

JERZY FALANDYSZ

WIELKOŚĆ SPOŻYCIA CHLORDANU, HEPTACHLORU I EPOKSYDU HEPTACHLORU W POLSCE*

Zakład Chemii Środowiska i Ekotoksykologii
Uniwersytet Gdański
80–952 Gdańsk, ul. Sobieskiego 18
Kierownik: prof. dr hab. J. Falandysz
e-mail: jfalandy@chemik.chem.univ.gda.pl

Przedstawiono i omówiono dostępne wyniki z badań stopnia skażenia żywności pozostałościami chlordanu (CHLs) oraz heptachloru i epoksydu heptachloru. Oszacowano, że wielkości spożycia CHLs oraz heptachloru plus epoksydu heptachloru w Polsce są dużo poniżej wartości ADI. Chlordan był stosowany w Polsce krótko. Niemniej, w wyniku zanieczyszczenia środowiska przyrodniczego na półkuli północnej pozostałości składników i metabolitów CHLs, łącznie z epoksydem heptachloru, w małym stężeniu są obecne w ciele Polaków, żywności w kraju (ryby bałtyckie, trawy, mięso zwierząt rzeźnych i dziczyzny) oraz bywa, że i w importowanych produktach spożywczych.

Produkcja chlordanu (CHLs) na dużą skalę w USA przypadła na lata 1960-te i 1970-te; związku tego nie produkowano w Europie i Japonii [1, 6, 7]. Chlordan – składnik czynny preparatów handlowych: Chlordane, Topichlor, Aspon, Dowclor, Niran, Octachlor, Toxichlor, Vesicol – to insektycyd o szerokim spektrum działania, stosowany głównie poza rolnictwem – w ochronie drzew, krzewów i trawników oraz jako termicyd do fumigacji gleby [6, 7, 10, 46]. W zabiegach agrotechnicznych CHLs stosowano na uprawach kukurydzy, ziemniaków, pomidorów i zbóż oraz w sadach drzew owocowych [6, 10, 46]. W kraju chlordan, „ze względu na niebezpieczeństwo zatruć chronicznych przestał być stosowany w ochronie roślin” [5]. Heptachlor, jeden ze składników preparatu technicznego CHLs, działa silniej owadobójczo od pozostałych. Heptachlor techniczny (Agroceres, Drinox, Heptagran, Heptamul, Vesicol 104) znalazł zastosowanie głównie jako termicyd i fungicyd [46]. W Europie heptachlor stosowano w Finlandii (1986 r. – 60 ton) w płytach wiórowych i sklejkach. Większość zastosowań i zużycia chlordanu i heptachloru na świecie przypada na lata 1960-te i wczesne 1970-te, co po części było związane z równoległym wycofaniem z zastosowania w wielu krajach insektycydu DDT [6, 46].

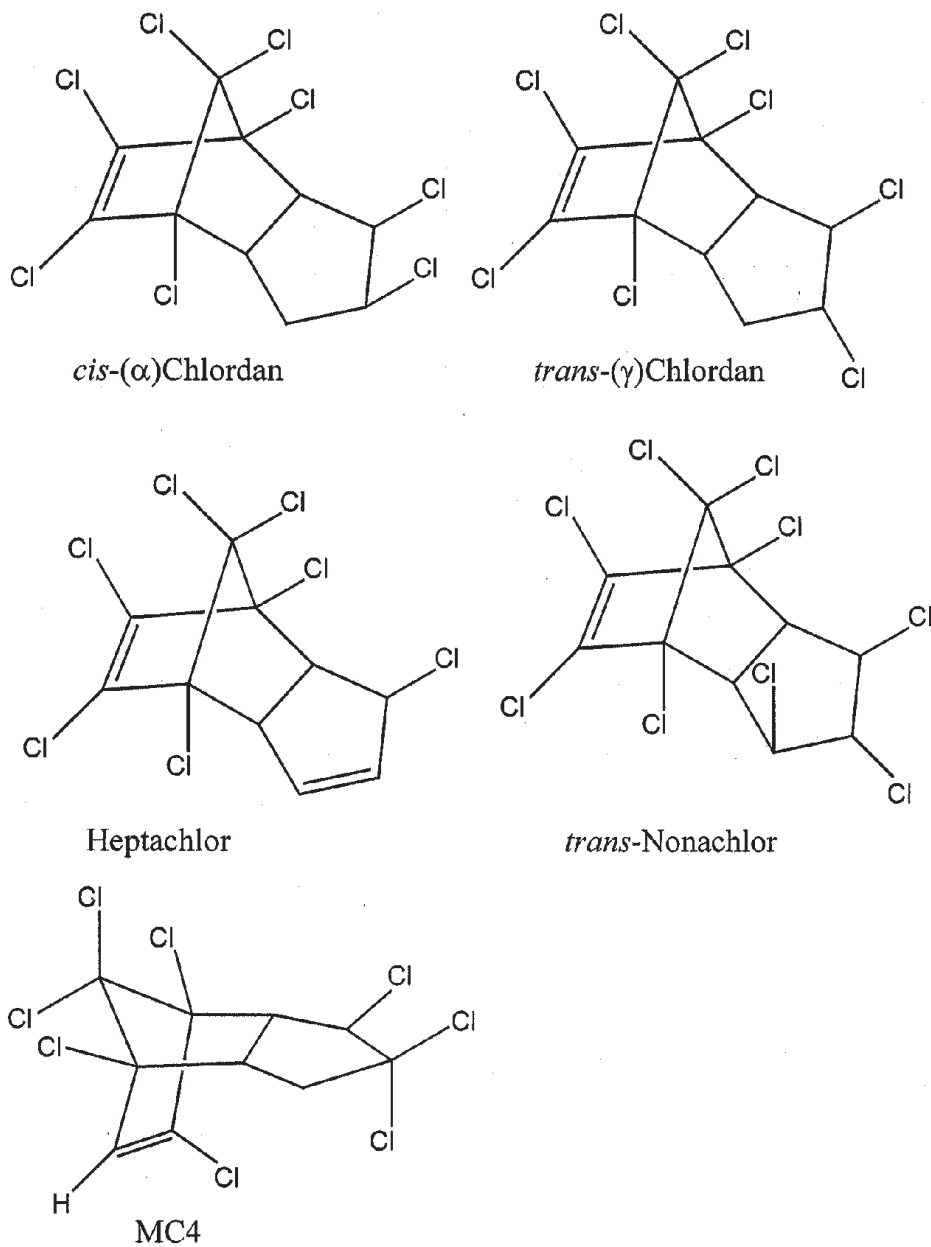
Duża toksyczność w środowisku oraz zdolność CHLs i heptachloru do biokumulacji sprawiły, że w wielu krajach u schyłku lat 1970-tych wyeliminowano wiele zastosowań tych preparatów, pozostawiając możliwość ich użycia tylko w celu zwalczania szkod-

* Finansowane przez Komitet Badań Naukowych (KBN) DS nr 8250–4–0092–9.

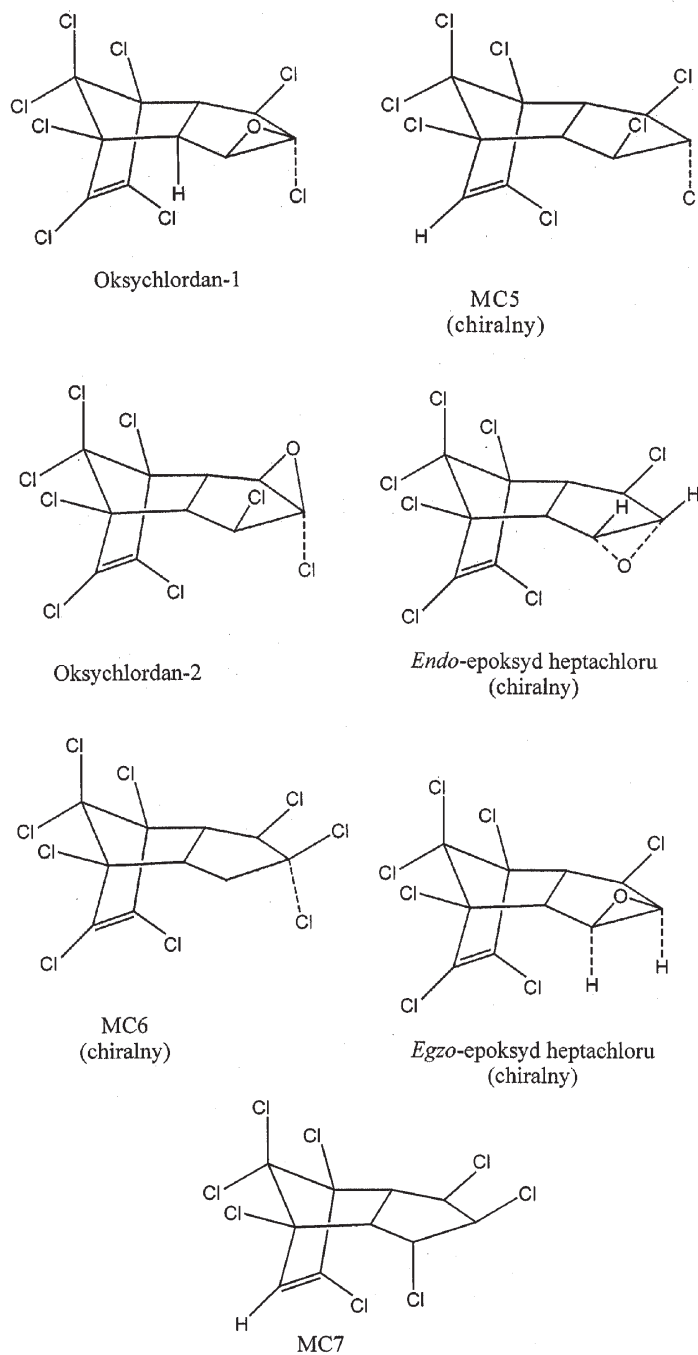
ników glebowych – głównie mrówek i termitów, albo odstąpiono od stosowania w ogóle [6]. Chlordan produkowano przez wiele lat w USA i eksportowano – jakkolwiek brak jest dostępnych danych dla lat 1990-tych. Chlordan w względnie dużym stężeniu wykrywano w środkach spożywczych wyprodukowanych jeszcze na początku lat 1990-tych. Zatem, istnieje podejrzenie, że chlordan bywa jeszcze stosowany conajmniej w krajach strefy tropiku i subtropiku oraz w Australii – zarówno w celach agrotechnicznych jak i w tych nie związanych z rolnictwem [28].

Chlordan techniczny jest syntetyzowany w procesie dwuetapowym. Z przyłączenia sześciochlorocyklopentadienu do cyklopentadienu powstaje chlorden, który z kolei jest poddawany chlorowaniu z SO_2Cl_2 . Produktem reakcji są dwa izomery chlordanu: *cis*- (α) i *trans*- (γ) chlordan, czyli 2,3,4,5,6,7,8,8-oktachloro-2,3,3a,4,7,7a-heksawodoro-4,7-metanoinden. Obecność, obok heksachlorocyklopentadienu, takich domieszek jak tetra- i pentachlorocyklopentadien oraz nieselektywne przyłączenie chloru sprawiają, że techniczny chlordan to złożona mieszanina co najmniej 147 związków [7]. Dokładnie lub tylko w części zidentyfikowane składniki preparatu chlordan to związki zbudowane ze szkieletu 9-cio (C 9), 10-cio (C 10), 11-to (C 11) i 15 węglowego (C 15) – są one w różnym stopniu uchlorowane (na ogół 7, 8 lub 9 przyłączonych atomów chloru) (ryc. 1) [3, 7]. Główne składniki chlordanu technicznego to: *trans*-chlordan (γ -chlordan) – $24 \pm 2\%$, *cis*-chlordan (α -chlordan) – $19 \pm 3\%$, heptachlor – $10 \pm 2\%$, *trans*-nonachlor – $7 \pm 3\%$ i *cis*-nonachlor $7 \pm 3\%$ [10]. Poza wymienionymi związkami w małym stężeniu w preparacie chlordanu technicznego zidentyfikowano związki od MC4 do MC7 (tzw. Miyazaki compounds) oraz związek U82 [7, 8, 34]. W badaniach Busera i Müllera [3] główne składniki technicznego preparatu chlordan to: *trans*-chlordan ($14,5 \pm 0,3\%$), *cis*-chlordan ($13,0 \pm 0,3\%$), heptachlor ($10,0 \pm 0,8\%$), *trans*-nonachlor ($6,0 \pm 0,4\%$), składnik MC5 ($3,6 \pm 0,1\%$), *cis*-nonachlor ($1,6 \pm 0,3\%$) i składnik MC6 ($0,5 \pm 0,1\%$). Oczyszczony preparat technicznego chlordanu (preparat HCS-3260 firmy Vesicol Chem. Co.) zawiera $>95\%$ chlordanu ($\sim 74\%$ *cis* i $\sim 24\%$ *trans*-chlordanu) [9].

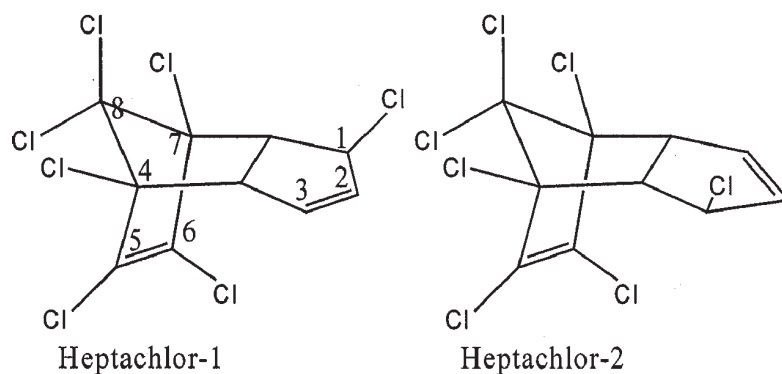
Składniki chlordanu technicznego są metabolizowane do dwóch trwałych epoksydów: oksychlordanu i epoksydu heptachloru (ryc. 1). Główne składniki technicznego preparatu chlordanu takie jak: heptachlor, *cis*- i *trans*-chlordan oraz ich metabolity – epoksyd heptachloru i oksychlordan są asymetryczne, i, zatem istnieją w dwóch formach enancjomerycznych (ryc. 2) [3]. W preparacie technicznym chlordanu oraz w powietrzu atmosferycznym heptachlor i chiralne okta- i nonachlordany występują jako mieszaniny racemiczne (ilościowo, stosunek enancjomerów wynosi 1:1). W ustroju zwierząt, w wyniku stereoselektywnego metabolizmu z udziałem oksydaz wątrobowych, dominuje jeden z pary enancjomerów. Także trwałe metabolity chlordanu, tj. epoksyd heptachloru i oksychlordan obecne w ciele zwierząt morskich występują w zmienionym stosunku enancjomerycznym. Przy ekspozycji na promienie słoneczne z heptachloru powstaje fotoheptachlor (ryc. 3), a z *cis*-chlordanu (1,5)-foto-*cis*-chlordan i (2,5)-foto-*cis*-chlordan (ryc. 4). Produkty przemian fotolitycznych heptachloru i *cis*-chlordanu w atmosferze, tj. fotoheptachlor oraz (1,5)-foto-*cis*-chlordan i (2,5)-foto-*cis*-chlordan to także związki chiralne, których obecność wykryto w śluzach bałtyckich i ssakach morskich. Wszystkie trzy wymienione metabolity wydają się być silniej biokumulowane i znacznie trwalsze w środowisku niż związki macierzyste – heptachlor i *cis*-chlordan [3]. Zarówno składniki macierzyste chlordanu jak i jego trwałe metabolity są to substancje lipofilne



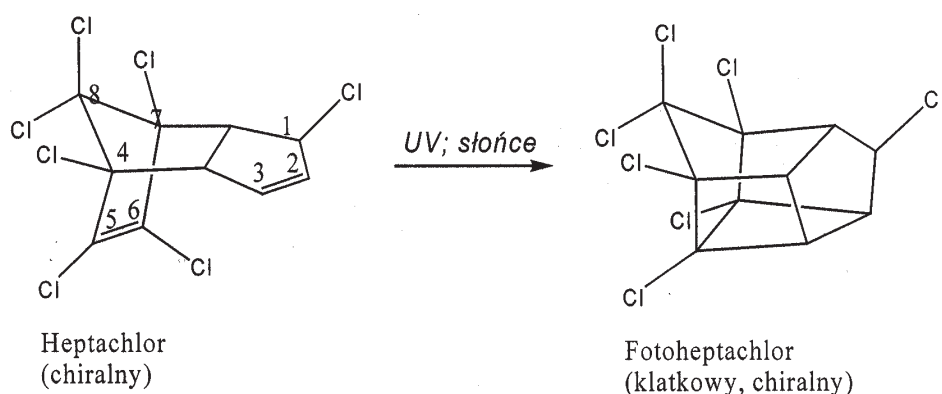
Ryc. 1. Wzory strukturalne głównych składników chlordanu i ich metabolitów.
Structures of the main constituents of Chlordane and its metabolites.



Ryc. 1 cd. Wzory strukturalne głównych składników chlordanu i ich metabolitów.
Structures of the main constituents of Chlordane and its metabolites.



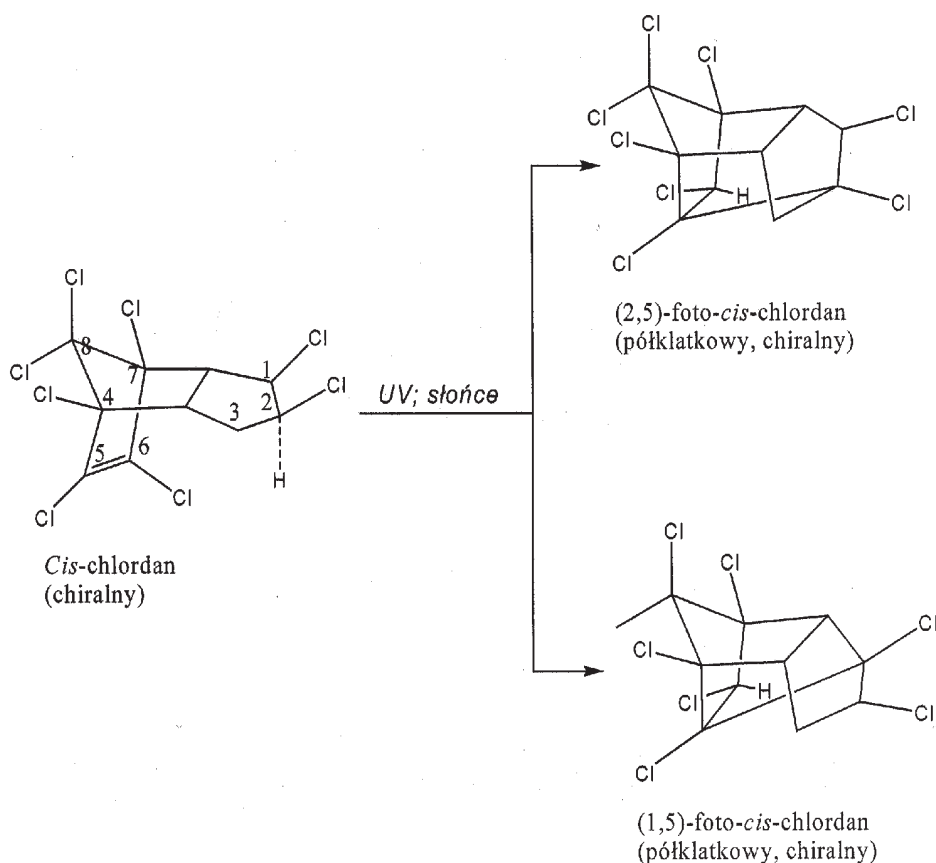
Ryc. 2. Wzory strukturalne dwóch enancjomerów heptachloru.
Structures of the two enantiomers of Heptachlor.



Ryc. 3. Przemiana heptachloru w fotoheptachlor.
Formation of fotoheptachlor from heptachlor.

(predylekcja do frakcji lipidowej komórek i tkanek) oraz stosunkowo lotne. Trwałość oraz umiarkowana prężność par chlordanu i jego dwóch metabolitów, podobnie jak to ma miejsce w przypadku wielu innych trwałych w środowisku ksenobiotyków fluorowcoorganicznych, determinują transport tych związków drogą atmosferyczną, roznoszenie po świecie i deponowanie na powierzchni lito- i hydrosfery [25, 38].

Pomimo faktu, że chlordan był stosowany w Polsce krótko i ponad 20 lat temu, to wykazano obecność jego składników i metabolitów w małych stężeniach w tkance tłuszczowej zwierząt rzeźnych i zwierzyny łownej [19], produkowanych w kraju tranach bałtyckich i rybach z Zatoki Gdańskiej [14, 16, 20], powietrzu atmosferycznym w Gdańsku, wodzie wiślanej oraz osadach dennych i glebie w Polsce [15, 17, 18, 30, 31]. Wymienione przykłady sugerują że pozostałości CHLs i jego metabolitów w małych stężeniach jeszcze występują praktycznie we wszystkich matrycach środowiskowych w kraju.



Ryc. 4. Przemiana *cis*-chlordanu w dwa izomeryczne foto-*cis*-chlordany.
Formation of two isomeric photo-*cis*-chlordanes from *cis*-chlordan.

Celem tej pracy jest przedstawienie wyników oszacowania wielkości spożycia chlordanu oraz heptachloru łącznie z epoksydem heptachloru w Polsce.

METODY

Dostępne w piśmiennictwie naukowym informacje o stopniu skażenia różnych rodzajów żywności związkami chlordanu, tak jak ma to miejsce w przypadku żywności i surowców żywnościowych pochodzenia morskiego [16], niemal z reguły dotyczą mniej niż 17 składników [41], tj. jak dotąd maksymalnej ich liczby zidentyfikowanej i oznaczonej ilościowo w matrycy środowiskowej. Bardzo często opublikowane dane dotyczą osobno tylko epoksydu heptachloru albo łącznie heptachloru i epoksydu heptachloru, lub wyłącznie wybranych składników chlordanu – *cis*- i *trans*-chlordanu, *cis*- i *trans*-nonachloru oraz oksychlordanu (czasami mniej niż wymienionych pięciu). Przywołanie i wyszczególnienie odnotowanych w piśmiennictwie naukowym wielkości stężeń pozostałości w żywności osobno dla poszczególnych składników chlordanu przekracza ramy tego opracowania. Zatem w tabeli I przywołano jedynie dane dla sumy składników chlordanu (CHLs) – tak jak podają to cytowani autorzy oraz dane dla heptachloru i epoksydu heptachloru. Różna liczba oznaczanych składników chlordanu sprawia, że niemożliwe jest bez-

Nr 1

Pobranie chlordanu i pochodnych z żywnością w Polsce

55

Tabela I.

Tabela I cd.

Tabela I cd.

Tabela II.

pośrednie porównywanie wyników opublikowanych przez poszczególnych autorów. Ponadto, jak dotąd, w dostępnym piśmiennictwie nie podano skwantyfikowanych danych dla pozostałości poszczególnych form enancjomerycznych chlordanu w środkach spożywczych – zidentyfikowanych na przykład w niektórych rybach bałtyckich oraz ssakach morskich [3, 4].

Wielkość spożycia chlordanu oraz odrębnie heptachloru i epoksydu heptachloru (H/EH) z żywnością w Polsce oszacowano w oparciu o dostępne dane o stopniu skażenia żywności (Tabela I) oraz wielkość i strukturę jej spożycia w Polsce (Tabela II) [11]. Zasadę i sposób postępowania opisano dokładnie w innych pracach [12, 13, 42]. W obliczeniach przyjęto, że w przypadku produktów (ziemniaki, ryż, owoce i tłuszcze roślinne), dla których stężenie pozostałości CHLs i H/EH było poniżej granicy oznaczalności metody jest ono faktycznie równe połowie tej wielkości. Stopień skażenia CHLs i H/EH mięsa wołowego, wieprzowego, drobiowego i innego oraz podrobów określono w oparciu o stopień skażenia pozostałościami tychże związków tłuszczu (sadła) zwierząt rzeźnych i łownych w Polsce [19] – z założeniem, że zawartość tłuszczu w określonych rodzajach mięs wynosi 20%. Z kolei w przypadku masła (100% tłuszczu) oraz mleka krowiego (2% tłuszczu) stopień skażenia CHLs i H/EH określono biorąc za podstawę średnią stężenie tychże pozostałości w tłuszczu wołowym, a w przypadku jaj kurzych (20% tłuszczu) średnią ważoną stężenia w tłuszczu drobiowym w Polsce [19]. Dane o wielkości spożycia chlordanu łącznie z heptachlorem i epoksydem heptachloru zawartych w rybach przytoczono z innej pracy [11]. Dane z oszacowania wielkości spożycia ksenobiotyku uzyskane w oparciu o badania monitorowe pozostałości oraz strukturę i wielkość spożycia żywności są porównywalne z wielkościami otrzymanymi w takich badaniach jak analiza próbek koszykowych żywności czy posiłków całodziennych (podwójna porcja) [26].

WYNIKI I ICH OMÓWIENIE

Chlordan i heptachlor są związkami toksycznymi i wymienianymi jako przypuszczalnie rakotwórcze dla człowieka. W przypadku poszczególnych składników chlordanu oraz metabolitów brak jest danych o ich toksyczności [6, 24, 37]. Formy enancjomeryczne chiralnych składników chlordanu oraz jego metabolitów różnią się właściwościami toksykodynamicznymi i trwałością w środowisku.

Wielkość spożycia chlordanu oraz heptachloru i epoksydu heptachloru w latach 1970–1996 oszacowano na, odpowiednio, od 0,35 do 0,42 i od 0,51 do 0,58 μg na osobę dziennie (Tabela III). Wielkość dopuszczalnego dziennego spożycia pozostałości chlordanu oraz heptachloru i epoksydu heptachloru (ADI) wyznaczono na poziomie 0,00005 mg/kg masy ciała dziennie, tj. 3 μg na osobę dziennie (masa ciała 60 kg), cyt. za [26]. Do 1990 r. wielkość ADI dla CHLs wynosiła 0,001 mg/kg m.c., czyli 70 μg na osobę dziennie (masa ciała 70 kg), a dla H/EH 0,0005 mg/kg m.c., czyli 35 μg na osobę dziennie [6]. Zatem oszacowana wielkość spożycia tak CHLs jak i H/EH w Polsce jest 5–8-krotnie mniejsza od aktualnej wartości ADI. Ryby, mięso i przetwory mięsne oraz masło są głównym źródłem CHLs w całodzienniej racji żywności w kraju, a w przypadku H/EH dominującym źródłem jest mięso i przetwory mięsne oraz tłuszcze zwierzęce.

W tabeli IV zestawiono dostępne dane o wielkości spożycia CHLs i H/EH w różnych krajach. Podobnie jak to ma miejsce w przypadku wielkości stężeń CHLs w żywności zestawionych w tabeli I, także trudno jest dokładnie ocenić i bezpośrednio porównywać podawane przez poszczególnych autorów oszacowania wielkości spożycia CHLs (Tabela IV). Wynika to z faktu, że na ogół autorzy cytowani w tabeli IV uwzględniali w analizie ilościowej CHLs w pożywieniu lub badaniach monitorowych poszczególnych grup żywności różną liczbę zidentyfikowanych składników chlordanu

Tabela III.

Tabela IV. Przeciętna wielkość dziennego spożycia chlordanu oraz heptachloru i epoksydu heptachloru (mg/osobę) w różnych krajach.
Average daily intake of chlordanes and heptachlor and heptachlor epoxide (mg/person) in various countries.

Kraj	CHLs	H/EH	Pozycja piśmiennictwa
Indie, 1989		0,07*	26
Tajlandia, 1989		0,08	
Wietnam, 1990		0,25	
Japonia, 1985	1,0		33
Japonia, 1987		0,030	45
Japonia, 1992–1993		0,064	36
Australia, 1990–1992	2,4 ^a	1,0 ^a	28
Australia, 1990–1992	3,4 ^b	1,2 ^b	
USA, 1982–84	0,17 ^c	0,13–0,18 ^c	22
USA, 1987		0,10	26
USA, 1990		0,04	
USA, 1992		0,021	45
Kanada, 1987–1988 ^d	15		32
Finlandia, 1983–1984	3,0	0,49	35
Włochy, 1971–1972		8,4	26
Włochy, 1978–1984		0,18	
Hiszpania, 1991		< 0,10	45
Polska, 1970–1996	0,35–0,42	0,51–0,58	Badania własne
FAO/WHO ADI**	3,0	3,0	26
EPA RfD**		3,0	

Objaśnienia: * tylko heptachlor; ** wielkości ADI i RfD – oryginalnie wyrażane w mg/kg masy ciała dziennie, w tej pracy, w celu czytelnego porównania, wyrażono w µg na osobę dziennie (masa ciała 60 kg); (RfD; reference dose; dawka nie wywołująca zauważalnych objawów zatrucia przy podawaniu przewlekłym podzielona przez współczynnik bezpieczeństwa – na ogół przez 100; termin analogiczny do ADI, a wprowadzony przez U.S. EPA, cyt. za [26]); ^a wiek 15 lat; ^b wiek 25–34 lata; ^c wiek 25–30 lat; ^d Indianie (Eskimosi) Inuit.

łącznie z oksychlordanem. Znaczne zmniejszenie przez ekspertów FAO/WHO w 1990 r. wyznaczonych wcześniej wielkości ADI dla CHLs i H/EH zdeterminowane jest trwałością składników i metabolitów chlordanu w środowisku, ich biokumulacją i toksycznością. Zdumiewać może fakt, że mimo tego iż chlordan oraz heptachlor nie były stosowane w Polsce, a dodatkowo chlordan praktycznie także nie był stosowany w Europie (były ZSRR – brak rzetelnych danych), to rozpiętość pomiędzy oszacowaną wielkością spożycia CHLs i H/EH a wielkością ADI tych pozostałości jest względnie mała. Obecność składników chlordanu i metabolitów (*cis-i trans*-chlordan, *cis-i trans*-nonachlor i oksychlordan) w małym stężeniu wykryto w tkance tłuszczowej Polaków – 100 ng/g masy lipidów w 1979 r. (n = 12) i 60 ng/g m.l. w 1990 r. (n = 9) [43]. Wymienione wielkości stężenia CHLs w tkance tłuszczowej Polaków wskazują na małą wielkość spożycia CHLs w Polsce. Pobranie CHLs z wdychanym powietrzem atmosferycznym jest zanedbywalnie małe. Powietrze w pomieszczeniu zamkniętym może być

ważnym źródłem narażenia na CHLs w sytuacji kiedy w glebie pod lub przy budynku użyto chlordanu do tępienia mrówek lub termitów. W porównaniu z Polską CHLs w znacznie większym stężeniu wykrywano w ludzkiej tkance tłuszczowej w Kanadzie, Japonii czy USA [7, 44].

J. Falandysz

DIETARY INTAKE OF CHLORDANES, HEPTACHLOR AND HEPTACHLOR EPOXIDE IN POLAND

Summary

Chlordanes, heptachlor and heptachlor epoxide exposure from a particular food items in Poland in 1970–1996 was calculated by multiplying its annualized mean consumption rates by residue concentration in the food. Estimated daily dietary intakes of chlordanes were from 0.35 to 0.42 μg per person while of heptachlor and heptachlor epoxide from 0.51 to 0.58 μg per person, on the average. Fish, meat and meat products and butter are a main source of chlordanes intake in a total diet in Poland, while in the case of heptachlor and heptachlor epoxide a main source are meat, meat products and animal fats.

PIŚMIENNICTWO

1. *Andersson Ö., Linder C., Olsson M., Reutergardh L., Uvemo U., Widequist U.*: Spatial differences and temporal trends of organochlorine compounds in biota from the Northwestern Hemisphere. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.* 1988, 17, 755.
2. *Bentabol A., Jodral M.*: Occurrence of organochlorine agrochemical residues in Spanish cheeses. *Pestic. Sci.* 1995, 44, 177.
3. *Buser H.R., Müller M.D.*: Enantioselective determination of chlordane components, metabolites, and photoconversion products in environmental samples using chiral high-resolution gas chromatography and mass spectrometry. *Environ. Sci. Technol.* 1993, 27, 1211.
4. *Buser H-R., Müller M.D., Rappe C.*: Enantioselective determination of chlordane components using chiral high-resolution gas chromatography-mass spectrometry with application to environmental samples. *Environ. Sci. Technol.* 1992, 26, 1533.
5. *Byrdy S., Górecki K., Łaszcz E.*: *Pestycydy*. PWRiL, Warszawa 1976.
6. *Chlordane*: Environmental Health Criteria 34, World Health Organization, Geneva, 1984.
7. *Dearth M.A., Hites R.A.*: Chlordane accumulation in people. *Environ. Sci. Technol.* 1991, 25, 1279.
8. *Dearth M.A., Hites R.A.*: Complete analysis of technical chlordane using negative mass spectrometry. *Environ. Sci. Technol.* 1991, 25, 245.
9. *Dorough H.W., Skrentny R.F., Pass B.C.*: Residues in alfalfa and soils following treatment with technical chlordane and high purity chlordane (HCS-3260) for alfalfa weevil control. *J. Agric. Food Chem.* 1972, 20, 42.
10. *Eisler R.*: Chlordane hazards to fish, wildlife and invertebrates: A synoptic review. Biological Report 85 (1–21) Contaminant Hazard Reviews Report 21, Fish and Wildlife Service, US: Department of the Interior.
11. *Falandysz J.*: Wielkość spożycia chlordanu z żywnością pochodzenia morskiego w Polsce. *Rocz. PZH* 2000, 51, 229.
12. *Falandysz J.*: Badanie występowania pozostałości polichlorowanych dwufenyli (PCB) w żywności pochodzenia morskiego oraz próba oszacowania dziennego spożycia tych związków w Polsce w latach 1970–1982. *Studia i Materiały Morskiego Instytutu Rybackiego*, 1987, Seria D, Nr 16.

13. *Falandysz J.*: Oszacowanie wielkości spożycia polichlorowanych dwufenyli w Polsce. *Roczn. PZH* 1988, 39, 366.
14. *Falandysz J.*: Związki chloroorganiczne w węgorzycy *Zoarces viviparus* z Zatoki Gdańskiej. *Bromat. Chem. Toksykol.* 1995, 28, 401.
15. *Falandysz J.*: Pestycydy chloroorganiczne i polichlorowane bifenyle w warstwie powierzchniowej piaszczystych osadów dennych z Zatoki Puckiej. *Bromat. Chem. Toksykol.* 1992, 25, 387.
16. *Falandysz J., Strandberg L., Strandberg B., Bergqvist P-A., Rappe C.*: Pozostałości chlordanu w rybach z Zatoki Gdańskiej. *Roczn. PZH* 2000, 51, 119.
17. *Falandysz J., Brudnowska B., Iwata H., Tanabe S.*: Seasonal concentrations of PCBs and organochlorine pesticides in the ambient air in the city of Gdańsk, Poland. *Organohalogen Compd.* 1998, 39, 219.
18. *Falandysz J., Brudnowska B., Iwata H., Tanabe S.*: Polychlorinated biphenyls (PCBs) and organochlorine pesticides in water of the Vistula River at the Kieźmark site, Poland. *Organohalogen Compd.* 1998, 39, 215.
19. *Falandysz J., Kannan K.*: Organochlorine pesticide and polychlorinated biphenyl residues in slaughtered and game animal fats from the northern part of Poland. *Z. Lebensm. Unters. Forsch.* 1992, 195, 17.
20. *Falandysz J., Kannan K., Tanabe S., Tatsukawa R.*: Organochlorine pesticides and polychlorinated biphenyls in cod-liver oils: North Atlantic, Norwegian Sea and Baltic Sea. *Ambio* 1994, 23, 288.
21. *Frank R., Braun H.E., Fleming G.*: Organochlorine and organophosphorus residues in fat of bovine and porcine carcasses marketed in Ontario, Canada from 1969 to 1981. *J. Food. Prot.* 1983, 10, 893.
22. *Gunderson E.L.*: FDA total diet study, April 1982-April 1984, dietary intakes of pesticides, selected elements, and other chemicals. *J. Assoc. Off. Anal. Chem.* 1988, 71, 1200.
23. *Hraiki A., Alami H., Kessabi M., Buhler D.R., Bernard P.*: Pesticide residues in seafood products from the Mediterranean coastal of Morocco. *Toxicol. Environ. Chem.* 1994, 41, 21.
24. IARC.: Occupational exposures in insecticide application, and some pesticides. IARC (Int. Agency Res. Cancer) Monogr. Eval. Carcinog. Risks Hum. 1991, 53, 179.
25. *Iwata H., Tanabe S., Sakai N., Nishimura A., Tatsukawa R.*: Geographical distribution of persistent organochlorines in air, water and sediments from Asia and Oceania, and their implications for global redistribution from lower latitudes. *Environ. Pollut.* 1993, 85, 15.
26. *Kannan K., Tanabe S., Giesy J.P., Tatsukawa R.*: Organochlorine pesticides and polychlorinated biphenyls in foodstuffs from Asian and Oceanian countries. *Rev. Environ. Contam. Toxicol.* 1997, 152, 1.
27. *Kannan K., Tanabe S., Ramesh A., Subramanian A., Tatsukawa R.*: Persistent organochlorine residues in foodstuffs from India and their implications on human dietary exposure. *J. Agric. Food. Chem.* 1992, 40, 518.
28. *Kannan K., Tanabe S., Williams R., Tatsukawa R.*: Persistent organochlorine residues in foodstuffs from Australia, Papua, New Guinea and the Solomon Islands: contamination levels and human exposure. *Sci. Total Environ.* 1994, 153, 29.
29. *Kannan K., Tanabe S., Quynh H.T., Hue N.D., Tatsukawa R.*: Residue pattern and dietary intake of persistent organochlorine compounds in foodstuffs from Vietnam. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.* 1992, 22, 367.
30. *Kawano S., Falandysz J., Brudnowska B., Wakimoto T.*: Organochlorine residues in freshwater sediments in Poland. *Organohalogen Compd.* 1998, 39, 331.
31. *Kawano S., Falandysz J., Brudnowska B., Wakimoto T.*: Persistent organochlorine pesticides and polychlorinated biphenyls in soil in Poland. *Organohalogen Compd.* 1998, 39, 337.
32. *Kinloch D., Kuhnlein H., Muir D.C.G.*: Inuit foods and diet: a preliminary assessment of benefits and risks. *Sci. Total Environ.* 1992, 122, 247.

33. *Matsumoto H., Murakami Y., Kuwabara K., Tanaka R., Kashimoto T.*: Average daily intake of pesticides and polychlorinated biphenyls in total diet samples in Osaka, Japan. *Bull. Environ. Contam. Toxicol.* 1987, 38, 954.
34. *Miyazaki T., Yamagishi, T., Matsumoto M.*: Isolation and structure elucidation of some components in technical grade chlordane. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.* 1985, 14, 475.
35. *Moilanen R., Kumpulainen J., Pyssalo H.*: Average total dietary intakes of organochlorine compounds from the Finnish diet. *Z. Lebensm. Unters. Forsch.* 1986, 182, 484.
36. *Nakagawa R., Hirikawa H., Hori T.*: Estimation of 1992–1993 dietary intake of organochlorine and organophosphorous pesticides in Fukuoka, Japan. *J. Assoc. Off. Anal. Chem. Intern.* 1995, 4, 921.
37. *Nomeir A.A., Hajjar N.P.*: Metabolism of chlordane in mammals. *Rev. Environ. Contam. Toxicol.* 1987, 100, 1.
38. *Oehme M.*: Dispersion and transport paths of toxic persistent organochlorines to the Arctic – levels and consequences. *Sci. Total Environ.* 1991, 106, 43.
39. *Osibanjo O., Adeyeye A.*: Organochlorine pesticide residues in cereals in Nigerian markets. *Bull. Environ. Contam. Toxicol.* 1995, 54, 460.
40. *Rocznik Statystyczny.* GUS Warszawa, 1971–1998.
41. *Strandberg B., Strandberg L., Bergqvist P-A., Falandysz J., Rappe C.*: Concentrations and biomagnification of 17 chlordane compounds and other organochlorines in harbour porpoise *Phocoena phocoena* from southern Baltic Sea. *Chemosphere* 1998, 37, 2513.
42. *Szprengier-Juszkiewicz T.*: Ocena stopnia skażenia rtęcią żywności i ludzi w Polsce. Rozprawa habilitacyjna, Instytut Weterynarii w Puławach, Puławy 1994.
43. *Tanabe S., Falandysz J., Higaki T., Kannan K., Tatsukawa R.*: Polychlorinated biphenyl and organochlorine insecticide residues in human adipose tissue in Poland. *Environ. Pollut.* 1993, 79, 45.
44. *Tanabe S., Kannan K., Tabucanon M., Siriwong C., Ambe Y., Tatsukawa R.*: Organochlorinated pesticide and polychlorinated biphenyl residues in foodstuffs from Bangkok, Thailand. *Environ. Pollut.* 1991, 72, 191.
45. *Urieta I., Jalon M., Eguileor I.*: Food surveillance in the Basque Country (Spain). I. Estimation of the dietary intake of organochlorine pesticides, heavy metals, arsenic, aflatoxin M₁, iron and zinc through the total diet study, 1990/91. *Food Contam. Addit.* 1996, 13, 29.
46. U.S. Environmental Protection Agency, Office of Pesticide Programs, Washington DC.: Chlordane, heptachlor, aldrin and dieldrin: Technical support document, 1987.

Otrzymano: 2002.02.18