

であった。フロリジルカラムはスルホキシドカラムと同様に、OH-PCBsの固相への吸着性が高く、PCBs分析の試験条件を適用しても溶出が困難であった。

高速溶媒抽出(ASE)の抽出溶媒にアセトニトリルを用いると、回収率は低塩素化体ほど低くなる傾向が認められたが、5~7塩素化体は100%付近の安定した良好な回収率が得られた。抽出溶媒にアセトン・ヘキサン(1:1)を用いると回収率が97~310%となり、評価が困難であった。

誘導体化反応率はOH-PCBs濃度に依存しないが、塩素数や水酸基の置換位置によって反応率が大きく変動した。OH-PCBsは、誘導体化せずにGC/MSで測定することにより、精度の高い分析が実施可能と考えられた。

水試料からのOH-PCBsの抽出は、室温でジクロロメタンを用いる液-液振とう抽出よりも、加熱してトルエンを用いるソックスレー抽出の方が有効であった。誘導体化操作の有無で結果を比較すると、誘導体化した場合のOMe-PCBs濃度が非誘導体化法に比べて高くなった。誘導体化率が異性体によって異なるため、両者の定量値に差が生じたものと考えられる。

多環芳香族炭化水素 (PAHs) 分析法開発研究

内標準物質の選択を行った。¹³C標識体は標識数が4~6個の化合物が殆どであり、測定対象物質のモニターイオンに¹³C標識体由来のフラグメントピークが出現する現象が認められた。最も重要な測定対象であるBenzo[a]pyrene (BAP)ではピークの強度が特に大きかった。一方、D標識化合物から

は測定対象物質の溶出位置にピークは確認されなかった。また、D標識化合物は測定対象物質と比べ、若干溶出時間が早く、溶出時間が近い場合でも標識数が12個と多いため、フラグメントピークの測定対象物質のモニターイオンへの影響は小さくなると考えられた。以上の結果から内標準物質としてD標識体が適していると結論した。

EU等で設定されている燻製食品中のBAPの基準値は5.0 µg/kgである。また、2014年9月よりBAPの基準値が2.0 µg/kgに引き下げられる予定である。これらの基準値が定量可能となるように検量線濃度の設定を行った。検量線の定量範囲は各検量点の検量線への適合性により判断した。検量線にその作製に使用した各検量点より得られた面積値を代入して算出される濃度の理論濃度に対する比率を指標とし、この比率の100%からの乖離の程度が10%以下である範囲を検量線の定量範囲とした。

前処理に使用する固相ミニカラムとして、シリカゲルミニカラムとPSAミニカラムを比較した。シリカゲルミニカラムではDibenzo[a,i]pyrene (DIP)及びDibenzo[a,h]pyrene(DHP)の回収率が低く、それ以外のPAHsの回収率は72~122%であった。PSAミニカラムではPAHs16種の回収率は80~122%であった。DIP及びDHPも良好な回収率が得られた。

市販のウイスキー3種を用いて添加回収試験を行った。EUの乳幼児食品の基準値である1.0 µg/kgを添加濃度とした。いずれの試料についても、PAHs16種の真度は80%以上、併行精度は2.4%以下であった。市販の魚燻製食品の添加回収試験では、2014年9月よりの基準値である2.0 µg/kgを添加濃度

とした。5-methylchrysene(5MC), Dibenz[a,h] anthracene(DHA), Dibenz[a,l]pyrene (DLP), Dibenz[a,e]pyrene(DEP)の真度は120%を超える結果が得られ, その他のPAHsも真度が100%をこえる場合が多かった。PAHs4種にの真度は96.0 ~113.5%, 併行精度は0.3~1.7%で, 比較的良好な結果であった。内標準物質の回収率は概ね80~120%の範囲であったが, D₁₂-BAPの回収率が120%を超過するケースが認められた。今後は魚燻製品で真度が高くなった原因を探り, 良好な真度が確保できるよう検討する必要がある。

有機臭素化合物分析法開発研究

昨年度に確立した分析方法を用いて, 魚介類個別食品試料中の臭素系難燃剤の分析を行った。12検体中4検体の魚介類からDBDPEが検出され, 検出濃度は5.86~8.08 pg/g wet weight(ww)であった。

関東及び九州地区でマーケットバスケット方式による摂取量調査を行った。PBDEsの1日摂取量(ND=0)は, 関東地区が1.66 ng/kg bw/day, 九州地区が1.93 ng/kg bw/dayであった。2007年度に実施した調査結果より4-5割低い値であった。PBBsの1日摂取量は, 関東地区が0.00786 ng/kg bw/day, 九州地区が0.00238 ng/kg bw/dayであった。関東地区は2007年度に実施した調査結果とほぼ同等の値であり, 九州地区は6割程度低かった。

今回新たに調査したDBDPEの1日摂取量(ND=0)は, 関東地区が0.0254 ng/kg bw/day, 九州地区が0.0038 ng/kg bw/dayであった。DBDPEのNOAEL(無毒性量)は1000 ng/kg bw/dayという報告があり, 不確実係数として3000で割った値を参照容量(RfD)として用い

ている。この値と比較すると, 今回の摂取量は 4×10^6 分の1以下であり, 極めて低いレベルと考えられる。

C. 結論

高感度 CALUX アッセイの乳, 卵および肉への適用拡大では, 以下の結論が得られた。

1. 牛乳, 鶏卵, 豚肉に対する添加回収試験を実施した結果, ダイオキシン類の回収率は大きく変動し, 低回収率の場合が多かった。
2. 今回検討した食品では, 活性炭カラムにおけるダイオキシン類の損失が示唆されたため, 精製操作を再検討する必要がある。

食品由来ダイオキシン様物質の探索研究では, 以下の結論が得られた。

1. ローズマリーに含有される天然AhRアゴニストを精査し, 最もAhR活性の強い酢酸エチルエキスの主成分として rosmarinic acid及びnepitrinを単離, 同定した。
2. 同定した2化合物のAhR活性を評価したところ, いずれにも活性が認められ, nepitrinの活性は特に強かった。

食品中PCB代謝物の分析法開発に関する研究では, 以下の結論が得られた。

1. 高速溶媒抽出法で良好な標準品回収率が得られ, 水試料を用いた実験では液-液抽出法よりもソックスレー抽出法が有効であった。
2. OH-PCBsのHRGC/HRMSにおける装置検出感度は, 誘導体化合物のOMe-PCBsとほぼ同等であった。また, 従来の誘導体分析法は反応率のバラツキにより定量誤差を生

じやすいことを示した。精製操作の効率性・有効性に重きを置いたとき、従来の誘導体化法が有利と判断する場合もあり得る。

ng/kg bw/day であった。

多環芳香族炭化水素(PAHs)分析法開発研究からは、以下の結論が得られた。

1. 内標準物質を検討し、測定対象物質のモニターイオンへの影響が小さいD標識体の使用が適当であると考えられた。
2. PSA ミニカラムは PAHs16 種の回収が良好であり、前処理に使用するカラムとして適していた。
3. ウイスキー及び魚燻製食品を用いて添加回収試験を実施した。ウイスキーは PAHs16 種で良好な真度と併行精度が得られた。魚燻製食品については一部の PAHs で真度が高くなる現象が認められたが、PAHs4 種については比較的良好的な真度と併行精度が得られた。

有機臭素化合物分析法開発研究からは、以下の結論が得られた。

1. 魚介類個別食品試料 12 検体中 4 検体の魚介類から DBDPE が検出され、検出濃度は 5.86~8.08 pg/g wet weight(ww)であった。
2. PBDEs の 1 日摂取量(ND=0)は、関東地区が 1.66 ng/kg bw/day, 九州地区が 1.93 ng/kg bw/day であり、2007 年度の調査結果より 4-5 割低い値であった。PBBs の 1 日摂取量は、関東地区が 0.00786 ng/kg bw/day, 九州地区が 0.00238 ng/kg bw/day であった。関東地区は 2007 年度に実施した調査結果とほぼ同等の値であり、九州地区は 6 割程度低かった。
3. DBDPE の 1 日摂取量(ND=0)は、関東地区が 0.0254 ng/kg bw/day, 九州地区が 0.0038

D. 研究発表

1. 論文発表

- 1) 坂本智徳, 赤木浩一, 渡邊敬浩, 松田りえ子, 樋脇弘: 食品中メチル水銀の定量分析のためのフェニル誘導体化 GC-MS 法の開発, BUNSEKI KAGAKU Vol. 61, No. 4, 327-333 (2012),
- 2) Amakura Y, Tsutsumi T, Nakamura M, Handa H, Yoshimura M, Matsuda R, Yoshida T: Characterization of natural AhR ligands in health foods estimated by in vitro reporter gene assay, *Organohalogen Compd.*, 73, 738-741 (2011)
- 3) Yasutake, D., Hori, T., Kurokawa, Y., Kajiwara, J., Tsutsumi, T., Amakura, Y.: The Measurement of Hydroxylated Polychlorinated Biphenyls without Derivatization using a high-resolution gas chromatograph / high-resolution mass spectrometer. *Organohalogen Compounds* 73, 625-628 (2011).
- 4) Ashizuka, Y., Yasutake, D., Nakagawa, R., Shintani, Y., Hori, T., Tsutsumi, T., Matsuda R: Improvement of methods for analyzing brominated flame retardant in food. *Organohalogen Compounds*, 73, (2011).

2. 学会発表

- 1) 堤 智昭, 石井 利華, 菊地 博之, 高附 巧, 松田りえ子: 魚介類及びそれらを使用した弁当からのダイオキシン類摂取量, 第 102 回日本食品衛生学会学術講演会 (2011.9).
- 2) 堤 智昭, 天倉吉章, 中村昌文, 半田洋士, 松田りえ子: 高感度 CALUX アッセイによる市販魚中のダイオキシン類分析, 第 20 回環境化学討論会 (2011.7)

- 3) 天倉吉章, 堤 智昭, 中村昌文, 半田洋士, 福田寿之, 好村守生, 松田りえ子, 吉田隆志: 松の実脱脂エキスに含まれる天然 AhR 活性成分, 第 50 回日本薬学会・日本薬剤師会・日本病院薬剤師会中国四国支部学術大会 (2011.11).
- 4) 天倉吉章, 堤 智昭, 中村昌文, 半田洋士, 好村守生, 松田りえ子, 吉田隆志: 天然食品成分の AhR 活性, 第 4 回食品薬学シンポジウム (2010.10).
- 5) Amakura Y, Tsutsumi T, Nakamura M, Handa H, Yoshimura M, Matsuda R, Yoshida T: Characterization of natural AhR ligands in health foods estimated by in vitro reporter gene assay, 31th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (2011. 8).
- 6) 安武大輔, 堀就英, 黒川陽一, 梶原淳睦, 堤 智昭, 天倉吉章: 誘導体化を必要としない水酸化ポリ塩化ビフェニル (OH-PCBs) 測定が可能なキャピラリーカラムの検討, 第 20 回環境化学討論会 (2011.7).
- 7) Yasutake, D., Hori, T., Kurokawa, Y., Kajiwara, J., Tsutsumi, T., Amakura, Y.: The Measurement of Hydroxylated Polychlorinated Biphenyls without Derivatization using a high-resolution gas chromatograph / high-resolution mass spectrometer, *Dioxin 2011 (31st International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (POPs))* (2011.8).
- 8) 堀 就英, 安武大輔, 黒川陽一, 梶原淳睦, 堤 智昭, 天倉吉章: 食品中の水酸化 PCBs 分析法の検討, 第 48 回全国衛生化学技術協議会年会 (2011.11)

- 9) Ashizuka, Y., Yasutake, D., Nakagawa, R., Shintani, Y., Hori, T., Tsutsumi, T., Matsuda R: Improvement of methods for analyzing brominated flame retardant in food. 31st International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (2011.8).
- 10) 芦塚由紀, 安武大輔, 中川礼子, 新谷依子, 堀 就英, 堤 智昭, 松田りえ子 : 食品における臭素系難燃剤分析法の検討. 第48回全国衛生化学技術協議会年会 (2011.11).

3. その他

なし

E. 研究成果による特許権等の知的財産権の出願・登録状況
なし

F. 健康危険情報
なし

分 担 研 究 報 告

日常食からの汚染物質摂取量推定に関する研究

渡邊 敬浩

平成23年度厚生労働科学研究補助金 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

研究分担報告書

日常食からの汚染物質摂取量推定に関する研究

研究代表者 松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所食品部部長
研究分担者 渡邊敬浩 国立医薬品食品衛生研究所食品部第三室長

研究要旨

マーケットバスケット方式により調製したトータルダイエツト(TD)試料を分析し、得られた分析結果に基づき化学物質摂取量を推定した。ヘキサクロシクロヘキサシ(HCH)類、DDT類、ディルドリン、ヘプタクロルエポキサイド(HCE)、ヘキサクロロベンゼン(HCB)、マラチオン、MEP、ダイアジノンは、1977年の調査開始当初に比べ摂取量が大きく低下している。本年度も、過去10年間と同程度の低い摂取量が推定された。一方、PCBでは、1980年代中頃以前のレベルに相当する高い摂取量が推定された。この結果は、協力11機関中1機関で推定された摂取量が突出して高かった事を反映している。当該機関からは、TD試料全14食品群、8食品群の試料からPCBが検出されたとも報告されている。当該地域でのみ多数の食品群試料にまたがりPCB濃度が高かった原因は不明である。なお、当該機関からのデータを除いた推定摂取量は過去10年間と同程度の値であった。

定量結果の得られる試料数の激減に伴い、定量限界値未満(ND)となった分析結果の取扱い方により、推定摂取量が大きく変化する結果にも変わりがなかった。摂取量を推定する汚染物質や分析に使用する試料の選定、また摂取量推定の算術方法について見直すことは、時機に応じた汚染物質摂取量を効率的に、正しく推定するために取り組むべき大きな課題といえる。

鉛、カドミウム、ヒ素、水銀、銅、マンガン、亜鉛の摂取量には大きな変化は見られず、定量結果が得られる試料の割合も高い。鉛、カドミウム、ヒ素、水銀については、リスク評価方法の見直しや形態別の規制が国際的に議論されている。また、鉛、カドミウムは過去に示されてきたPTWIあるいはTWIに対する摂取量の比率も大きい。以上を考慮すれば、これら金属類については、化学形態別分析法の導入等と合わ

研究協力者 国立医薬品食品衛生研究所食品部 松田りえ子、五十嵐敦子

汚染物質摂取量調査研究協力者

北海道立衛生研究所

高橋哲夫

新潟県保健環境科学研究所

吉崎麻友子

横浜市衛生研究所	高津和弘	佐藤昭男
福井県衛生環境センター	青木保憲	
名古屋市衛生研究所	寺田久屋	加藤陽康
滋賀県衛生科学センター	小林博美	
大阪府立公衆衛生研究所	阿久津和彦	起橋雅浩
香川県環境保健研究センター	西岡千鶴	安永恵
宮崎県衛生環境研究所	樺山恭子	
沖縄県衛生環境研究所	古謝あゆ子	
別府大学	松本比佐志	

A. 研究目的

化学物質は主に飲食を通じて摂取されると考えられている。特に、健康危害の知られる汚染物質の摂取は、飲食が人の生活に不可欠なこともあり、社会的な関心が高い。また現在は、平成23年に発生した原子力発電所の事故に伴い、環境中に放出された放射性物質の摂取に国民の強い懸念がある。放射性物質に限らず、発電所の事故を引き起こした震災は、その他の汚染化学物質の摂取量を変化させた可能性もある。

一般に、飲食を通じた各種汚染物質の摂取量推定値は、該当する汚染物質に関する新たな施策提案及び施行済み施策の効果検証の科学的根拠となる重要な知見である。JECFAにより鉛やヒ素に新たなリスク評価手法を適用することが検討され、食品安全委員会により鉛の健康影響の自ら評価が実施されるなど、古くから知られる汚染物質についても、最新の知見に基づき、より適切な管理を目的とした見直しが進められている。このような動きに合わせるかのように、EFSA, FAO, WHOからは、摂取量推定研究のハーモナイゼーションを進めるためのジョイントガイダンス「Towards to harmonized Total Diet Study」が公開され、その中で、より信頼性の高い摂取量推定が

求められているところでもある。

トータルダイエツト(TD)スタディーは、化学物質の摂取量を推定するための代表的な研究方法の一つである。調理済み食品から調製するTD試料を用いるため、より喫食による化学物質の摂取を模した、実際的な摂取量を推定できるという利点がある。

本研究では、日本人の食品摂取量に基づきマーケットバスケット方式によって調製したTD試料の分析を通じて、各種化学物質摂取量を推定した。また、摂取量推定値の信頼性を高めるために、異なる算出方法により推定される摂取量の特徴や、摂取量推定を目的に使用される分析法に要求される性能について考察した。さらに、摂取量推定すべき汚染物質の選定について検討した。

B. 研究方法

日本人が日常的にとる食事(日常食)からの化学物質摂取量を推定するため、日常食のモデルとしてマーケットバスケット方式によるTD試料を調製した。TD試料の調製は、試料に含める食品数を多くすることと、地域による食品摂取パターンの違いを考慮することを目的に、全国11カ所の衛生研究所および大学で行った。各地域における

個々の食品の摂取量は、平成19年度に行われた国民健康・栄養調査の結果を地域別に集計した結果に基づいた。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加工を行ってから、1日当たりの摂取量に従って秤量し、混合・均質化することで試料を調製した。一部の機関を除き、試料中の各種汚染物質濃度の分析も試料調製機関において実施し、得られた濃度と食品摂取量を掛け合わせ、1日あたりの食事からの汚染物質摂取量を推定した。ヘキサクロシクロヘキサン(HCH)類、DDT類、ディルドリン、ヘプタクロルエポキサイド(HCE)、ヘキサクロロベンゼン(HCB)、PCB(PCB類)、マラチオン、MEP、ダイアジノン、鉛、カドミウム、ヒ素(総ヒ素)、水銀(総水銀)、銅、マンガン、亜鉛を摂取量推定対象とした。

C. 研究結果

1)平成23年度の摂取量推定結果

Table 1 にヘキサクロシクロヘキサン(HCH)類、DDT類、ディルドリン、ヘプタクロルエポキサイド(HCE)、ヘキサクロロベンゼン(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)の食品群別摂取量および総摂取量を示した。摂取量推定のための算術には、分析結果がそれぞれの機関の定量限界(LQ)以下(ND)の場合に濃度を0として計算する方式(ND=0)と、LQの1/2の濃度とする方式(ND=LQ/2)の2種類を採用した。ND=0とする方式により得た推定値をTable 1-1に、ND=LQ/2とする方式により得た推定値をTable 1-2に示した。

食品群ごとの各汚染物質摂取量は、各機関ごとに推定した摂取量の平均値として算出した。また、各汚染物質の総摂取量は、食品群ごとの各汚染物質摂取量平均値の総和とした。食品群ごとに分析した全11試料中、NDとはならず汚染物質の定量値が得られた試料(検出された試料)数をTable 3に示した。

HCH類についてみると、 δ -HCHは、14食品群の全てで検出されなかった。検出数が最大となった食品群は、10群(魚介)であった。しかしその数は少なく、 α -HCHが2試料、 β -HCHと γ -HCHがそれぞれ1試料で検出されたのみであった。10群に次いで検出数が多かった食品群は、7群(有色野菜)と11群(肉・卵)であり、それぞれ β -HCHが1試料もしくは2試料から検出された。上記7群、10群、11群を除く、11の食品群からは、HCH類は検出されなかった。HCH類の総摂取量推定値は、ND=0として算出すると0.029 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、ND=LQ/2として算出すると1.186 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ となり、算術方式による大きな差(約40倍)が認められた。

DDT類(p,p' -DDT、 p,p' -DDE、 p,p' -DDD、 o,p' -DDT)は、10群から高頻度に(11試料中の6~9試料から)検出された。それ以外の食品群についてみると、 p,p' -DDEのみが、11群と12群(乳・乳製品)のそれぞれ6試料から、 p,p' -DDEと o,p' -DDTがそれぞれ4群(油脂)と7群の1試料のみから検出された。上記4群、7群、10群、11群、12群を除く9の食品群からはDDT類は検出されなかった。総摂取量推定値は、ND=0として算出すると0.312 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 、ND=LQ/2として算出すると1.350 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ となり、算術方式による差は認められるものの、HCH類ほどの大き

さではなかった。

HCH類およびDDT類以外の塩素系農薬が検出された試料の数は、HCH類およびDDT類に比べても少なく、HCBが10群の6試料から検出されたのが最大であった。HCBは10群以外に、4群、7群、11群の各1試料のみから検出された。ディルドリンは、7群の1試料と10群の3試料から、ヘプタクロルエポキサイドは8群(その他の野菜と海藻)の2試料から検出された。ディルドリン、ヘプタクロルエポキサイド、HCBの総摂取量は、ND=0として算出すると、それぞれ0.012 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$, 0.005 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$, 0.023 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と推定された。またND=LQ/2として算出すると、それぞれ1.378 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$, 1.220 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$, 1.235 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と推定された。

PCBは、10群の全11試料から検出された。10群以外にも、3群(菓子・砂糖)、4群、5群(豆・豆加工品)、6群(果実)、7群、8群、9群(嗜好品; アルコール・嗜好飲料を含む)、そして11群の計9食品群に亘り広く検出されたが、検出された試料数は1であり、いずれも同一機関からの報告であった。これらの結果を反映し、PCB摂取量推定値は、ND=0として算出した場合でも2.834 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ となり、1980年代中盤に推定されていた量と同程度の高い値となった(Fig. 4-1)。また、算術方式による推定値の乖離は小さく、ND=LQ/2として算出される摂取量推定値は3.785 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ となった。

特定の一機関において、多数の食品群にまたがりPCBが検出された原因は不明である。機関に固有の原因があった場合、当該機関からの結果を含める事で、過剰な摂取量推定値が算出されることになる。そこで

本機関での推定値を含めず、全10機関として推定した結果もTable 2に併せて示す。ND=0として算出される摂取量推定値は0.458 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ (Table 2-1), ND=LQ/2として算出される摂取量推定値は1.451 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ (Table 2-2)となり、過去10年間と同程度の数値であった(Fig. 4-2)。

3種の有機リン系農薬中、ダイアジノン、全食品群から検出されなかった。またマラチオンとMEPもそれぞれ8群と10群の1試料から検出されたのみで、検出の頻度は極めて低かった。算出方式による推定摂取量の乖離も大きく、ND=0とした場合に、マラチオンが0.025 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$, MEPが0.112 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$, ダイアジノンが0 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と推定されるのに対し、ND=LQ/2とした場合には、1.917 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$, 2.068 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$, 1.900 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と推定されるため、約20~70倍の差となった。

金属類は全ての食品群から検出された。銅、マンガン、亜鉛は14群(飲料水)を除いた群において半数以上の試料から検出されており、うち1群(米)、2群(雑穀・芋)、3群、5群、6群、7群、10群、11群、13群(加工食品)においては11試料の全てから検出されている。銅、マンガン、亜鉛それぞれの摂取量は、ND=0とした場合に1233 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$, 3896 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$, 8339 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$, ND=LQ/2とした場合に、1250 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$, 3897 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$, 8347 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と推定され、よく一致していた。

鉛は、全ての群でほぼ半数以上の試料から検出されており、各群で検出された試料の数は、4~8であった。特定の食品群で検出される試料の数が大きくなる傾向は認められなかった。摂取量は、ND=0とした場合

に12.45 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$, $\text{ND}=\text{LQ}/2$ とした場合に21.97 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と推定され, 上記3種の金属ほどではないが, 検出された試料数の少ない農薬類に比べよく一致した.

カドミウムは, 検出された試料数が4群, 9群, 12群では2~3, 11群と14群のそれぞれで4と半数以下であるが, それ以外の食品群においては7~11試料から検出された. 特に, 5群からは11試料の全て, 1群, 7群, 8群, 10群からは10試料から検出されている. 摂取量は, $\text{ND}=0$ とした場合に27.93 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$, $\text{ND}=\text{LQ}/2$ とした場合に29.71 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と推定され, よく一致した.

水銀は, 10群において11試料の全てから検出されており, 次に検出された試料数が多いのは11群で, その数は6である. それ以外の食品群において検出された試料の数は, 2~4であった. 摂取量は, $\text{ND}=0$ とした場合に7.752 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$, $\text{ND}=\text{LQ}/2$ とした場合に11.49 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と推定され, その乖離の程度は, 鉛の推定結果を比較した場合と同程度と言える.

ヒ素は, 8群において11試料の全てから検出されており, 10群においても10試料から検出されている. これらに次いで検出された試料数が多い食品群は, 1群でありその数は7である. それ以外の食品群においては, 1~6試料で検出されている. 摂取量は, $\text{ND}=0$ とした場合に196.7 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$, $\text{ND}=\text{LQ}/2$ とした場合に203.8 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ と推定され, よく一致した.

研究成果として得られた, 上記の摂取量推定値($\text{ND}=0$)を, 研究を開始した1977年からの経時変化が分かるようにグラフ化した結果をFig. 1~Fig. 8に示した.

総HCH摂取量は, 調査開始当初は2

$\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ であったが, 1980年代に急激に, そしてそれ以降も緩やかに減少を続け, 2000年頃から0.1 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 以下の状態が継続している. $\delta\text{-HCH}$ は2001年以降全ての試料から検出していない.

総DDT摂取量は, 調査開始当初は4 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ であったが, HCH類と同じく1980年代に急激に, そしてそれ以降も緩やかに減少を続け, 2000年以降は0.3 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 付近でほぼ一定している. 異性体別にみると, p,p' -DDEの摂取量が最も高く, この傾向も10年間変わっていない. 10群試料からは全ての異性体が検出され, 検出される試料数が全分析試料数の半数以上となる傾向にも変化がない. その他の異性体として特徴的な検出傾向を示すものに, p,p' -DDEが挙げられる. p,p' -DDEは10群の他に, 4群, 11群, 12群の試料から検出されており, 過去の研究では, 7群試料からも検出されている. このようにDDT類は, HCH類に比較して, 多数の食品群からの検出がその頻度を大きく変えることなく続いており, 摂取量も低レベルながら, 直近の10年間減少傾向は見られない.

その他の塩素系農薬の摂取量は, 1990年代の後半から2000年に推定された低いレベルから一定して, 現在まで推移している.

PCB摂取量は, 1990年代中盤までに急激に減少した. しかし, それ以降の減少は極めて緩やかとなっている. また, 先述の通り, 本年度推定されたPCB摂取量(2.834 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$; $\text{ND}=0$)が, 過去の調査結果に比べ突出して高いことが良く分かる.

有機リン系農薬中, マラチオンおよびMEPの摂取量は, 調査開始当初には1~3 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ 程度であったが, HCHやDDTと

同様、1980年代に急激に減少し、1995年代の半ばからは、0.1 µg/man/day以下の低い摂取量で推移している。ダイアジノン摂取量は、調査開始当初から一貫して低い。また、上記3種の有機リン系農薬が検出される試料数は、近年、極めて少なくなっている。

金属類の摂取量は、鉛摂取量が、研究開始当初の1/5程度に減少したことを除き、大きく変化していない。

2)検出される試料数の解析

1977年の研究開始から現在まで継続して摂取量推定している汚染物質の検出試料数を、食品群ごとに集計した。期間は、当研究で推定している多くの汚染物質の摂取量が急激に低減した後、現在と大きく変わる事のない低いレベルで推移するようになり10年程度が経過した、2003年から2010年までの8年間とした。解析対象とした総データ数(総試料数)は約2500である。汚染物質と食品群との組み合わせごとのデータ(分析した試料)数は308である。検出した試料数を汚染物質と食品群の組み合わせごとにまとめた結果をTable 4-1に示す。また、検出した試料数を分析した試料数(78)で除して算出した検出頻度をTable 4-2に示す。さらに、検出頻度が10%以上であった場合と20%であった場合をそれぞれ○印で示した結果をTable 4-3とTable 4-4に示した。

摂取量推定している全ての農薬類と食品群との組み合わせの総数は210である。このうち、10%以上の頻度で検出された組み合わせ数は19、20%以上の頻度で検出された組み合わせ数は13である。また、13の組み合わせのうち、10群試料といずれかの農薬

との組み合わせの数が9を占める。つまり、20%の検出頻度を閾値としておけば、過去8年間、検出された農薬の摂取量に寄与した食品群は主に10群であると言える。

これに対し、金属類と食品群との組み合わせの総数は98であり、このうち、20%以上の頻度で全ての食品群から検出されている銅、マンガン、亜鉛が42を占める。これを除いた鉛、カドミウム、水銀、ヒ素と食品群の組み合わせ総数である56のうち、10%以上の頻度で検出された組み合わせ数は50である。総数からの減少分となる6つの組み合わせの分析対象は全て水銀である。鉛、カドミウム、ヒ素は、全ての食品群から10%以上の頻度で検出されている。また、20%以上の頻度で検出された組み合わせ数は、44である。カドミウムと14群との組み合わせが検出頻度の閾値を満たさなくなる以外、鉛、カドミウム、ヒ素の検出頻度は変わらない。つまり、全食品群から20%以上の頻度で検出されている。水銀の検出頻度は、1群、10群、11群の3食品群でのみ、20%を上回っている。

D. 考察

1)平成23年度汚染物摂取量推定結果

今年度の汚染物摂取量推定に特異な結果として、PCB摂取量推定値が過去30年間で上位を占める高い値となったことについて考察する。本年度の研究結果から、PCBの摂取量は2.834 µg/man/dayと推定されており、これは、1977年に推定された3.3 µg/man/day、1978年と1980年に推定された3.1 µg/man/dayに次いで、過去30年間で3番目に高い値である。また、昨年度推定された摂取量(0.3174 µg/man/day)の約10倍とな

る。このように高い摂取量が推定された直接の原因は、特定一機関の摂取量推定値が他機関の20倍を超える高い値であった事である。しかし、当該機関が調製し分析した複数の食品群にまたがる試料中に、PCBが高濃度で含まれていた原因については明らかにすることができなかつた。いずれせよ、特異な事例であり、今後注意は必要であるが、今年度の結果を持って、一般的な日本人のPCB摂取量が増加したと判じる合理性は低い。なお、当該機関で得られた結果を除いたPCB摂取量推定値は0.458 $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$ であり、昨年を含む過去10年間と同程度の数値である。

その他の汚染物質摂取量推定結果に、特徴的な点は確認されなかつた。HCH類、DDT類、その他有機塩素系農薬、マラチオン、MEP、ダイアジノンの摂取量は、直近の10年間と同程度の低いレベルで安定して推移している。全く検出されないことも含め、各汚染物質が検出される試料数や食品群にも、特異な結果は認められなかつた。

2) 摂取量推定に使用する算術と分析法

摂取量推定に使用する算術と分析法について、本年度の研究結果を踏まえ考察する。摂取量推定の算術において、 $\text{ND}=0$ あるいは $\text{ND}=\text{LQ}/2$ のいずれとして取り扱うかにより、摂取量が大きく乖離する場合があることを示した。これら2つの方式での摂取量推定は、Global Environment Monitoring System (GEMS)が実施しているFood Contamination Monitoring and Assessment ProgramのInstructions for Electronic Submission of Data on Chemical Contaminants in Food and the Dietに基づき行ってきたものである。しか

し適用するためには、LQを下回った試料が全試料の60%以下、逆に言えば40%を超える試料からは、LQを超える分析結果が得られているという前提を満たさなければならない。さらには、全試料の分析を通じて、検出下限(LOD)が一定と見なせることが仮定されている。上記の前提を満たしていない当研究結果への $\text{ND}=\text{LQ}/2$ の適用は、不当に過剰な摂取量の推定につながる恐れがある。

ここで、LQとLODそして汚染物質の摂取量推定との関係について考察する。より低レベルの摂取量まで正確に推定することを目的とするのであれば、より低濃度の汚染物質を一定の精確さを持って定量可能な性能を持った分析法により、TD試料を分析しなければならない。LQは、一定の精確さで定量可能な濃度の下限、LODは、検出可能な濃度の下限(あるいは、含まれていないとは言ふことのできない濃度)と大まかには理解される。分析法の精確さが一定の水準を満たしていることは、分析結果に基づく摂取量推定の正しさの保証となる。現実的には、分析法の精確さをどれだけの水準で要求できるかが問題となる。当研究では、多数の地域における摂取量推定結果の平均に基づき摂取量を推定している。このことを考慮すれば、各機関が採用する分析法の精確さが極めて高い必要はない。より低レベルの摂取量まで推定する目的に特化するのであれば、分析法の精確への要求水準を下げ、一般の分析ではLODに相当する濃度をLQとして取り扱うことも考えられる。また、分析の内容として、同一の試料から小分けした複数の試料を分析し、その結果の平均から摂取量を推定する事も、正しい摂

取量の推定に役立つ。

以上の考察の通り、摂取量推定の目的を明確に定めた上で、その目的に応じた性能の分析法を選択することが可能であれば、 $ND=0$ と $ND=LQ/2$ の2つの摂取量推定方法により得られる推定値の乖離も小さくなる。また、そのようにLQを低く設定した分析法を用いるのであれば、検出されない試料数が多くなっても、分析による見過ごしを原因とする摂取量の過小推定の危険も減るため、 $ND=LQ/2$ とした算術による摂取量推定の必然性はなくなるものと考えられる。ただし実際には、TD試料中の汚染物質をどこまでの低濃度で分析可能かという、分析法開発や改良、分析に係る労力や時間と切り離すことのできない大きな課題である。

一方で、摂取量推定の目的を、ADIやPTWIのように、定められているリスク指標値との比較に特化させるのであれば、リスク指標値の数値を利用し、分析法の性能要求の指標を立てることも可能だと考える。いずれにしても、摂取量推定の目的を明確にし、その目的に見合った分析が実行可能であることの保証をもって、摂取量推定をすることが肝要である。なお、 $ND=LQ/2$ として本年度推定された農薬類の摂取量は、同様の方法により昨年度推定された摂取量に比べても大きな値となっている。その原因は、1協力機関でのLQレベルが10倍高めに設定し直されたことにある。この結果からも、正しい摂取量推定値を安定して得るためには、分析性能に一定の水準を定め維持していくことの重要性がよく分かる。

3) 摂取量を推定すべき汚染物質

積極的に摂取量推定すべき汚染物質の選

択について考察する。

本研究班で30年間に渡り継続して推定している多くの農薬類の摂取量は、近年、極めて低いレベルで安定して推移している。これら農薬が検出される頻度も、過去8年間に渡り解析した結果、一部の食品群と農薬との組み合わせを除いて、極めて低い。まれに、検出され摂取量推定値が得られる場合もあるが、その結果は、日本人一般の日常食を介した汚染物質摂取量とはもはや言えない。その食品を摂取するヒトは、地域的また時間的に極めて限られた一部であり、そのような食品の汚染は、市場流通品の監視により管理されるべき事項である。さらに言えば、一地域あるいは一食品群に由来する摂取量推定値を、複数地域の摂取量推定値と併せて平均することは、適切ではない。

分析法の性能が適切であり、分析による見逃しが無いことを仮定すれば、本研究で推定してきた多くの農薬は、一部の農薬と食品群との組み合わせを除き、日本での日常的な食事を通じて摂取されることはなくなったと言って良い。これは、規制などの施策が効果的に機能し、流通食品の管理が適切な状態に維持されている結果であると考えられる。また、現在の管理状態は、直近の10年程度の期間に亘り継続していることから、今後、大きく変化する蓋然性が低いと考えられる。本研究で得られた摂取量推定値が果たした役割は疑うまでもないが、上記考察を基に、またTable 3-4に挙げた、過去8年間の検出頻度(20%未満)を根拠に、マラチオン、MEP、ダイアジノン、ヘプタクロルエポキサイドの摂取量推定は終了するあるいは、実施頻度を下げることが

適当と考える。その他HCH類， DDT類， デイルドリン， HCBは依然として一部の食品群から高頻度に検出されていることから，食品群に限定して，継続して摂取量推定することが必要である。また，鉛，カドミウム，水銀，ヒ素といった金属類は，天然に由来し今後も劇的な摂取量の低減は期待することが難しいため，継続して摂取量を推定する事が必要である。また，健康危害リスク評価の観点からは，毒性に応じた摂取量推定を可能にする，形態別分析法の導入が課題である。

現在の使用実態や規格基準適合判定を目的とした検査の結果から，高頻度かつ高濃度に多種の食品から検出されることが明らかな農薬がある。施策効果検証の観点からは，それらの中から新たな農薬を選択し，分析法の整備等と合わせ，摂取量推定に積極的に取り組むべきである。すでに規制されている農薬以外にも，規制が検討されている化学物質も多数あり，それらの摂取量推定についても，今後検討していく必要がある。

E. 研究発表

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

なし

3. その他

Table 1-1 污染物質攝取量食品群別比較

ND=0, 單位：μg/man/day

污染物質	I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII	IX	X	X I	X II	X III	X IV	Total
	米	雜穀·芋	砂糖·菓子	油脂	豆·豆加工品	果實	有色野菜	野菜海草	嗜好品	魚介	肉·卵	乳·乳製品	加工食品	飲料水	
α-HCH	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.007	0.000	0.000	0.000	0.000	0.007
β-HCH	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.006	0.000	0.000	0.004	0.011	0.000	0.000	0.000	0.021
γ-HCH	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001
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	0.000
Total-HCH	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.006	0.000	0.000	0.012	0.011	0.000	0.000	0.000	0.029
p,p'-DDT	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.109	0.000	0.000	0.000	0.000	0.109
p,p'-DDE	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.067	0.013	0.014	0.000	0.000	0.094
p,p'-DDD	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.061	0.000	0.000	0.000	0.000	0.061
o,p'-DDT	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.008	0.000	0.000	0.040	0.000	0.000	0.000	0.000	0.047
Total-DDT	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.008	0.000	0.000	0.277	0.013	0.014	0.000	0.000	0.312
Dieldrin	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.005	0.000	0.000	0.008	0.000	0.000	0.000	0.000	0.012
Hep. Epoxide	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.005	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.005
HCB	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.002	0.000	0.000	0.019	0.001	0.000	0.000	0.000	0.023
PCB	0.000	0.000	0.023	0.006	0.015	0.032	0.086	0.325	1.555	0.779	0.013	0.000	0.000	0.000	2.834
Malathion	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.025	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.025
MEP	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.112	0.000	0.000	0.000	0.000	0.112
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	0.000
Pb	1.90	1.51	0.25	0.12	0.27	0.56	0.70	1.99	1.39	1.28	0.87	0.66	0.92	0.03	12.45
Cd	14.24	1.91	0.51	0.01	0.82	0.16	2.01	3.41	0.08	4.08	0.05	0.03	0.62	0.00	27.93
Hg	0.36	0.03	0.01	0.00	0.01	0.02	0.01	0.03	0.03	6.88	0.16	0.01	0.19	0.00	7.752
As	10.86	0.43	0.45	0.00	0.21	0.22	0.02	64.64	0.06	107.49	0.74	1.15	10.43	0.05	196.7
Cu	308.44	165.58	45.25	0.81	122.53	64.69	49.62	88.92	38.56	107.09	143.70	14.46	82.66	0.88	1233
Mn	891.31	424.51	76.19	0.18	354.68	222.82	209.99	344.11	861.36	77.23	36.81	15.66	381.11	0.08	3896
Zn	2238.13	662.22	149.87	1.89	528.17	96.96	315.42	480.28	138.27	759.04	2074.91	506.76	380.42	6.48	8339

Table 1-2 汚染物質摂取量食品群別比較

ND=LQ/2, LQ:各機関独自 単位：μg/man/day

汚染物	I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII	IX	X	X I	X II	X III	X IV	Total
	米	雑穀・芋	砂糖・菓子	油脂	豆・豆加工品	果実	有色野菜	野菜海草	嗜好品	魚介	肉・卵	乳・乳製品	加工食品	飲料水	
α-HCH	0.197	0.087	0.018	0.007	0.027	0.062	0.052	0.112	0.305	0.054	0.044	0.060	0.043	0.116	1.186
β-HCH	0.197	0.087	0.018	0.007	0.027	0.062	0.057	0.112	0.305	0.052	0.054	0.060	0.043	0.116	1.199
γ-HCH	0.197	0.087	0.018	0.007	0.027	0.062	0.052	0.112	0.305	0.048	0.044	0.060	0.043	0.116	1.180
δ-HCH	0.204	0.090	0.019	0.007	0.028	0.065	0.053	0.116	0.315	0.049	0.046	0.062	0.045	0.117	1.216
Total-HCH	0.204	0.090	0.019	0.007	0.028	0.065	0.057	0.116	0.315	0.061	0.056	0.062	0.045	0.117	1.241
p,p'-DDT	0.196	0.087	0.018	0.007	0.027	0.062	0.051	0.110	0.298	0.154	0.044	0.060	0.043	0.116	1.273
p,p'-DDE	0.195	0.087	0.018	0.007	0.027	0.062	0.051	0.110	0.298	0.110	0.053	0.070	0.043	0.116	1.247
p,p'-DDD	0.195	0.087	0.018	0.007	0.027	0.062	0.051	0.110	0.298	0.103	0.043	0.060	0.043	0.116	1.219
o,p'-DDT	0.195	0.087	0.018	0.007	0.027	0.062	0.057	0.110	0.298	0.085	0.043	0.060	0.043	0.116	1.207
Total-DDT	0.195	0.087	0.018	0.007	0.027	0.062	0.057	0.110	0.298	0.321	0.053	0.070	0.043	0.003	1.350
Dieldrin	0.230	0.103	0.022	0.008	0.033	0.072	0.064	0.130	0.361	0.061	0.053	0.071	0.051	0.119	1.378
Hep. Epoxide	0.204	0.090	0.019	0.007	0.028	0.065	0.053	0.119	0.315	0.049	0.046	0.062	0.045	0.117	1.220
HCB	0.204	0.090	0.019	0.007	0.028	0.065	0.055	0.116	0.315	0.066	0.047	0.062	0.045	0.117	1.235
PCB	0.166	0.090	0.037	0.065	0.039	0.077	0.125	0.404	1.819	0.779	0.063	0.051	0.047	0.024	3.785
Malathion	0.313	0.153	0.031	0.016	0.046	0.099	0.083	0.192	0.512	0.074	0.086	0.105	0.074	0.131	1.917
MEP	0.328	0.159	0.033	0.016	0.047	0.100	0.085	0.180	0.530	0.185	0.089	0.108	0.077	0.131	2.068
Diazinon	0.313	0.153	0.031	0.016	0.046	0.099	0.083	0.175	0.512	0.074	0.086	0.105	0.074	0.131	1.900
Pb	3.37	2.33	0.38	0.20	0.49	0.99	1.02	2.61	4.46	1.57	1.35	1.18	1.30	0.70	21.97
Cd	14.39	2.04	0.53	0.02	0.82	0.28	2.03	3.45	0.93	4.11	0.20	0.19	0.65	0.08	29.71
Hg	0.95	0.36	0.07	0.06	0.11	0.18	0.18	0.36	1.21	6.88	0.33	0.20	0.31	0.30	11.49
As	11.47	1.16	0.58	0.08	0.44	0.67	0.43	64.64	2.91	107.53	1.19	1.61	10.71	0.39	203.8
Cu	308.44	165.58	45.25	1.64	122.53	64.69	49.62	91.55	51.20	107.09	143.70	14.51	82.66	1.23	1250
Mn	891.31	424.51	76.19	0.41	354.68	222.82	209.99	344.11	861.36	77.23	36.81	15.92	381.11	0.42	3897
Zn	2238.13	662.22	149.87	2.49	528.17	96.96	315.42	480.28	145.54	759.04	2074.91	506.76	380.42	6.90	8347

Table 2-1 PCB 摂取量食品群別比較 (特定の一機関での摂取量推定値を除いた集計)

ND=0, 単位 : $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$

汚染物	I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII	IX	X	X I	X II	X III	X IV	Total
	米	雑穀・芋	砂糖・菓子	油脂	豆・豆加工品	果実	有色野菜	野菜海草	嗜好品	魚介	肉・卵	乳・乳製品	加工食品	飲料水	
PCB	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.444	0.014	0.000	0.000	0.000	0.458

Table 2-2 PCB 摂取量食品群別比較 (特定の一機関での摂取量推定値を除いた集計)

ND=LQ/2, LQ:各機関独自 単位 : $\mu\text{g}/\text{man}/\text{day}$

汚染物	I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII	IX	X	X I	X II	X III	X IV	Total
	米	雑穀・芋	砂糖・菓子	油脂	豆・豆加工品	果実	有色野菜	野菜海草	嗜好品	魚介	肉・卵	乳・乳製品	加工食品	飲料水	
PCB	0.165	0.091	0.016	0.065	0.026	0.049	0.042	0.087	0.291	0.444	0.065	0.051	0.047	0.014	1.451

Table 3 各食品群中の定量値が得られた試料数

汚染物	I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII	IX	X	X I	X II	X III	X IV
	米	雑穀・芋	砂糖・菓子	油脂	豆・豆加工品	果実	有色野菜	野菜海草	嗜好品	魚介	肉・卵	乳・乳製品	加工食品	飲料水
α-HCH	0	0	0	0	0	0	0	0	0	2	0	0	0	0
β-HCH	0	0	0	0	0	0	1	0	0	1	2	0	0	0
γ-HCH	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0
δ-HCH	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Total-HCH	0	0	0	0	0	0	1	0	0	2	2	0	0	0
p,p'-DDT	0	0	0	0	0	0	0	0	0	7	0	0	0	0
p,p'-DDE	0	0	0	1	0	0	0	0	0	7	6	6	0	0
p,p'-DDD	0	0	0	0	0	0	0	0	0	9	0	0	0	0
o,p'-DDT	0	0	0	0	0	0	1	0	0	6	0	0	0	0
Total-DDT	0	0	0	1	0	0	1	0	0	8	6	6	0	0
Dieldrin	0	0	0	0	0	0	1	0	0	3	0	0	0	0
Hep. Epoxide	0	0	0	0	0	0	0	2	0	0	0	0	0	0
HCB	0	0	0	1	0	0	1	0	0	6	1	0	0	0
PCB	0	0	1	1	1	1	1	1	1	11	1	0	0	0
Malathion	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0	0	0
MEP	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0
Diazinon	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Pb	4	6	7	4	6	6	8	8	4	8	6	5	6	4
Cd	10	9	9	2	11	7	10	10	3	10	4	2	9	4
Hg	4	2	2	3	3	2	2	2	2	11	6	2	4	2
As	7	4	5	1	3	2	2	11	2	10	4	3	6	4
Cu	11	11	11	7	11	11	11	10	7	11	11	10	11	9
Mn	11	11	11	6	11	11	11	11	11	11	11	10	11	3
Zn	11	11	11	9	11	11	11	11	9	11	11	11	11	8