染物が検出された試料は 2,497 で試料数を基本とした検出率は 28.5 % となった。平成 13 年から平成 16 年まで、検出率は低下していたが、本年は試料をベースとした検出率が大きく増加した。

検査された汚染物は 509 種類であり、そのうち、農薬・動物薬等の意図的汚染物が 437 種類であった。農薬等に限定した試料ベースの検出率は 17.3 % で、過去 5 年間で最高であった。昨年度は検出率が低下する傾向が見られたのとは逆の傾向であり、今後の検出率の推移を注目する必要がある。

農薬等の検出率の高い食品は、西洋なし(84.6%)、桜桃(70.7%)、食用菊(68.8%)、りんご(68.3%)であった。西洋なしでは、フェンプロパトリン・フェンバレレート・シペルメトリンが高頻度で検出された。桜桃では、キャプタン・ピフェントリン・イプロジオンが、食用菊ではクロロタロニル・シペルメトリン・ジクロルボス等が検出された。これらに次いでオレンジ、グレープフルーツ、レモン等の柑橘類でオルトフェニルフェノール、チアベンダゾール、イマザリル等が高率に検出され、柑橘類における汚染物の検出率は 50 % 程度であった。その他の農薬の検出率の高い食品は日本なし(49%)、にら(48%)、セロリ(40%)、ぶどう(39%)、いちご(38%)であ

った。

グレープフルーツ等の柑橘類は、イマザリル、チアベンダゾール、オルトフェニルフェノールのような防カビ剤の複数残留が多く見られた。柑橘類の他に複数残留が多く見られた作物は、桜桃、りんご、いちごのような果実とピーマン、未成熟えんどう、春菊であった。

検査数の多い汚染物は、クロルピリホス、マラチオン、フェントロチオン等の有機リン系農薬、ペルメトリン、シペルメトリン等のピレスロイド系農薬であった。

検出率の高い汚染物は、水銀、カドミウム、PCB、有機スズ、ヒ素等の環境汚染に関連する物質で、これらは魚介を中心とした試料から高率で検出されている。次いで、鉛等の有害金属、オルトフェニルフェノール、イマザリルが 20 % 以上の検出率であった。検査数の多いクロルピリホス等の有機リン系農薬の検出率は、最も高いプロシミドンでも 4 % 程度で、大部分は 2 % 以下の検出率であった。

メチル水銀及び水銀試験法の改良

1. メチル水銀ジチゾネートの検量線及びガスクロマトグラム

環境省法に従い、Hg-20A/Uniport HP (3.0 mm×1 m) カラム(注入口側に、500°C で 3 時間処理した NaCl を約 3cm の高さに充填)を用いて測定した。測定用の検量線はシステイン溶液に結合させたメチル水銀を段階的に取り抽出法 I 及び II に従って抽出処理し、生成したメチル水銀ジチゾネートを用いて作成した。

一般魚介類試料用の抽出法 I (総水銀濃度：0.1 µg/g 未満)によるメチル水銀ジチ

ゾネート及び塩化メチル水銀の検量線は 0.003~0.0225 µg/ml (添加量 0.005~0.0375 µg) の範囲で良好な直線性 ($R^2=0.9999$) を示し、各測定値は塩化メチル水銀の 88.8~91.8 (平均 91.7) %であった。

高濃度の水銀を含有する魚介類試料用の抽出法Ⅱ (総水銀濃度: 0.1 µg/g 以上) によるメチル水銀ジチゾネートの検量線は 0.005~0.02 µg/ml (添加量 0.025~0.1 µg) の範囲で良好な直線性 ($R^2=0.9997$) 示し、各測定値は塩化メチル水銀の 81.1~83.3 (平均 82.4) %であった。

従来、塩化メチル水銀の分析にはパックドカラムが使用されてきた。メチル水銀ジチゾネートの分析へのキャピラリーカラムの適用性を評価するために、ULBON HR-Thermon-Hg (0.53 mm×15m) キャピラリーカラムを検討した。抽出法Ⅱによるメチル水銀無添加の検量線用標準溶液においては、ジチゾン由来成分のピークが塩化メチル水銀のピークと重なった。また、トルエン抽出液を最後に塩酸で洗浄するためか、メチル水銀ジチゾネートより生成した塩化メチル水銀のカラム分離及び感度が急激に低下し、ULBON HR-Thermon-Hg キャピラリーカラムのメチル水銀ジチゾネート分析への適用は困難であった。以上の結果からメチル水銀ジチゾネートの分析は Hg-20A/Uniport HP (3.0mm×1m) カラムを使用して行うことにした。

メチル水銀ジチゾネートの検量線はその勾配が常に一定でなく、抽出毎に3段階の濃度で作成する必要があった。また、両抽出法とも試料溶液のピーク面積が検量線を越えた場合には直線範囲内に入るよう適宜希釈して測定した。

2. 抽出法Ⅰ及び抽出法Ⅱによる魚肉からの

塩化メチル水銀の添加回収率

マサバ試料 1 g あたり塩化メチル水銀 (水銀として) 0.05 µg を添加し、抽出法Ⅰにより分析した際の回収率は 102%、メバチマグロ試料 1 g あたり塩化メチル水銀 (水銀として) 1 µg を添加した際の回収率は 100%であり、魚種、添加量による大きな相違はみられなかった。また、マサバ及びメバチマグロ筋肉部中のメチル水銀濃度の5回繰返し試験における変動係数はそれぞれ 3.4%、4.6%であった。

3. 抽出法Ⅰ及び測定法Ⅱによる魚肉中の総水銀に占めるメチル水銀の含有率

総水銀濃度はマサバ 0.0495 µg/g、メバチマグロの 0.995 µg/g と非常に異なるが、総水銀中のメチル水銀の含有率は 96.3~98.4%であり、大きな相違は見られなかった。

4. 昨年度検討法において検量線作成法を変更した際の検討

メチル水銀分析について、公定法、改良法A及び改良法Bの結果を比較したところ、改良法Bで最も高い結果が得られたが、改良法Bでは調製した標準溶液の測定値に再現性が得られなかった。標準溶液を6回調製したところ、3回については検量線の直線性が良好であり再現性も得られたが、残りの3回については検量線の直線性が乏しく、再現性も得られなかった。従って、改良法Bについては、検量線の直線性及び再現性ともに良好であった標準溶液を用いて定量した。

放射性物質摂取量調査

γ線放出核種の放射能濃度

今回の4地域における結果では、人工の

γ 線放出核種として検出・定量されたのは ^{137}Cs のみである。その放射能濃度は4地域ともに0.1 Bq/kg以下の低いレベルであり、多くの食品群で検出下限値以下であった。同様な傾向は平成16年度の4地域における結果でも認められている。

4地域いずれもX群の魚介類が最大濃度を示した(0.079~0.097 Bq/kg)。また、他の13食品群の中では肉類・卵類、乳類が他の食品群に比べて高い濃度を示し、平成16年度のTDSと同様な傾向がみられた。

^{134}Cs は平成16年度と同じくいずれの地域の食品、飲料水からも検出・定量されなかった。

4地域の食品群すべてから ^{40}K が検出、定量された。濃度は大多数の食品では数10 Bq/kgであったが、飲料水は極めて低く(4地域:0.019~0.093 Bq/kg)、次いで米・米加工品、油脂類が他の食品群に比べて低い値であった。

天然 γ 線放射性核種については、一部の穀類・種実類・芋類、砂糖類・菓子類や肉類・卵類中の ^{228}Ac が0.052~0.158 Bq/kg、 ^{212}Pb が0.025~0.053 Bq/kgであったが、その他の大多数の食品では検出限界値を下回る結果であった。

^{90}Sr の放射能濃度

^{90}Sr 濃度は4地域で0.020~0.029 Bq/kgの範囲であった。平成16年度および平成17年度に実施した8地域の本TDSの結果より、調理済み食品中の ^{90}Sr の濃度には地域間による差は小さいことが示された。

ウラン(^{238}U)の放射能濃度

^{238}U 濃度は4地域で0.0042~0.0090 Bq/kgの範囲であった。 ^{238}U の濃度は ^{90}Sr に比べて地域別区分による差の大きいことが明らかと

なった。

γ 線放出核種の1日摂取量

^{137}Cs の1日摂取量は、14.5 mBq/day~<54.2 mBq/dayであった。各地域とも魚介類から摂取量が多く、次いで、肉類・卵類、乳類、あるいはその他野菜きのこ・海藻類からの寄与が大きい傾向がみられた。日本人の主食である米・米加工品からの摂取量は小さかった。

^{40}K 摂取量は、73292~<90329 mBq/dayであった。平成16年度と比較しても、顕著な地域差はみられなかった。

^{214}Pb 、 ^{214}Bi 、 ^{228}Ac 、 ^{212}Pb 、 ^{208}Tl の5核種ともに放射能レベルは低く、その多くは検出下限値を下回る結果であった。

^{90}Sr の1日摂取量

^{90}Sr の1日摂取量は、35.6 mBq/day~48.2 mBq/dayの範囲にあった。2年間の8地域における摂取量の平均値は 38.6 ± 8.60 mBq/dayと算出され、地域別の摂取量には平均値に対して20%程度のバラツキがみられた。

ウラン(^{238}U)の1日摂取量

^{238}U の1日摂取量は、6.4 mBq/day~14.9 mBq/dayと推定され、2年8地域における摂取量の平均値は 12.5 ± 5.78 mBq/dayと算出された。最小値に対して最大値は3.5倍以上であり、平均値に対しては50%に近い地域間誤差がみられた。1日摂取量の違いは各食品群の素材構成、地域による摂食量の差に由来することが推測される。

γ 線放出核種による被ばく線量評価

^{137}Cs による被ばく線量は $0.069 \mu\text{Sv}$ ~ < $0.257 \mu\text{Sv}$ と算出された。同様な方法による算出の結果、 ^{40}K による被ばく線量は $166 \mu\text{Sv}$ ~ < $204 \mu\text{Sv}$ であり、食品からの被ばく

寄与中一番大きいことが示された。

^{214}Pb では最小値～最大値は $0.0001 \mu\text{Sv} \sim <0.0047 \mu\text{Sv}$ 、定量済みの最大値では $0.0004 \mu\text{Sv}$ と算出された。以下、 ^{214}Bi は $0 \mu\text{Sv} \sim <0.004 \mu\text{Sv}$ 、 $0.0003 \mu\text{Sv}$ 、 ^{228}Ac は $0.002 \mu\text{Sv} \sim <0.034 \mu\text{Sv}$ 、 $0.005 \mu\text{Sv}$ 、 ^{212}Pb は $0 \mu\text{Sv} \sim <0.177 \mu\text{Sv}$ 、 $0.024 \mu\text{Sv}$ と算出された。

^{90}Sr による被ばく線量評価

2年間に対象とした全8地域の平均値は $0.395 \pm 0.088 \mu\text{Sv}$ と算出推定された。この値は国連科学委員会 2000年報告 (UNSCEAR 2000) にある $0.56 \mu\text{Sv}$ と比較的良く一致している。4地域いずれも食品摂取に伴う被ばく線量は ^{137}Cs に比べて ^{90}Sr が3～5倍大きい。

^{238}U による被ばく線量評価

2年間に対象とした全8地域の平均値は $0.206 \pm 0.095 \mu\text{Sv}$ と推定された。今回の ^{238}U の年実効線量推定値は、UNSCEAR 2000の $0.14 \mu\text{Sv} \sim 0.30 \mu\text{Sv}$ 、あるいは(財)日本分析センターの国内調査による日常食の平均値 $0.22 \mu\text{Sv}$ ($0.09 \mu\text{Sv} \sim 0.46 \mu\text{Sv}$) と同程度にあるものと評価された。

本研究で検討した被ばく線量は一般公衆の線量限度である $1 \text{mSv}/\text{年}$ (ICRP 1990年勧告) や自然放射性核種の摂取から成人が受ける年平均実効線量 0.29mSv (UNSCEAR 2000) に比較して十分に小さい数値であることが評価された。

D. 結論

汚染物摂取量調査

9機関の協力の下に行われた日常食からの汚染物質摂取量調査研究 (トータルダイエツトスタディ) の結果、食品中有機塩素系農薬、PCB、有害金属等の摂取量は、例年通りであ

り、特に増加した汚染物は見られなかった。

汚染物モニタリング調査

汚染物モニタリング調査においては44機関からのデータを収集しデータベース化した。農薬等の意図的汚染物の検出率は、試料数を基準として17.3%であり、過去5年間で最高の検出率となった。これは、ポジティブリスト制の実施を受けて、広範囲の農薬を検査する方法が一般的になってきたためと考えられる。

メチル水銀及び水銀試験法の改良

錯形成剤としてジチゾンを用いる方法では抽出処理した検量線を使用することにより、魚種、水銀濃度に関係なく総水銀に占めるメチル水銀の含有率は96%以上の高い値を示した。

昨年度検討したアセトン/トルエン前処理-システイン法による、同一メバチマグロ試料における添加回収率は85.9%、総水銀に対するメチル水銀の含有率は83.5%であった。抽出操作を通しての回収率で補正すると、添加回収率及び総水銀に対するメチル水銀の含有率はそれぞれ97%、95%となる。従って、アセトン/トルエン前処理-システイン抽出法においても抽出処理した検量線を用いることにより、添加回収率及び総水銀に対するメチル水銀の含有率は高い値を示すものと推察される。また、アセトン/トルエン前処理-システイン抽出法では操作が比較的簡単であるのに対して、アルカリ分解-ジチゾン抽出法は操作が煩雑で、精度の高い分析結果を得るにはかなりの熟練を要する。

試験溶液と同様の操作を行って調製した

標準溶液を用いて検量線を作成する改良法 B では、調製した標準溶液の測定値に再現性が得にくかった。6 回標準溶液を調製したが、3 回については検量線の直線性が良好であり再現性も得られたが、残りの 3 回については検量線の直線性が乏しく、再現性も得られなかった。

放射性物質摂取量調査

今回、国内 4 地域で実施した食品中の放射性核種の摂取量調査研究では、H16 年に同様に国内 4 地域で実施した結果と同じような傾向を示した。すなわち、対象とした放射性核種の 1 日摂取量は小さく、成人の被ばく線量への寄与は小さいことが推定評価された。わが国では、食品中の有害物質の中でも放射性核種の摂取量とその曝露評価に関する知見は限られていることから、平成 16 年度に引き続き、過去の大気圏内核実験やチェルノブイリ原子力発電所事故等に由来する人工放射性核種 (γ 線放出核種および ^{90}Sr) のみならず、天然の γ 線放出核種や原子力関連分野等で使用されているウランなど多種にわたる放射性核種の 1 日摂取量の実態把握ならびに被ばく線量推定が可能となり、放射線緊急時等を含めた食品の安全・安心に対する一つの基礎資料がさらに充実、集積された。

E. 研究発表

1. 杉山英男、寺田宙、磯村公郎、飯島育代. 食品中の放射性核種の摂取量調査・評価研究. 厚生労働科学研究費補助金食品の安全性高度化推進研究事業「食品中の有害物質等の摂取量の調査及び評価に関する研究」(主任研究者: 松田りえ子。課題番号: H16-食品-015) 平成 16 年度研究報告書. 東京: 松田り

え子; 2005. P.67-96.

2. 杉山英男(分担執筆). 食品衛生検査指針 理化学編 第 7 章放射能. 厚生労働省医薬食品局監修. 東京: 社団法人日本食品衛生協会; 2005.3. p.765-776.

3. 杉山英男、寺田宙、横浜検疫所輸入食品・検疫検査センター、神戸検疫所輸入食品・検疫検査センター。文部科学省放射能調査研究費「輸入食品の放射能調査研究」

(主任研究者: 杉山英男) 第 46 回環境放射能調査研究成果論文抄録集(平成 16 年度). 東京: 文部科学省科学技術・学術政策局原子力安全課防災環境対策室; 2005. p.89-90.

4. H. Sugiyama, C. Maeda, T. Watanabe, M. Sakamoto, A. Fukumoto, C. Kuwahara, F. Kato. Transfer of cesium focused on food chain from soil-microorganisms: Soil-microfauna to mushroom. International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, 2005; Honolulu U.S.A. 170, Abstract CD-ROM.

5. H. Terada, I. Iijima, K. Isomura, J. Kobayashi, H. Sugiyama. Daily intakes of radionuclides in Japanese standard diets. Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry-05 (2005) Beijing, China: p.313

6. 杉山英男、寺田宙、平田明日美、櫻井かさね、宮田昌弘、後藤成生、諸外国産輸入食品の放射能(2000 年-2003 年), RADIOISOTOPES, 53(5), 307-315 (2004)

分 担 研 究 報 告

日常食の汚染物摂取量及び汚染物モニタリング調査研究

松田 りえ子

厚生労働科学研究費補助金（食品の安心・安全確保推進研究事業） 分担研究報告書

日常食の汚染物質摂取量及び汚染物モニタリング調査研究

分担研究者 松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所食品部室長

研究要旨

国内に流通している食品に含まれる汚染物質の濃度，及び食事を介した汚染物質の摂取量を明らかにすることを目的として，全国の衛生研究所の協力を得て，汚染物モニタリング調査と，マーケットバスケット方式によるトータルダイエツト試料を用いた汚染物摂取量調査を実施した。

汚染物モニタリングにおいては，全国44カ所での食品中汚染物検査データ32万件を収集し，食品中の汚染物の検出率，複数の汚染物による汚染状況を調査した。汚染物摂取量調査では，全国9カ所で各食品を通常の調理方法に従って調製したトータルダイエツト試料を調製し，その汚染物濃度を測定して，1日当たりの汚染物摂取量を推定した。

汚染物摂取量調査協力研究者

酒井洋，小林ゆかり（新潟県保健環境科学研究所），長谷川康行，橋本博之（千葉県衛生研究所），日高利夫，佐藤昭男（横浜市衛生研究所），田村征男，加藤陽康（名古屋市衛生研究所），田中之雄，田口修三，阿久津和彦（大阪府立公衆衛生研究所），小嶋美穂子（滋賀県立衛生科学センター），西岡千鶴（香川県環境保健研究センター），古謝あゆ子（沖縄県衛生環境研究所）

汚染物モニタリング調査協力機関

札幌市衛生研究所，青森県環境保健センター，岩手県環境保健研究センター，仙台市衛生研究所，山形県衛生研究所，福島県衛生研究所，栃木県保健環境センター，群馬県衛生環境研究所，埼玉県衛生研究所，東京都健康安全研究センター，

神奈川県衛生研究所，横須賀市衛生試験所，山梨県衛生公害研究所，新潟県保健環境科学研究所，新潟市衛生試験所，富山県衛生研究所，石川県保健環境センター，福井県衛生環境研究センター，岐阜県保健環境研究所，静岡県環境衛生科学研究所，滋賀県立衛生科学センター，京都府保健環境研究所，京都市衛生公害研究所，大阪府立公衆衛生研究所，大阪市立環境科学研究所，堺市衛生研究所，兵庫県健康環境科学研究センター，神戸市環境保健研究所，姫路市環境衛生研究所，尼崎市衛生研究所，奈良県保健環境研究センター，鳥取県衛生環境研究所，島根県保健環境科学研究所，岡山県環境保健センター，広島県保健環境センター，香川県環境保健研究センター，高知県衛生研究所，福岡県保健環境研究所，福岡市

保健環境研究所，佐賀県衛生薬業センター，長崎県衛生公害研究所，宮崎県衛生環境研究所，沖縄県衛生環境研究所

A 研究目的

近年、魚中の水銀をはじめ種々の化学物質の環境・食品汚染，及びヒトにたいする曝露や健康影響に関する国民の不安が広がり、社会的関心が高まっている。これら化合物のヒトへの曝露はその90%以上が食事を介していると考えられており，食品中の有害物質の量とその分布状態を明らかにして食品の安全性を確保することは，食品衛生における基本課題である。食品中の化学物質分布は非常に不均一であり，汚染状態を正確に把握するためには，多数の食品中の汚染物濃度データを全国的に継続的に収集し，解析しなくてはならない。また，食品中の汚染物へのヒトの曝露状態を把握するためには，単に個々の食品の濃度のみならず，日本人がその食品をどのくらい食べているかも考慮しなければならない。また，食品を調理加工した場合の汚染物レベルの変化も考慮する必要がある，日常的に摂取される食品の形態に基づいた推定が必要である。本研究では，前者の目的のために，汚染物モニタリング研究，後者の目的のためにマーケットバスケット方式による汚染物摂取量調査研究を行った。

B. 研究方法

1) 汚染物摂取量調査 全国9カ所でマーケットバスケット方式によるトータルダイエット試料を調製した。各食品の摂取量は，平成13年度に行われた国民栄養調査の結果を地域別に集計した結果によった。各地の小売店から食品を購入し，茹でる，焼く等の一般的な調理を行ってから，一日当たりの摂取量に従って混合して試料とし，重金属，農薬等の汚染物濃度を測定した。汚染物の濃度と食品の

摂取量から，人1日あたりの食事からの汚染物摂取量を推定した。

2) 汚染物モニタリング調査 全国44カ所の地方衛生研究所から食品中の汚染物分析データ32万件を収集した。収集はあらかじめ入力用のフォームを入れたフロッピーディスクに入力する形式で行った。入力用フォームには，誤入力をチェックするプログラム(Microsoft Excel VBA)を含めておき，各協力者があらかじめ誤入力をチェックした後に送付し，無効なデータが入らないようにした。

国立医薬品食品衛生研究所食品部に送付されたデータは再度エラーチェックを行い集計した後，食品部サーバー上に構築したデータベースに追加した。

C. 研究結果

1) 汚染物摂取量調査

Table 1 に全参加機関から報告された，ヘキサクロロシクロヘキサン(HCH)類，DDT類，ディルドリン，ヘプタクロルエポキシサイド，HCB，PCB，有機リン系農薬類(マラチオン，MEP，ダイアジノン)，金属類(鉛，カドミウム，ヒ素，水銀，銅，マンガン，亜鉛)の総摂取量の2001～2005年の年次推移を示す。代表値として，9箇所の平均値(mean)と中央値(median)を示した。平均値については，汚染物濃度が定量下限以下(ND)の場合に濃度を0として計算した場合(ND=0)と，定量下限の1/2の濃度とした場合(ND=1/2LQ)の二種類を示した。

HCH類の中で摂取量の多い α 及び β HCH摂取量の平均値は2001年～2003年に低下傾向を示したが，2005年は β HCHがやや増加した。一方，2004年に増加した γ HCHの摂取量は例年通りの値となり，総HCH摂取量は概ね例年通りの値となった。HCHを検出した機関は少ないために，中央値は個々の異性体，総量ともに0(ND)となった。本年の総DDT摂取量の平均値は2001～2005年間で，最も小さい値であった。ディルドリン摂取量は2004年に続きやや高

い値であった。HCB摂取量は2004年にはやや高かったが、本年度は例年通りの値であった。PCB摂取量は2001-2005年間で最も高い値となった。

有機リン系農薬3種類は、全ての試料で検出されなかった。

金属類中、鉛摂取量は2004年に例年より25%程度が増加したが、本年は例年通りの値となった。カドミウム摂取量にはやや低下の傾向がみられ、これとは逆に水銀の摂取量はやや増加している。

また、表には含まれていないが、各機関が自主的に分析したクロルピリホスメチルが高率で検出された。クロルピリホスメチルが検出されるのは、ほとんどが2群（雑穀）及び3群（砂糖・菓子）で、小麦への残留の可能性が高い。

Table 2 に、各汚染物の食品群別摂取量を、Table 3 には地域別比較を示す。また、Figure 1 には汚染物の摂取量を食品群別毎にグラフで示した。HCH は魚介類、肉類、砂糖・菓子類と有色野菜類から、DDT は主として魚介類から摂取されている。ディルドリンは野菜類及び魚介類から、ヘプタクロルエポキサイドは野菜から摂取されているが、HCB は DDT と同じく主として魚介類から摂取されている。PCB も同様に主として魚介の群から摂取されている。鉛及びカドミウムは米からの摂取が最も多く、水銀の主要な摂取源は魚介類であった。ヒ素は野菜海草及び魚介からの摂取が多かった。

2) 汚染物モニタリング調査

平成 13 年から 17 年に報告されたデータ数、汚染物検出状況を Table 4 に示した。本年度は 319,746 件のデータが報告され、食品部サーバーには累計約 400 万件以上のデータが保存されている。報告件数は過去 5 年間で最高となった。

何らかの汚染物が検出されたデータは 4,697 件あり、検出率は 1.5% で最近 5 年間で最も低率であった。また、報告されたデータの総試料数は 8,760 件であ

り、このうち何らかの汚染物が検出された試料は 2,497 あった。試料数が例年の半分程度に低下しているにもかかわらず、検査数は増加していることから、1 試料当たりに検査された汚染物数が増えていると考えられる。試料数を基本とした検出率は 28.5% となった。平成 13 年から平成 16 年まで、検出率は低下していたが、本年は試料をベースとした検出率が大きく増加した。

検査数は非常に増加しているが、農薬・動物薬以外の汚染物データの数はほとんど増加していない。ポジティブリスト制度の施行が近づき、GC/MS あるいは LC/MS により多数の農薬等を一斉に分析できる方法が普及したことから、農薬等の検査が増加したものと考えられる。

検査された汚染物は 509 種類であり、そのうち、農薬・動物薬等の意図的汚染物が 437 種類であった。年々検査対象となる農薬は増加している。今後もポジティブリスト制の施行により、検査される汚染物の種類は急激に増加していくと予想される。

農薬等に限定した試料ベースの検出率は 17.3% で、過去 5 年間で最高であった。昨年度は検出率が低下する傾向が見られたのとは逆の傾向であり、今後の検出率の推移を注目する必要がある。

検査数の多い食品を Table 5 に示す。平成 15 年度は日本なしの検査数が 1 位であった。これは無登録農薬であるカプタホール（ダイホルタン）がなしに使用されるという事件の影響と考えられ、16 年及び 17 年の検査数の上位になしは入っていない。16 年度は、野菜類の検査数が大きく増加した一方、肉・卵等の検査数は減少した。17 年度は、1 試料当たりに分析する対象が増えたため、食品当たりの検査数に減少が見られる。順位を見ると、16 年度には検査数が少なかった動物性の食品が上位に出現している。

農薬等の検出率の高い食品は、西洋な

シ(84.6%), 桜桃(70.7%), 食用菊(68.8%), りんご(68.3%)であった。西洋なしでは、フェンプロパトリン・フェンバレレート・シペルメトリンが高頻度で検出された。桜桃では、キャプタン・ピフェントリン・イプロジオンが、食用菊ではクロロタロニル・シペルメトリン・ジクロロボス等が検出された。これらに次いでオレンジ、グレープフルーツ、レモン等の柑橘類でオルトフェニルフェノール、チアベンダゾール、イマザリル等が効率に検出され、柑橘類における汚染物の検出率は50%程度であった。その他の農薬の検出率の高い食品は日本なし(49%)、にら(48%)、セロリ(40%)、ぶどう(39%)、いちご(38%)であった。

グレープフルーツ等の柑橘類は、イマザリル、チアベンダゾール、オルトフェニルフェノールのような防カビ剤の複数残留が多く見られた。柑橘類の他に1検体当たりにも多くの農薬が検出された野菜・果実の例をTable 6に示す。複数残留が多く見られた作物は、桜桃、りんご、いちごのような果実とピーマン、未成熟えんどう、春菊であった。

検査数の多い汚染物をTable 7に示す。平成16年度のデータと同様にクロルピリホス、マラチオン、フェニトロチオン、等の有機リン系農薬、ペルメトリン、シペルメトリン等のピレスロイド系農薬の検査数が多かった。

検出率の高い汚染物は、水銀、カドミウム、PCB、有機スズ、ヒ素等の環境汚染に関連する物質で、これらは魚介を中心とした試料から高率で検出されている。次いで、鉛等の有害金属、オルトフェニルフェノール、イマザリルが20%以上の検出率であった。検査数の多いクロルピリホス等の有機リン系農薬の検出率は、最も高いプロシミドンでも4%程度で、大部分は2%以下の検出率であった。

D. 結論

9 機関の協力の下に行われた日常食からの汚染物質摂取量調査研究(トータルダイエツトスタディ)の結果、食品中有機塩素系農薬、PCB、有害金属等の摂取量は、例年通りであり、特に増加した汚染物は見られなかった。

汚染物モニタリング調査においては44 機関からのデータを収集しデータベース化するとともに、一部をWHOに送付し、国際的調査に協力した。農薬等の意図的汚染物の検出率は、試料数を基準として29%であり、過去5年間で最高の検出率となった。これは、ポジティブリスト制の実施を受けて、広範囲の農薬を検査する方法が一般的になってきたためと考えられる。

E. 研究発表

1. 論文発表

特になし

2. 学会発表

特になし

Table 1 汚染物摂取量年次推移

YEAR	MEAN										MEDIAN					ADI (FAO/WHO) μg/50kg
	2001	2002	2003	2004	2005	2001	2002	2003	2004	2005	ND=0	ND=0	ND=0			
	ND=1/2LC 10	ND=1/2LC 9	ND=1/2LC 10	ND=1/2LC 9	ND=1/2LC 9	10	9	10	9	9						
機関数																
α-HCH	0.023	0.013	0.011	0.008	0.006	0.011	0.105	0.101	0.008	0.117	0.006	0.166	0.000	0.000	0.000	
β-HCH	0.025	0.013	0.016	0.007	0.019	0.016	0.106	0.105	0.007	0.116	0.019	0.177	0.010	0.000	0.000	
γ-HCH	0.003	0.008	0.008	0.045	0.007	0.008	0.099	0.154	0.045	0.154	0.007	0.168	0.000	0.000	0.000	
δ-HCH	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.094	0.110	0.000	0.110	0.000	0.161	0.000	0.000	0.000	
total-HCH	0.051	0.033	0.035	0.060	0.032	0.035	0.153	0.122	0.060	0.167	0.032	0.185	0.010	0.000	0.000	
p,p-DDT	0.038	0.059	0.066	0.049	0.063	0.066	0.161	0.174	0.049	0.173	0.063	0.234	0.039	0.058	0.064	
p,p-DDE	0.244	0.152	0.201	0.174	0.128	0.201	0.244	0.294	0.174	0.290	0.128	0.291	0.204	0.141	0.148	
p,p-DDD	0.044	0.059	0.050	0.054	0.022	0.050	0.155	0.158	0.054	0.177	0.022	0.197	0.028	0.048	0.014	
o,p-DDT	0.012	0.020	0.014	0.010	0.010	0.014	0.204	0.203	0.010	0.233	0.010	0.185	0.000	0.000	0.014	
total-DDT	0.338	0.557	0.332	0.286	0.223	0.332	0.479	0.424	0.286	0.402	0.223	0.362	0.308	0.276	0.266	
Dieldrin	0.014	0.029	0.027	0.090	0.053	0.027	0.217	0.218	0.090	0.324	0.053	0.333	0.015	0.000	0.000	
Hep.Epoxyde	0.039	0.021	0.016	0.016	0.046	0.016	0.119	0.110	0.016	0.124	0.046	0.199	0.000	0.000	0.000	
HCB	0.014	0.006	0.017	0.071	0.021	0.017	0.133	0.140	0.071	0.221	0.021	0.224	0.002	0.000	0.000	
PCB	0.748	1.339	0.679	0.619	0.998	0.679	1.339	1.686	0.619	1.637	0.998	2.033	0.486	0.600	0.572	
Malathion	0.000	1.032	0.002	4.426	0.000	0.002	2.407	1.489	4.426	6.256	0.000	1.812	0.000	0.000	0.000	
MEP	0.000	0.058	0.001	0.020	0.000	0.001	0.991	1.179	0.020	1.902	0.000	1.821	0.000	0.000	0.000	
Diazinon	0.000	0.912	0.000	0.027	0.000	0.000	0.946	1.063	0.027	1.767	0.000	1.694	0.000	0.000	0.000	
P b	22.5	23.3	21.2	26.8	20.8	21.2	24.1	23.4	26.8	30.3	20.8	26.2	20.8	22.0	17.1	
C d	29.3	29.6	25.6	21.6	22.3	25.6	26.5	26.1	21.6	22.2	22.3	22.7	27.6	27.3	19.3	
H g	7.0	8.7	8.1	8.5	9.5	8.1	9.5	9.4	8.5	9.4	9.5	10.7	6.9	8.0	8.8	
A s	157	160	186	160	178	186	184	188	160	164	178	184	112	183	157	
C u	1213	1150	1188	1504	1223	1188	1152	1190	1504	1506	1223	1226	1142	1122	1140	
M n	3456	3327	3209	3971	3769	3209	3327	3209	3971	3974	3769	3771	3639	3108	3732	
Z n	8498	8415	8667	9433	8884	8667	8415	8667	9433	9434	8884	8884	8579	8272	8735	

*:withdrawn **:Japanese standard

Table 2 汚染物摂取量食品群別比較

汚染物	LQ=各機関独自 単位= $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$														Total
	I 米	II 雑穀・芋砂糖・菓子	III 油脂	IV 豆・豆加工品	V 果実	VI 有色野菜	VII 野菜海草	IX 嗜好品	X 魚介	XI 肉・卵	XII 乳・乳製品	XIII 加工食品	XIV 飲料水	Total	
α -HCH	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.005	0.000	0.000	0.000	0.000	0.006	
β -HCH	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.008	0.000	0.000	0.005	0.006	0.000	0.000	0.000	0.019	
γ -HCH	0.000	0.000	0.006	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.007	
δ -HCH	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
Total-HCH	0.000	0.000	0.006	0.000	0.000	0.010	0.000	0.000	0.009	0.006	0.000	0.000	0.000	0.032	
p,p'-DDT	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.002	0.000	0.000	0.061	0.000	0.000	0.000	0.000	0.063	
p,p'-DDE	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.002	0.000	0.000	0.090	0.014	0.021	0.000	0.000	0.128	
p,p'-DDD	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.022	0.000	0.000	0.000	0.000	0.022	
o,p'-DDT	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.010	0.000	0.000	0.000	0.000	0.010	
Total-DDT	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.004	0.000	0.000	0.183	0.014	0.021	0.000	0.000	0.223	
Dieldrin	0.000	0.000	0.000	0.000	0.011	0.008	0.017	0.000	0.015	0.000	0.000	0.000	0.000	0.053	
Hep. Epoxide	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.021	0.020	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.041	
HCB	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.021	0.000	0.000	0.000	0.000	0.021	
PCB	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.994	0.145	0.003	0.000	0.000	1.142	
Malathion	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
MEP	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
Diazinon	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
Pb	5.13	1.17	0.38	0.06	0.79	1.73	3.30	2.94	1.45	0.83	0.59	1.28	0.00	20.9	
Cd	10.38	2.76	0.38	0.00	0.79	0.08	1.17	0.21	2.86	0.05	0.03	0.78	0.00	22.3	
Hg	0.57	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.03	0.00	8.48	0.42	0.00	0.03	0.00	9.5	
As	9.95	0.56	0.56	0.00	0.13	0.05	62.02	0.66	100.56	0.47	0.05	3.15	0.01	178	
Cu	359.25	180.97	37.05	0.80	129.77	59.30	92.43	31.94	110.11	84.68	21.40	64.09	0.46	1223	
Mn	998.57	418.79	76.26	0.27	351.17	264.38	188.82	754.61	46.18	19.77	19.99	377.49	0.03	3769	
Zn	2484.06	757.97	160.76	4.28	502.53	112.01	322.83	371.24	936.49	1797.91	601.39	371.40	10.21	8884	

Table 3 汚染物摂取量地域別比較

汚染物	ND=0										LQ=各機関独自				単位=μg/man/day	
	北海道	新潟	千葉	横浜	名古屋	大阪	滋賀	香川	沖縄	MEAN	S. D	MEDIAN	90%ile			
α-HCH	0.042	0.000	0.000	0.000	0.000	0.010	0.000	0.000	0.000	0.01	0.01	0.00	0.02			
β-HCH	0.073	0.000	0.000	0.000	0.000	0.095	0.000	0.000	0.000	0.02	0.04	0.00	0.08			
γ-HCH	0.022	0.000	0.000	0.034	0.000	0.010	0.000	0.000	0.000	0.01	0.01	0.00	0.02			
δ-HCH	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.00	0.00	0.00	0.00			
Total-HCH	0.136	0.000	0.000	0.034	0.000	0.115	0.000	0.000	0.000	0.03	0.05	0.00	0.12			
p, p' -DDT	0.056	0.055	0.000	0.082	0.114	0.092	0.104	0.064	0.000	0.06	0.04	0.06	0.11			
p, p' -DDE	0.202	0.148	0.000	0.077	0.090	0.189	0.196	0.208	0.040	0.13	0.07	0.15	0.20			
p, p' -DDD	0.042	0.047	0.000	0.014	0.000	0.041	0.000	0.052	0.000	0.02	0.02	0.01	0.05			
o, p' -DDT	0.028	0.016	0.000	0.014	0.000	0.017	0.000	0.018	0.000	0.01	0.01	0.01	0.02			
Total-DDT	0.328	0.266	0.000	0.187	0.204	0.339	0.300	0.343	0.040	0.22	0.12	0.27	0.34			
Dieldrin	0.089	0.000	0.000	0.292	0.000	0.071	0.000	0.028	0.000	0.05	0.09	0.00	0.13			
Hep. Epoxide	0.041	0.000	0.143	0.186	0.000	0.000	0.000	0.000	0.041	0.05	0.07	0.00	0.15			
HCB	0.070	0.000	0.000	0.041	0.024	0.000	0.056	0.000	0.000	0.02	0.03	0.00	0.06			
PCB	0.000	0.969	0.261	0.550	1.462	0.459	0.572	2.234	2.476	1.00	0.83	0.57	2.28			
Malathion	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.00	0.00	0.00			
MEP	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.00	0.00	0.00			
Diazinon	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.00	0.00	0.00			
Pb	14.1	17.1	13.6	31.7	45.1	33.5	3.4	7.8	20.8	20.8	12.70	17.05	35.78			
Cd	30.3	17.0	10.1	18.7	14.5	27.1	25.4	19.3	38.0	22.3	8.16	19.32	31.80			
Hg	9.4	6.3	11.7	8.8	16.0	10.1	7.9	8.7	6.8	9.5	2.76	8.80	12.55			
As	171	110	36	279	150	27	157	408	267	178	115.40	157.15	304.72			
Cu	1433	1140	1238	1455	1122	1006	1042	1013	1561	1223	198.17	1139.76	1476.50			
Mn	3732	2642	5596	3811	4484	2860	3999	3547	3254	3769	837.59	3732.19	4706.23			
Zn	9766	7327	11645	9090	7423	8735	8472	7784	9712	8884	1294.82	8734.86	#####			