# ICP-MS を用いた日常食中有害元素類分析の品質保証

# Quality Assurance Measure for Analysis of Harmful Elements in Meal Samples by ICP-MS (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry)

# 上田 淳司 Atsushi UETA

#### 要 旨

当所は 1985 年より継続しているトータルダイエットスタディ (TDS) において、日常食中の無機元素等の測定を行ってきた。今回、当所で得られる分析値の品質の確認と保証を目的として、性能評価用に開発された食品試料中の有害な重金属類を含む計 14種の元素を ICP-MS により分析し、結果をまとめた。

極めて濃度が低い場合を除き、ブランク試料や添加試料からは分析法の性能規準に照らして十分な品質の分析値が得られた。しかし、一部の試料と濃度の組合せでは、目標とする分析性能が達成されなかった。試料の分解不足、試料マトリックス(夾雑物)による測定への影響や測定機器の感度設定も考慮し、十分な品質の分析値を得るために、今後も当所における分析を検討していく必要がある。

キーワード:トータルダイエットスタディ (TDS) ICP-MS B Al Cr Co Ni As Se Mo Cd Sn Sb Ba Pb U

# I はじめに

清涼飲料水や一部の植物性食品には、食品衛生法によって有害元素類の基準値が設定されている。食品衛生法による設定のない食品であっても、国際食品規格委員会(codex 委員会)によって、数多くの食品に基準値が設定されている。県民による有害元素類摂取量を把握する目的において、また県内で生産された農産品の輸出等が検討されることを想定すれば、日常的に摂取している食事(日常食)やさまざまな食品における有害元素を分析すること及び分析により得られる値の品質を保証することは大変重要である。

当所は 1985 年より国立医薬品食品衛生研究所による「日常食の汚染物質摂取量調査研究(トータルダイエットスタディ; TDS)」に協力し、日常食を模した試料である、TD 試料中の無機元素等を分析してきた。今回、協力研究の一環として、当所が得る分析値の品質の確認と保証を目的に、国立医薬品食品衛生研究所が開発した性能評価用食品試料(SEMP)を分析し結果を解析した。分析には ICP-MS を用い、有害な重金属類を含む計 14種の元素(B、A1、Cr、Co、Ni、As、Se、Mo、Cd、Sn、Sb、Ba、Pb、U)を分析対象とした。

# Ⅱ 方法

## 1 試料

SEMP は TD 試料を再現し、より均質性を高めた性能評価用食品試料である。TD 試料を再現しているため SEMP は表1のとおり 14 食品群に分類されている。当所では、国立医薬品食品衛生研究所から供与された SEMP をブランク試料として分析した。

### 2 試薬・試液

水:メルク社製装置(Milli Q Synthesis A10)により製造した超純水。(比抵抗 >18.2M $\Omega$ ・cm、TOC < 10 ppb )

硝酸:硝酸1.42 Ultrapur-100 (関東化学(株))

過酸化水素水:過酸化水素水 TAMAPURE-AA-100 (多摩化学工業(株))

各種元素標準原液 (ウラン(U)、ベリリウム(Be)を除く): Trace CERT ICP 用 (シグマアルドリッチ社)

U 標準原液: XSTC-289 (西進商事)

Be 標準原液: ICPMS 用ベリリウム(AccuStandard 社)

混合内部標準溶液: Be、Ga、Y、In、T1 の濃度がそれぞれ 50 mg/L、20 mg/L、1 mg/L、5 mg/L、0.5 mg/L になるように各元素の標準原液から適量を分取し、硝酸 14mL を加えた後、水で 100 mL に定容した。

表 1 日常食試料群の分類

-	
群	食品群名
1群	米、米加工品
2 群	雑穀・芋
3 群	砂糖・菓子
4 群	油脂
5 群	豆・豆加工品
6 群	果実
7 群	有色野菜
8 群	その他の野菜・海藻類
9 群	嗜好飲料
10群	魚介
11群	肉・卵
12群	乳・乳製品
13群	調味料
14群	飲料水

#### 3 分析法

国立医薬品食品衛生研究所の分析法1)に準じた。

#### (1) 測定溶液の調製

各試料 0.5g をマイクロ波分解装置用容器に量りとった。添加試料を調製する場合には、表2の濃度になるように標準溶液を添加した。量り取った試料に硝酸6mL及び過酸化水素水1mLを加え、分解条件①により分解後水冷し、さらに硝酸1mL及び過酸化水素水1mLを加え、分解条件②により分解した。分解後の溶液に内部標準溶液を0.5mL加えたのち、水で50mLに定容した。定容後の溶液を測定溶液としてICP-MSにより測定した。

#### (2) 試料の分解条件

マイクロ波分解装置による分解は、以下の条件により2段階分解を行った。

# 分解条件①

(4群以外) 250W; 1分間→0W; 2分間→250W; 5

分間→400W;5分間→600W;5分間

(4群) 250W; 2分間→0W; 3分間→250W; 5分間

→400W; 5分間→450W; 5分間

# 分解条件②

250W; 5分間→400W; 5分間→550W; 5分間→700W; 5分間

## (3) ICP-MS 測定条件

コリジョンガス: ヘリウム(99.9999%) (Se 以外)、水素(99.9999%) (Se、Y のみ)

測定モード:スペクトル分析(マルチチューン)

各元素の測定質量数並びに測定元素及び内部標準元素 の組み合わせ:表3のとおり

## (4) 検量線の作成

各元素標準原液を量り取り、混合内部標準溶液を0.5mL 添加し、硝酸7mLを加え水で50 mL に定容し、検量線作成用の混合標準溶液(検量線用溶液)を調製した。ただし、ウランは混合標準溶液には含めず、別途、検量線用溶液を調製した。

分析対象元素の測定値と内部標準元素の測定値の比 (内標補正値)を算出し、内標補正値の対象元素濃度に対する一次回帰式を求め検量線を作成した。

## (5) 使用機器

マイクロ波分解装置: MLS-1200MEGA (マイルストーン ゼネラル社)

ICP-MS: ICP-MS 7500cx (アジレントテクノロジー社)

表2 各群試料への添加濃度1)

測定						ž	<b>添加濃度</b>	(mg/kg)		-				
元素	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	14群
В	0.5	1	0. 5	0. 5	10	5	5	5	0. 5	1	0.5	0.5	5	0.5
ΑI	0.5	5	5	0.5	5	0.5	10	0.5	5	5	10	0.5	5	0.5
Cr	0.01	0.05	0.05	0.01	0.05	0.05	0.05	0.01	0.05	0.05	0.1	0.05	0.05	0.005
Co	0.005	0.05	0.005	0.005	0.05	0.01	0.05	0.01	0.005	0.01	0.005	0.005	0.05	0.005
Ni	0.005	0.1	0.05	0.01	5	0. 1	0.05	0.05	0. 1	0.05	0.05	0.05	0.5	0.005
As	0.1	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	5	0.01	0.01	0.01	0.01
Se	0.05	0.1	0.05	0.05	0.5	0.05	0.05	0.05	0.05	1	0.5	0.05	0.05	0.05
Mo	1	0.5	0.5	0.01	5	0.05	0.1	0.05	0.01	0.05	0.05	0.1	0.5	0.005
Cd	0.05	0.05	0.005	0.005	0.05	0.005	0.05	0.01	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005
Sn	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005
Sb	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005
Ba	0.1	1	0.5	0.05	1	0.5	1	0.5	0.05	0.5	0.5	0.5	1	0.05
Pb	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.01	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005
U	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005

表3 測定元素と内部標準元素の組み合わせ

	測定元素	内部標準元素
ほう素	<sup>11</sup> B	<sup>9</sup> Be
アルミニウム	<sup>27</sup> Al	"
クロム	<sup>52</sup> Cr	<sup>71</sup> Ga
コバルト	<sup>59</sup> Co	"
ニッケル	<sup>60</sup> Ni	"
ひ素	<sup>75</sup> As	<sup>89</sup> Y
セレン	<sup>78</sup> Se	"
モリブデン	<sup>95</sup> Mo	<sup>115</sup> In
カドミウム	<sup>111</sup> Cd	"
すず	<sup>118</sup> Sn	"
アンチモン	<sup>121</sup> Sb	"
バリウム	<sup>137</sup> Ba	"
鉛	<sup>208</sup> Pb	<sup>205</sup> TI
ウラン	<sup>238</sup> U	"

# Ⅲ 結果及び考察

当所での分析結果、SEMP に値付けされた濃度、添加試料を分析した結果から計算された回収率等を表5~表10に示した。

#### 1 ほう素

分析結果は、値付けされた濃度の81~121%の値となり、概ね良好な分析がされた。添加試料の分析結果から 算出された回収率も96~112%と良好であった。

## 2 アルミニウム

分析結果は、1 群を除き、値付けされた濃度の 90~134%の値となり、概ね良好な分析がされた。1 群試料は199%の値が分析結果となったが、低濃度であるので試料マトリックスの影響や容器で不動態を形成しているアルミニウムが溶出し影響した可能性も考えられる<sup>2)3)</sup>。添加試料の分析結果から算出された回収率は92~117%と良好であった。

#### 3 クロム

分析結果は、値付けされた濃度の 73~127%の値となり、概ね良好な分析がされた。添加試料の分析結果から 算出された回収率も 92~111%と良好であった。

#### 4 コバルト

分析結果は、値付けされた濃度の92~133%の値となり、概ね良好な分析がされた。添加試料の分析結果から 算出された回収率も91~107%と良好であった。

#### 5 ニッケル

分析結果は、値付けされた濃度の85~122%の値となり、概ね良好な分析がされた。添加試料の分析結果から

算出された回収率も90~115%と良好であった。

#### 6 ひ素

分析結果が 10 μg/kg 以上の試料については値付けされた濃度の 101~111%の値となったが、その他については値付けされた濃度より高値となった。試料中の濃度が数 ng/kg ~数 μg/kg の試料については、より感度を上げて測定する必要があると考えられる。添加試料の分析結果から算出された回収率は 98~114%と良好であった。

#### 7 セレン

分析結果は、4 群を除き、値付けされた濃度の87~109%の値となり、良好な分析がされた。4 群は値付けされた濃度の231%と高値となり、添加試料についても目的とする濃度より高値となった。4 群は有機物の多い検体であるので、分解不足により炭素増感効果4)が起きている可能性がある。採取量を減らすなど、十分な品質の分析値を得るためには分析法の改良が必要と考えられる。その他の添加試料の分析結果から算出された回収率は92~121%と概ね良好であった。

#### 8 モリブデン

分析結果は、4 群及び14 群を除き、値付けされた濃度の93~117%の値となり、概ね良好な分析がされた。4 群及び14 群の分析結果は、値付けされた濃度からかけ離れて高値であった。元々値付けされた濃度が低いため、感度を上げて測定する必要があると考えられる。添加試料の分析結果から算出された回収率は89~113%と良好であった。

#### 9 カドミウム

分析結果は、11 群を除き、値付けされた濃度の89~109%の値となり、概ね良好な分析がされた。定量下限に近い11 群は127%の値であった。添加試料の分析結果から算出された回収率は96~110%と良好であった。

#### 10 すず

分析結果の多くが定量下限未満であった。また、定量 下限に近い値については、165%と高値であった。添加試 料の分析結果から算出された回収率は88~117%と良好 であった。

# 11 アンチモン

分析結果の多くが定量下限未満であった。一部は値付けされた濃度より低値であった。アンチモンは、試料がマトリックスを多く含むとイオン化効率が下がり、目的とする濃度より低値になることがあり、また揮散しやすい元素であるので、それらが原因であると考えられる<sup>5)</sup>。

また、14 群は4746%の値が分析結果となったが、値付けされた濃度が非常に低値であるので、機器の感度を上げる必要があると考えられる。添加試料の分析結果から算出された回収率は90~118%と良好であった。

# 12 バリウム

分析結果は、値付けされた濃度の77~124%の値となり、概ね良好な分析がされた。添加試料の分析結果から 算出された回収率は92~104%と良好であった。

## 13 鉛

分析結果の半数程度が定量下限未満であった。定量下限以上の値となる試料については、値付けされた濃度の79~107%の値となり、良好な分析がされた。添加試料の分析結果から算出された回収率は90~114%と良好であった。

# 14 ウラン

分析結果の多くが定量下限未満であった。13 群の分析結果が値付けされた濃度の62%と低値となった。13 群は調味料であり、マトリックス(特に塩)を多く含んでいるためにイオン化効率が低下していると考えられる<sup>3)</sup>。添加試料の分析結果から算出された回収率は89~102%と良好であった。

# Ⅴ まとめ

日常食を模したTD試料を再現し、均質性を高めた性能評価用食品試料(SEMP)を分析した。その結果、定量下限値に近い低濃度の試料を除けば、概ね良好な分析結果が得られた。また、添加試料の分析結果から算出された回収率も概ね良好であった。しかし、一部食品群と元素との組合せにおいて、SEMPに値付けされた濃度と大きく解離した分析結果が得られる場合もあった。その原因には、機器の感度不足、試料の分解不足、試料マトリックスによる影響が考えられた。十分な品質の分析結果が得られるよう、今後、試料

表 4 各元素の定量下限

測定 元素	定量下限	
	(mg/kg)	
В	0.0793	
Al	0.0184	
$\mathbf{Cr}$	0.00183	操作ブランクを20検体調製
Co	0.000311	測定した結果から求めた
Ni	0.00288	例だした帕木がり水砂に
As	0.000637	行精度(σ)の10倍値を定
Se	0.00119	下限とした。
Mo	0.000410	PACOICO
$\operatorname{Cd}$	0.000120	
Sn	0.00117	
$\operatorname{Sb}$	0.000188	
Ba	0.000625	
Pb	0.000936	
U	0.000122	

表5 分析結果 (ブランク試料中の各元素を分析した濃度)

測定					•	ブランク試	料中の各元	素を分析した	≿濃度(mg/k	g)	•			
元素	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	14群
В	0. 255	0. 532	0. 202	ND	4. 18	1. 47	1.34	1. 16	0. 1125	0. 534	0. 128	0. 242	1. 71	ND
ΑI	0.0599	1. 23	1.02	0.0309	0.867	0.103	4. 14	0.0926	1. 16	0. 236	2.85	ND	0.365	ND
Cr	ND	0.0172	0.0177	0.00322	0.0186	0.00384	0.00908	0.00321	0.0147	0.0121	0.0333	0.0146	0.0217	ND
Co	0.00200	0.00890	0.00123	ND	0.0172	0.00276	0.00883	0.00384	0.00167	0.00435	0.00109	0.000502	0.0210	ND
Ni	0. 154	0.0442	0.0261	ND	0. 741	0.0280	0.0160	0.0174	0.0306	0.0186	0.00501	0.00691	0.197	ND
As	0. 0552	0.00264	0.00123	ND	0.00196	0.000716	ND	ND	ND	1.51	0.00300	ND	0.0113	ND
Se	0.0264	0.0580	0.0118	0.00215	0. 106	ND	0.00213	0.00170	ND	0.400	0. 208	0.0229	0.0230	ND
Mo	0. 358	0.0680	0.0665	0.00364	0.843	0.00728	0.0323	0.0212	ND	0.00846	0.0207	0. 0383	0.117	0.000588
Cd	0.0312	0.0256	0.000673	ND	0. 0227	0.00203	0.0124	0.00641	ND	0.00188	0.000182	ND	0.00260	ND
Sn	ND	ND	0.00122	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.00264	ND	ND	ND	ND
Sb	0.000213	ND	0.000336	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.00133	0.00192	ND	0.000714	0.000224
Ba	0.0389	0.447	0. 138	0.00225	0. 715	0. 218	0. 718	0. 250	0.0149	0. 325	0. 282	0.0752	0.403	0.0156
Pb	ND	0.00175	0.00108	ND	0.00159	ND	0.00224	ND	ND	0.00330	ND	ND	0.00190	ND
U	ND	ND	0.000551	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.00303	ND	ND	0.000169	ND

表6 ブランク試料の併行分析結果から推定された分析法の精度

測定					ブランク	試料の併行	分析結果から	推定された	分析法の精度	₹ (RSD%)				
元素	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	14群
В	3.6	3. 2	6. 7		1. 9	1.4	3. 7	10.8	9. 9	12. 5	2. 7	15. 1	0. 5	
ΑI	19.0	14. 7	4. 2	46. 1	10. 5	14. 7	7. 2	20. 3	1.8	11.4	6. 1		3. 0	
Cr		15. 1	10. 7	11.3	5. 5	14. 9	3. 2	14. 7	2. 4	7. 4	6. 2	11.4	3. 5	
Co	5.3	1. 2	14. 4		2. 0	2. 7	2. 4	3. 8	5. 7	6. 2	7.8	9.4	1.3	
Ni	2. 2	4. 6	10. 1		0. 3	2. 2	4. 2	3. 5	0. 9	3. 3	53. 2	7. 6	1. 2	
As	2. 2	8.8	11.3		7. 4	19. 7				1.5	18. 1		2. 3	
Se	3.4	1.0	4. 7	10.6	2. 6		12. 8	69. 3		5. 9	6. 1	3. 9	1. 9	
Mo	2.7	1.3	3.9	3.6	1. 3	1.8	1.3	4. 0		10. 1	6.6	1.1	0. 7	10. 2
Cd	2. 4	1.1	11.9		1.4	3. 2	2. 6	5. 7		7. 5	6. 7		1.8	
Sn			28. 2							32. 5				
Sb	34. 7		11.3							12. 7	7.4		4. 6	9.6
Ba	1.8	1.4	2.6	2. 3	0. 9	1.3	0.9	9. 3	4. 6	36.8	6.4	3.4	1.6	25. 2
Pb		9. 4	19.0		13. 3		15. 2			13. 3			4. 5	
U			9.8							20. 3			3. 6	

と元素またその濃度に適した分析法の改良を検討していく 必要がある。

# 謝辞

本報では、厚生労働科学研究費補助金「食品の安全確保推進研究事業」による研究課題「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」によって開発された性能評価用食品試料(SEMP)の供与を受け分析をおこなった。本分析にあたっては、国立医薬品食品衛生研究所の渡邉敬浩先生、片岡洋平先生から数多くの御指導をいただいた。ここで感謝の意を表する。

# 文献

1) 国立医薬品食品衛生研究所 渡邉敬浩ら: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 平成25年度研究分担 報告書

- 2) 無機分析前処理講座 G L サイエンス https://www.gls.co.jp/metalanalysis/material \_pdf/2008jingi.pdf
- 3) 上本道久: ICP 発光分析法による石灰石中少量および微量成分定量の際の非スペクトル性主成分干渉挙動東京都立産業技術研究所研究報告 第8号 (2005)
- 4) G. Grindlay et al.: Spectrochimica Acta Part B, 63, 234-243 (2008)
- 5) 日本工業規格 J I S K 0133:2007 高周波プラズ マ質量分析通則

測定	値付けされた濃度(mg/kg)													
元素	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	14群
В	0. 229	0. 534	0. 219	0.00731	4. 06	1.46	1.36	1.44	0. 0927	0. 522	0.118	0. 248	1. 58	ND
ΑI	0. 0301	1. 13	0.902	ND	0.645	ND	3. 11	ND	1	0. 189	2.64	0.0164	0. 407	ND
Cr	0.000629	0.0147	0.022	0.00298	0.0174	0.00439	0.00712	0.00442	0.014	0.016	0.0307	0.0146	0.0218	ND
Co	0.0015	0.00933	0.00126	0.0000207	0.0187	0.0027	0.00866	0.00415	0.0017	0.00469	0.000962	0.000454	0.0226	0.000164
Ni	0. 152	0. 0381	0.0266	0.00144	0.749	0.0266	0.0164	0.0177	0.0309	0. 022	0.00446	0.00566	0. 203	0.00011
As	0. 0547	0.00153	ND	ND	0.000839	0.000157	0.000151	0.00000432	ND	1. 5	0.00106	ND	0.0102	0.0000299
Se	0. 0274	0.0641	0.0135	0.00093	0. 106	0.00107	0.00211	0.00174	ND	0.396	0. 2	0.0209	0. 025	0.000654
Mo	0. 381	0.0677	0.0696	0.00213	0.859	0.0066	0.0302	0.0229	ND	0.00731	0.0177	0.0383	0. 122	0.000038
Cd	0. 0331	0. 0262	0.000743	0.0000102	0. 0237	0.00193	0.0114	0.00723	0.000018	0.00199	0.000143	0.0000167	0.00271	0.0000181
Sn	0.000108	0.000194	0.000738	0.000062	ND	0.0000274	0.0000685	ND	ND	0.00313	0.000229	ND	0.000604	0.000257
Sb	0.000191	0.000759	0.000902	0.000175	0.000301	0.00015	0.0003	0.000135	0.000199	0.00159	0.00178	0.00017	0.00104	0.00000473
Ba	0. 04	0. 448	0. 131	0.00301	0. 738	0. 193	0.713	0. 323	0.0145	0. 307	0.269	0.0824	0.412	0.0126
Pb	0.00108	0.0019	0.00137	0.000648	0.00149	0.000627	0.0021	0.000449	0.000408	0.00352	0.0007	0.000457	0.00225	0.000152
U	0.00000289	0.000111	0.000514	0.00014	0.000218	0.0000169	0.0000434	0.00000432	0.0000621	0.00343	0.0000407	0.0000731	0.000271	0.0000461

表 7 SEMP に値付けされた各元素の濃度1)

表 8	値付けされた濃度に対する分析結果の割合	
-1C C		

測定		分析結果/値付けされた濃度(%)												
元素	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	14群
В	111	100	92	-	103	100	98	81	121	102	109	97	108	-
ΑI	199	109	113	-	134	-	133	-	116	125	108	-	90	-
Cr	-	117	80	108	107	88	127	73	105	76	109	100	100	_
Co	133	95	98	-	92	102	102	92	98	93	113	111	93	-
Νi	101	116	98	-	99	105	98	98	99	85	112	122	97	-
As	101	172	-	-	234	456	-	-	-	101	283	-	111	-
Se	96	90	87	231	100	-	101	98	-	101	104	109	92	-
Mo	94	100	96	171	98	110	107	93	_	116	117	100	96	1548
Cd	94	98	91	-	96	105	109	89	-	95	127	-	96	-
Sn	-	_	165	-	-	-	-	-	-	84	-	-	_	-
Sb	111	-	37	-	-	-	-	-	_	84	108	_	69	4746
Ba	97	100	105	75	97	113	101	77	103	106	105	91	98	124
Pb	-	92	79	-	107	-	107	-	-	94	-	-	84	-
U	-	-	107	-	-	-	-	-	-	88	-	-	62	-

表9 添加試料の併行分析結果から推定された分析法の精度

測定	添加試料の併行分析結果から推定された分析法の精度(%)													
元素	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	14群
В	2. 7	3. 8	5. 5	8. 5	2. 8	3.4	1.6	2. 2	3. 9	6. 0	3. 3	11.0	1.4	3.6
ΑI	2. 7	2. 4	1.4	18. 1	5. 2	5.3	4. 3	4. 0	1.4	1.6	3. 7	4. 5	4. 5	1.7
Cr	4.8	4. 2	4. 7	14. 6	8. 2	3. 7	8.4	3.0	1.6	5.6	2. 5	5.0	2.4	8. 2
Co	3.7	1. 9	2. 3	1.0	1.5	2. 7	1. 3	1.4	5. 2	3. 1	2. 3	4. 0	0.8	0.8
Ni	0.5	2. 4	8. 3	8.8	0.9	0.5	2. 9	5.0	1.4	5.0	4. 9	2. 5	0.5	5. 5
As	2. 2	1. 0	2. 7	11.9	4. 6	3.4	2. 2	3. 1	4. 2	1.8	7. 1	3. 5	7. 1	2. 2
Se	5.6	2. 2	3. 2	18.8	1.6	2. 9	1.1	1.9	2. 4	2. 1	5.3	3. 1	3.4	2.8
Mo	1.2	0.6	3. 4	2. 5	1. 2	1.1	1. 7	2. 2	2. 9	3.5	3. 7	0.8	0.4	3. 1
Cd	1.4	1.6	4. 5	1.4	1.5	2. 0	1. 1	2. 7	4. 0	6. 1	3.6	4. 4	4. 0	3. 2
Sn	7.7	8. 4	11. 1	3. 1	29.5	4.8	3.8	5. 5	4. 7	5.6	8. 9	6.0	10.9	4.6
Sb	7. 1	2. 7	4. 2	2. 0	2. 2	3.6	2. 3	3. 1	5. 2	3.8	4. 9	1. 7	6. 2	1.9
Ba	1.3	1. 3	3. 6	0.7	1.4	1.6	1. 1	3. 2	2. 6	20. 2	3. 1	1. 1	1.5	7. 9
Pb	1.4	28. 0	15. 0	10.0	13.0	4. 4	10.9	1.9	2. 6	6.9	5. 1	5. 5	10.1	3.6
U	6. 1	0. 5	0. 3	1.0	1.0	1.0	0. 7	1.0	0. 7	8. 9	0. 7	1.4	1.6	1.4

表 10 回収率

測定							回収率	<u>(%)</u>						
元素	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	9群	10群	11群	12群	13群	14群
В	104	102	101	96	103	97	101	99	98	101	103	112	104	105
ΑI	104	100	101	111	115	95	107	96	102	103	100	105	117	92
Cr	97	104	93	109	111	92	107	99	97	107	104	104	96	103
Co	91	107	95	97	102	100	98	99	96	100	107	104	95	96
Ni	102	104	96	97	106	90	100	100	96	97	115	93	94	95
As	99	107	98	111	114	100	110	102	100	114	109	107	107	101
Se	92	101	96	144	113	95	96	99	100	121	119	106	107	101
Mo	98	113	97	97	104	89	102	102	98	105	104	102	101	101
Cd	100	106	102	101	110	96	100	101	96	109	105	102	108	99
Sn	100	117	91	98	91	94	99	88	93	88	94	98	104	100
Sb	102	102	103	104	90	104	103	100	99	118	102	103	105	99
Ba	100	104	94	100	100	101	100	103	97	93	103	101	102	92
Pb	92	114	102	97	99	96	102	99	93	91	99	90	112	98
U	92	96	94	100	98	102	100	99	99	89	100	99	99	99