

ジンとデスマチルアセタミプリドの間、またジノテフランとニテンピラムの間で0.49、チアクロプリドとニテンピラムの間で0.49と比較的高い相関が見られた（表8）。アセタミプリドはイミダクロプリド、デスマチルアセタミプリドと弱い相関が見られた。クロチアニジンはチアメトキサム、イミダクロプリド、チアクロプリドと弱い相関が見られた。

D. 考察

体内動態試験では、クロチアニジンは3日以内、ジノテフランは1日で大部分が未変化体として回収された。イミダクロプリドについては、未変化体の排泄が少なく、アセタミプリドについては、未変化体はごく僅かであり、代謝物である脱メチルアセタミプリドがあり、排出速度も他の化合物よりも遅かった。尿中濃度ではイミダクロプリド、アセタミプリドは低いが、摂取量はクロチアニジンに並ぶ。

体内動態試験を行った4物質以外では、チアメトキサムが多くの試料で検出されたが濃度は低かった。ニテンピラム、チアクロプリドはほとんど検出されなかつたが、使用量、摂取量が少ないので、体内で代謝されているのかは今後の検討が必要である。

ネオニコチノイド排出量と関連する要因に年齢があったが、野菜などの摂取量と交絡していると考えられた。相関した食材が農薬ごとに差異が見られたのは、農薬使用パターン、残留度合いに違いがあったためと考えられた。ジノテフランは家庭用殺虫剤で多く使用されているが、相関は見られなかった。

ネオニコチノイドの中で相関が見られたが、アセタミプリド、デスマチルアセタミプリドは親化合物、代謝物

という関係である。クロチアニジンはそれ自体が農薬として使用されているが、チアメトキサムの代謝物でもあるため、今回見られたクロチアニジンのいくらかはチアメトキサムに由来すると考えられた。チアメトキサムからデスマチルチアメトキサムへの代謝はほとんどないと考えられた。その他、代謝物の関係はない相関関係については、混用あるいは土壤で残留していた可能性が考えられた。

E. 結論

ネオニコチノイド4種の体内動態モデルを確立することができた。

一般集団で、ネオニコチノイドの曝露量を推定でき、現時点で大きなリスクはないと考えられた。

F. 健康危険情報

なし

G. 研究発表

1. 論文発表
なし

2. 学会発表・その他

原田浩二、新添多聞、田中恵子、坂本裕子、今中美栄、大島匡世、草川浩一、奥田裕子、小林果、小泉昭夫、ヒトにおけるネオニコチノイド農薬の体内動態の検討、第85回日本衛生学会学術総会（2015年3月26-28日 和歌山）

H. 知的財産権の出願・登録状況

1. 特許取得
なし
2. 実用新案登録
なし
3. その他
なし

I. 文獻

EU commission, Amending Implementing Regulation (EU) No 540/2011, as regards the conditions of approval of the active substances clothianidin, thiamethoxam and imidacloprid, and prohibiting the use and sale of seeds treated with plant protection products containing those active substances.

COMMISSION IMPLEMENTING REGULATION (EU) No 485/2013 of 24 May 2013

EFSA Panel on Plant Protection Products and their Residues. Scientific Opinion on the developmental neurotoxicity potential of acetamiprid and imidacloprid. EFSA Journal 2013;11(12):3471.

Koizumi A. Development of

methodological and theoretical basis for preventive toxicology with special reference to hepatotoxicity. Ph. D thesis, Tohoku University. 1983;
<http://hdl.handle.net/10097/19566>.

食品安全委員会. 農薬評価書アセタミド2008年8月, イミダクロプロピド2007年6月, チアメトキサム(第2版)2012年3月, クロチアニジン(第5版)2014年1月, ジノテフラン(第5版)2013年12月

<https://www.fsc.go.jp/fsciis/evaluationDocument/list?itemCategory=001>

Table 1. Demographic characteristics and vegetable intake of the study participants

	n	Total	Male	Female	
		373	45	mean±SD	range
Age	(yr)	37.9±23.3	318–87	48.2±23.5	21–85
Height	(cm)	158.2±7.3	120–185	169.5±6.4	156–185
Weight	(kg)	52.9±8.7	34–87	66.2±7.6	50–87
Parity		-	-	-	0.6±1.0
Food consumption	(g/day)				
	cereal	245±155	0–720	253±144	0–540
	potato	25±54	0–600	39±51	0–150
	vegetable	245±207	0–1338	297±290	0–1338
	fruits	57±105	0–545	113±167	0–545
	tea	143±250	0–1500	231±289	0–1000
Insecticide use	(No. of items)	0.3±0.8	0–5	0.2±0.7	0–3
		%		%	%
Vegetable eating habit ^a	often	74.7%		73.9%	74.8%
	sometimes	25.3%		26.1%	25.2%
Drinking	current drinker	34.6%		75.6%	28.9%
	ex-drinker	4.1%		11.1%	3.1%
	non-drinker	61.4%		13.3%	68.0%
Smoking	current smoker	0.8%		0.0%	0.9%
	ex-smoker	7.3%		40.0%	2.8%
	non-smoker	91.9%		60.0%	96.3%

^a 'often' means eating vegetable at least once a day.

Table 2. LC-MS/MS conditions for the determination of neonicotinoids

Liquid chromatography					
Instrument	SHIMADZU Nexera				
Column	Atlantis T3 (2.1 mm(i.d.)×100 mm, 3 µm) (Waters)				
Column temperature	40°C				
Mobile phase	A: 0.1% formic acid/10 mM ammonium acetate in water B: Acetonitrile				
Mobile phase gradient	0–4 min	A95	B5		
	4–15 min	A95>50	B5>50		
	15–18 min	A50>0	B50>100		
	18–23 min	A0	B100		
	23–30 min	A90	B10		
Mobile phase flow	0.2 mL min ⁻¹				
Injection volume	10 µL				
Mass spectrometer					
Instrument	TripleQuad 6500 (AB SCIEX)				
Ionization	Electrospray positive ionization (multiple reaction monitoring)				
Monitored ion (m/z)	Quantification	Confirmation	Declustering potential (V)	Collision energy (V)	Retention time (min)
Acetamiprid	223.0 > 126.0	223.0 > 90.0	71	29	12.7
Clothianidin	249.9 > 169.0	249.9 > 132.0	21	19	11.7
Dinotefuran	203.0 > 129.0	203.0 > 114.1	1	17	8.4
Imidacloprid	256.0 > 175.1	256.0 > 209.0	56	25	12.1
Nitenpyram	271.0 > 99.0	271.0 > 125.9	51	39	9.7
Thiacloprid	252.9 > 125.9	252.9 > 90.0	76	29	13.9
Thiamethoxam	291.8 > 211.1	291.8 > 181.0	41	17	10.7
Desmethyl-acetamiprid	209.1 > 125.9	209.1 > 90.0	61	25	11.9
Desmethyl-thiamethoxam	278.0 > 132.0	278.0 > 174.0	36	25	12.6
Thiacloprid amide	271.0 > 125.9	271.0 > 73.0	31	35	11.8
Acetamiprid-d3	226.0 > 126.0		71	31	12.7
Acetamiprid-d6	226.0 > 126.0		71	31	12.7
Clothianidin-d3	253.0 > 172.1		1	19	11.7
Dinotefuran-d3	206.1 > 132.1		56	19	8.4
Imidacloprid-d4	260.1 > 179.1		26	25	12.1
Thiacloprid-d4	296.0 > 215.0		91	29	13.9
Thiamethoxam-d4	296.0 > 215.0		41	17	10.7
Desmethyl-acetamiprid-d3	212.1 > 125.9		61	25	11.9

Table 3. Calibration curves, detection limits, and recoveries for neonicotinoids analyses

Target analytes	Range (ng mL ⁻¹)	Calibration curves (Y=ax+b) ^a		Linearity (r)	Detection limit ^b (ng mL ⁻¹)	Recovery % (RSD%) ^c (n=7)
		Slope (a)	Intercept (b)			
Acetamiprid	0.005-2	0.886	0.00529	0.9999	0.005	91 (10)
Clothianidin	0.02-5	0.905	-0.00721	0.9999	0.020	100 (15)
Dinotefuran	0.01-10	1.29	0.00201	0.9999	0.010	64 (21)
Imidacloprid	0.01-1	0.881	0.0168	0.9999	0.010	97 (17)
Nitenpyram	0.01-2	7.87E+05	1.04E+03	0.9999	0.010	72 (6)
Thiacloprid	0.005-2	1.02	0.00442	0.9999	0.005	80 (5)
Thiamethoxam	0.01-1	0.909	0.00396	0.9999	0.010	89 (16)
Desmethyl-acet amiprid	0.005-2	1.66E+06	8.55E+03	0.9999	0.005	72 (12)
Desmethyl-thia methoxam	0.02-2	2.43E+05	2.30E+03	0.9999	0.020	75 (4)
Thiacloprid amide	0.005-2	4.24E+06	1.30E+04	0.9999	0.005	69 (8)

^a Y and X are Area counts and Concentration (ng/mL), respectively, for external standard method; and are Analyte Area / IS Area ratio and Analyte Conc. / IS Conc. Ratio, respectively, for internal standard method.

^b 1-mL sample

^c RSD: relative standard deviation

Table 4. The model parameters in Eq3 and Eq10 determined based on the observed urinary excretion of labeled compounds after instantaneous dosing. R^2 values indicate correlation of the observed excretions and the modeled ones.

	r	α (day $^{-1}$)	β (day $^{-1}$)	n	R^2
Clothianidin	0.596	1.20	—	31	0.88
Imidacloprid	0.133	0.479	—	34	0.46
Dinotefuran	0.899	4.20	—	15	0.96
Desmethyl-acetamiprid	0.586	3.08	0.419	32	0.42

Table 5. The estimated daily intake M (Mean \pm SD) based on Eq13, Eq15, and Eq18 assuming steady state conditions before 2 $\mu\text{g day}^{-1}$ of instantaneous dosing. R^2 values indicate correlation of the observed excretions and the modeled ones.

	M ($\mu\text{g day}^{-1}$)	n	R^2
Clothianidin	1.26 ± 1.12	90	0.20 ($p < 0.05$)
Imidacloprid	1.58 ± 3.37	89	0.11 ($p = 0.0012$)
Dinotefuran	5.18 ± 6.40	83	0.077 ($p = 0.011$)
Desmethyl-acetamiprid	2.93 ± 12.4	93	0.057 ($p = 0.021$)

Table 6. Levels of urinary excretion of neonicotinoids and estimated daily intake.

	Urinary excretion (ug/day) ^a					
	n>LOD	mean±SD	median	75%ile	90%ile	max
Acetamiprid	91	0.02±0.09	n.d.	n.d.	0.04	1.38
Clothianidin	360	0.51±0.95	0.27	0.53	1.15	12.3
Dinotefuran	348	3.29±5.80	1.02	4.20	8.63	57.9
Imidacloprid	286	0.07±0.20	0.03	0.06	0.14	2.59
Nitenpyram	44	0.07±0.34	n.d.	n.d.	0.01	3.62
Thiacloprid	29	0.004±0.019	n.d.	n.d.	n.d.	0.22
Thiamethoxam	343	0.18±0.36	0.07	0.16	0.41	3.64
Desmethyl-acetamiprid	373	1.14±2.07	0.40	1.16	2.92	20.48
Desmethyl-thiamethoxam	4	0.0004±0.0040	n.d.	n.d.	n.d.	0.06
Thiacloprid amide	0	-	-	-	-	-

	Intake (ug/day) ^b					
	mean±SD	median	75%ile	90%ile	max	
Acetamiprid	1.94±3.53	0.67	1.97	4.98	34.9	
Clothianidin	0.86±1.59	0.46	0.89	1.93	20.7	
Dinotefuran	3.66±6.45	1.13	4.67	9.60	64.5	
Imidacloprid	0.53±1.52	0.19	0.43	1.06	19.5	

^a Urinary excretion was calculated assuming that daily creatinine excretion was 1.5 g for males and 1 g for females.

^b Intake was calculated based on portion distributed in the compartment 'r', derived from dosing study.

Table 7. Association between urinary excretion of neonicotinoids and participants characteristics

	Clothianidin		Desmethyl-acetamiprid	
	r	p value ^a	r	p value ^a
Age	0.21	<.0001	0.19	0.0002
Height	0.01	0.79	-0.01	0.81
Weight	0.01	0.88	0.01	0.81
Parity	0.25	<.0001	0.24	<.0001
Food consumption				
cereal	0.06	0.28	-0.05	0.41
potato	0.03	0.58	0.004	0.94
vegetable	0.09	0.14	0.06	0.28
fruits	0.14	0.02	0.14	0.02
tea	0.10	0.10	0.05	0.40
Insecticide use	-0.05	0.38	-0.05	0.37
	mean±SD	p value ^a	mean±SD	p value
Sex				
	male	0.7±1.8	0.16	1.3±3.1
	female	0.5±0.8		1.1±1.9
Vegetable eating habit ^b	often	0.6±1.1	0.08	1.2±2.2
	sometimes	0.3±0.3		0.6±1.0
Drinking				
	current drinker	0.5±0.6	0.02	1.2±1.8
	ex-drinker	1.2±3.1		2.0±5.2
	non-drinker	0.5±0.8		1.0±1.8
Smoking				
	current smoker	0.13±0.15	0.77	0.31±0.31
	ex-smoker	0.5±0.5		1.3±1.2
	non-smoker	0.5±1.0		1.1±2.1

^a ANOVA.

^b 'often' means eating vegetable at least once a day.

Table 7. (continued)

Dinotefuran		Imidacloprid		Thiamethoxam	
r	p valuea	r	p valuea	r	p valuea
0.21	<.0001	0.23	<.0001	0.06	0.23
0.05	0.29	-0.10	0.06	0.01	0.90
0.08	0.15	-0.10	0.07	-0.05	0.40
0.24	<.0001	0.17	0.004	0.07	0.24
0.18	0.002	-0.02	0.74	0.02	0.71
0.04	0.47	-0.007	0.91	-0.05	0.36
0.12	0.03	0.27	<.0001	0.03	0.56
0.14	0.02	0.17	0.005	0.004	0.94
0.10	0.13	0.11	0.09	0.04	0.55
-0.07	0.24	0.01	0.81	-0.004	0.94
mean±SD		p value		mean±SD	
4.1±9.0	0.34	0.07±0.20	0.98	0.17±0.23	0.86
3.2±5.2		0.07±0.20		0.18±0.37	
3.2±4.4	0.12	0.06±0.10	0.07	0.19±0.43	0.07
2.3±3.1		0.03±0.06		0.09±0.11	
3.9±8.1	0.23	0.11±0.31	0.02	0.21±0.42	0.29
4.0±4.6		0.03±0.03		0.21±0.23	
2.9±4.1		0.05±0.11		0.15±0.33	
0.07±0.12	0.005	0.05±0.04	0.66	0.04±0.04	0.72
6.7±11.6		0.11±0.25		0.15±0.19	
3.1±5.0		0.07±0.20		0.18±0.37	

Table 8. Parametric correlation coefficients among neonicotinoids.

	Acetamiprid	Clothianidin	Dinotefuran	Imidacloprid	Nitenpyram	Thiacloprid	Thiamethoxam	Desmethyl-acetamiprid	Desmethyl-thiamethoxam
Acetamiprid	1								
Clothianidin	0.15	1							
Dinotefuran	0.09	0.19	1						
Imidacloprid	0.31	0.26	0.12	1					
Nitenpyram	0.11	0.13	0.49	0.30	1				
Thiacloprid	0.07	0.21	0.26	0.30	0.49	1			
Thiamethoxam	0.04	0.33	0.15	0.09	0.07	0.05	1		
Desmethyl-acetamiprid	0.30	0.54	0.14	0.26	0.05	0.07	0.18	1	
Desmethyl-thiamethoxam	-0.02	-0.02	0.02	-0.03	-0.02	-0.02	-0.03	-0.04	1

Bold figures indicate statistical significance
(p<0.05).

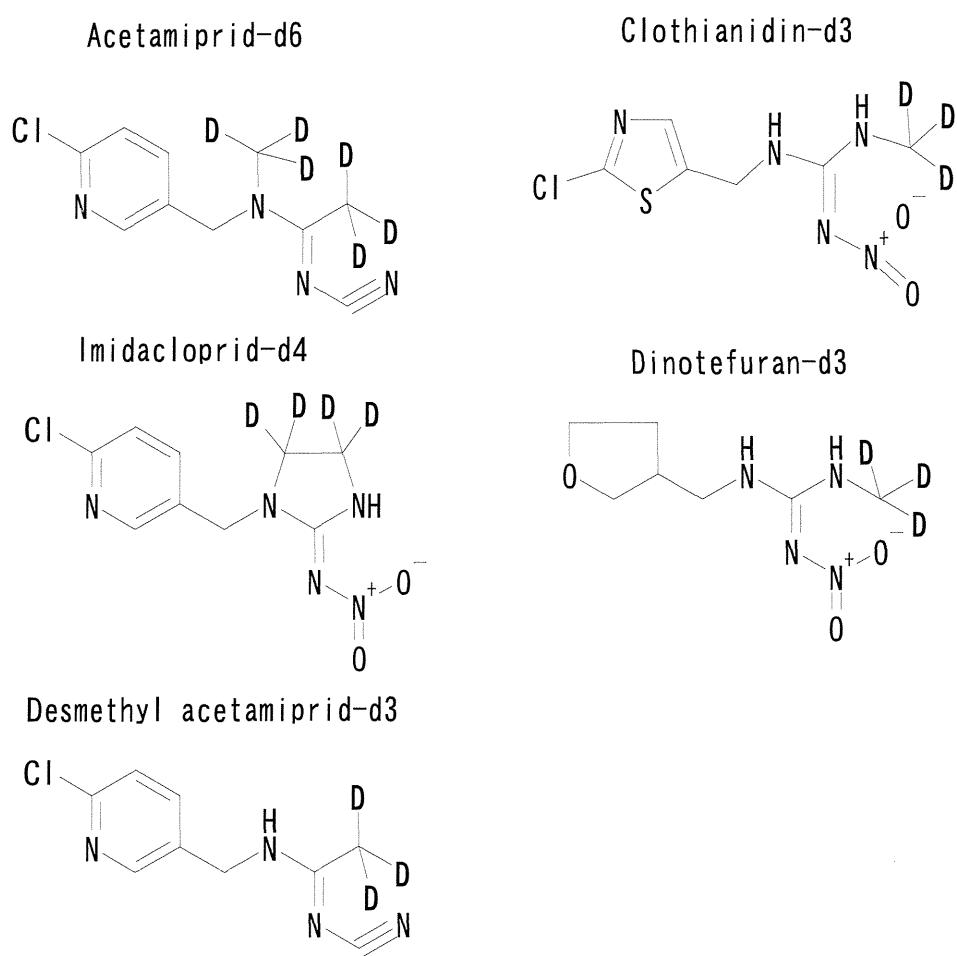


図 1 負荷試験に用いた重水素標識ネオニコチノイド

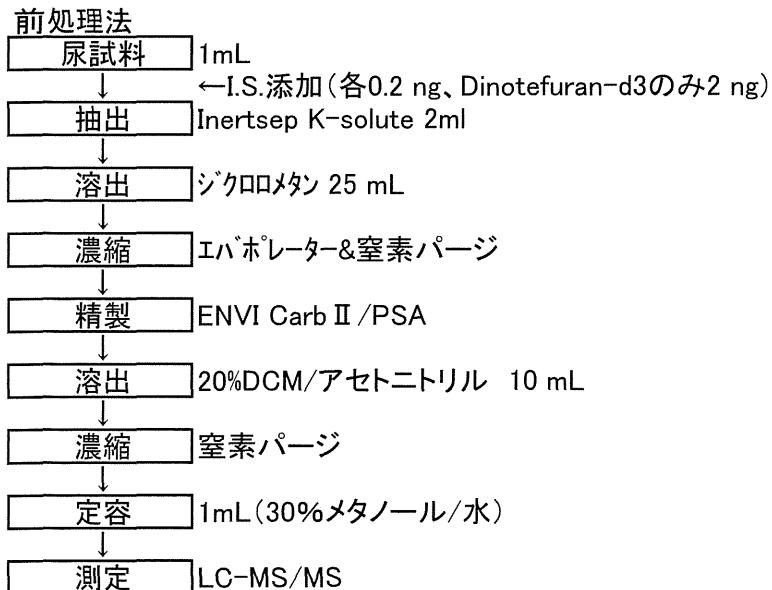


図 2 尿試料の前処理フロー

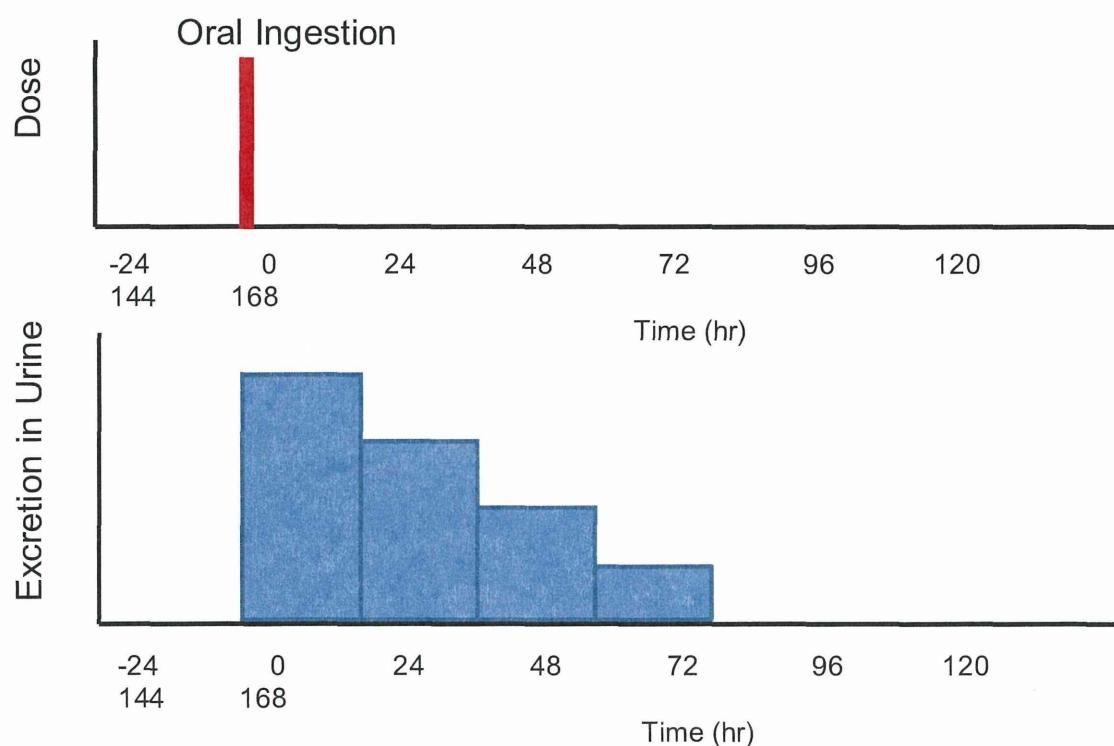
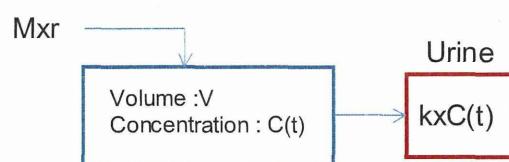


図3 標識ネオニコチノイド負荷試験におけるボーラス投与の仮定

A. One compartment model



B. Two compartment model

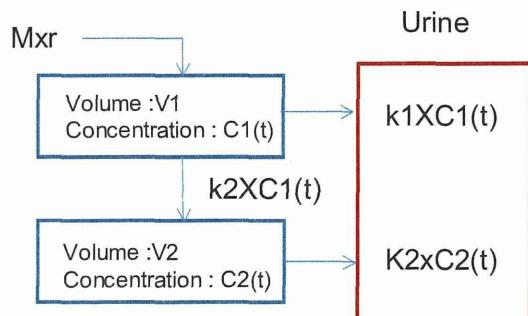


図4 薬物動態のコンパートメントモデル

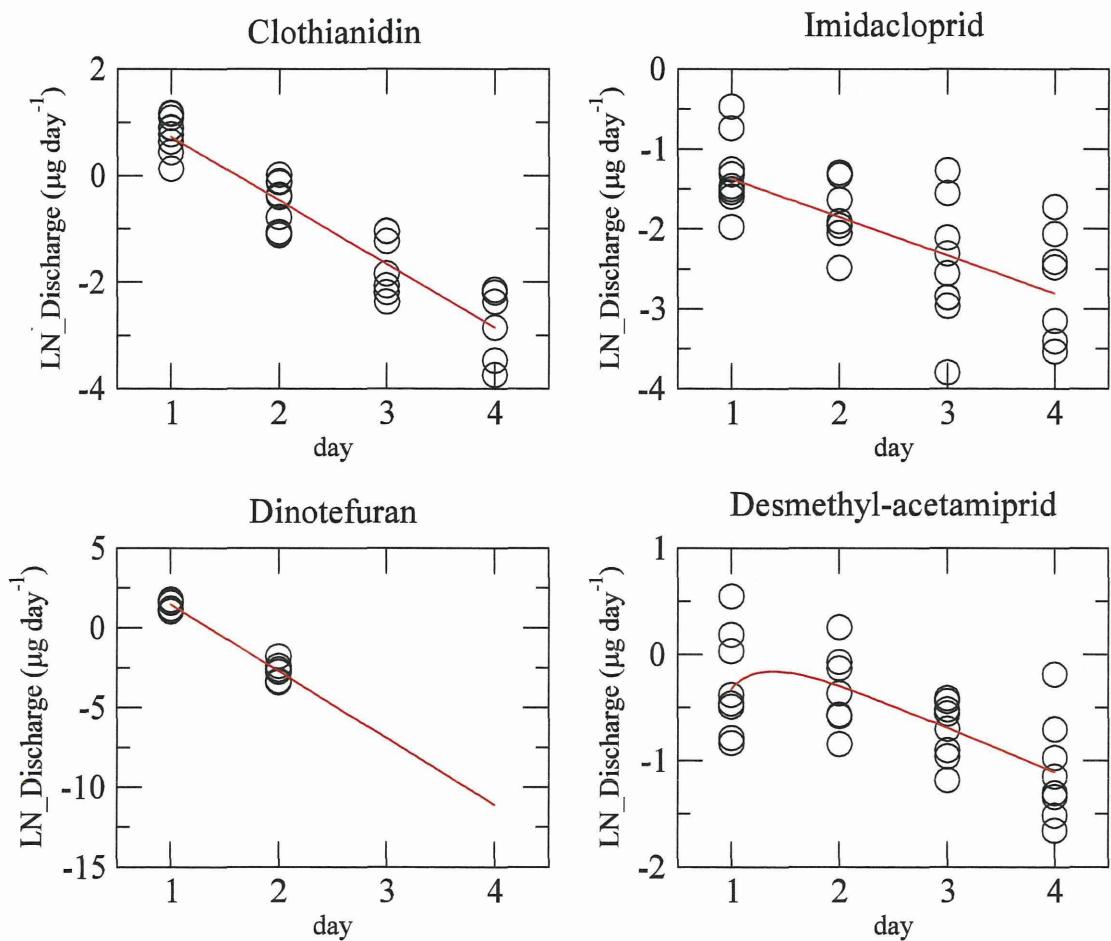


図 5 The observed urinary excretion ($\mu\text{g day}^{-1}$) of labeled compounds in every 24hours after instantaneous dosing (circles) and the modeled ones (lines).

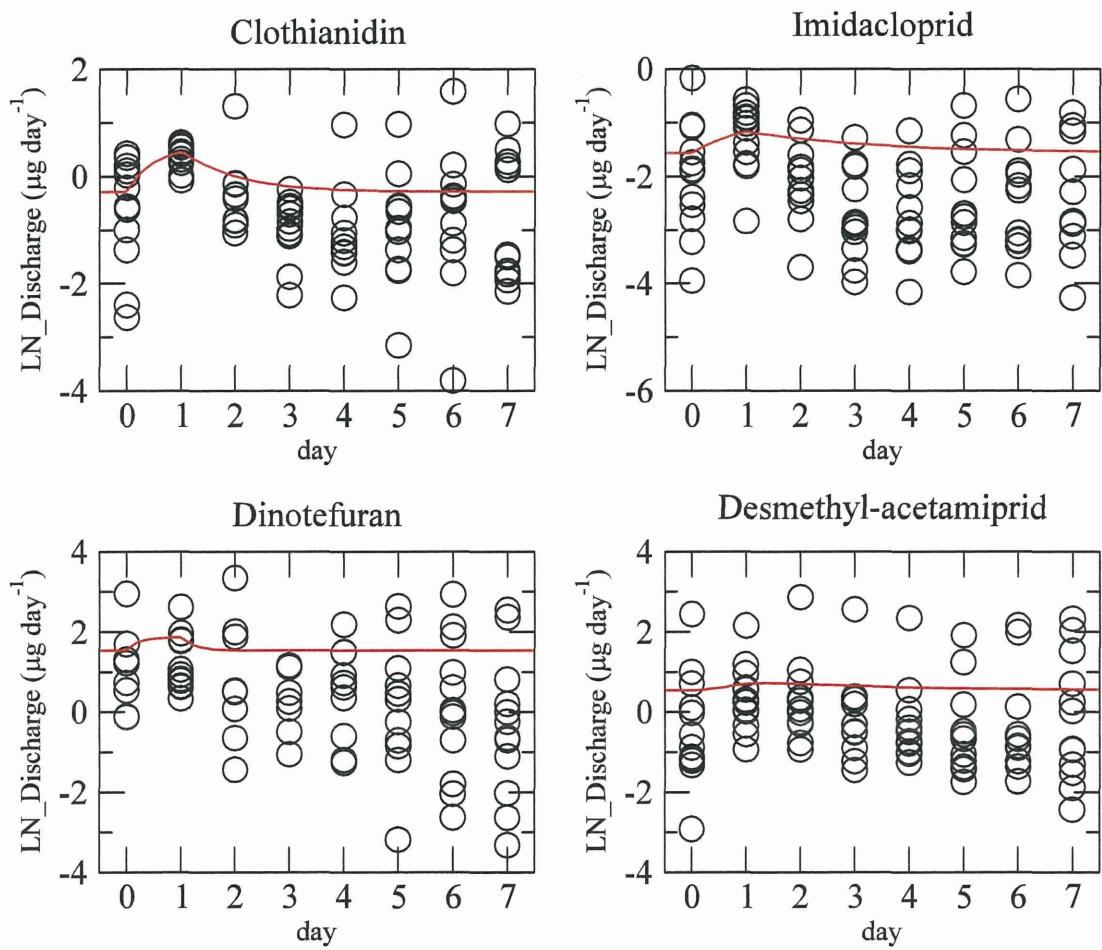


図6 The observed urinary excretion in every 24hours before (day0) and after $2 \mu\text{g day}^{-1}$ of instantaneous dosing (circles) and the modeled ones (lines).

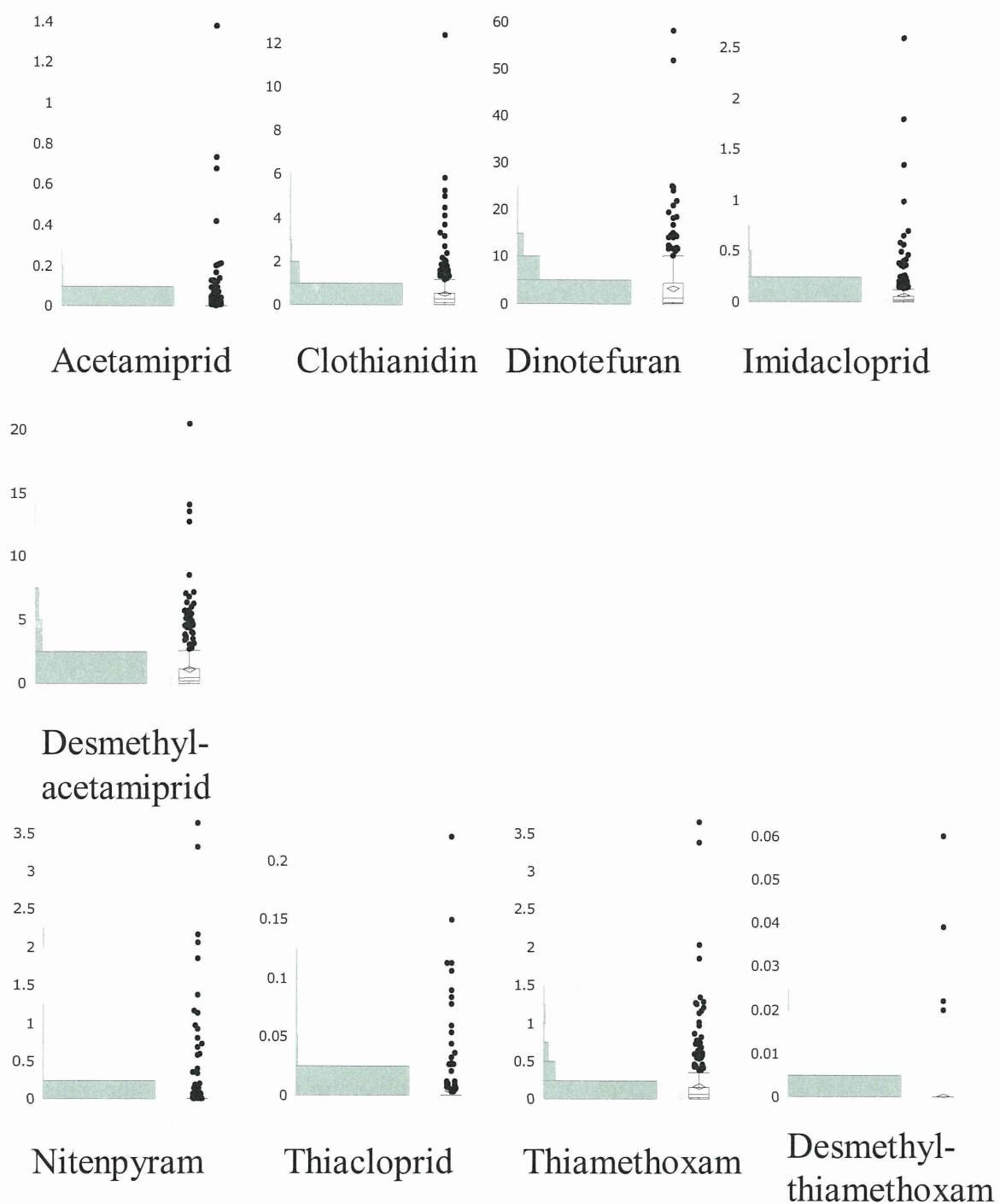


図7 健康な男女の尿中ネオニコチノイド排出量の分布（単位 $\mu\text{g}/\text{day}$ ）

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）
総合研究報告書 資料4

新規塩素系難燃剤の分析手法の検討

研究代表者 小泉 昭夫 京都大学大学院医学研究科・教授
研究分担者 原田 浩二 京都大学大学院医学研究科・准教授

研究要旨

難燃剤は各種プラスチックの発火を防止するために様々な製品に利用されている。しかし難燃剤の多くは燃焼時のラジカル補足剤としてハロゲンを含む。これらは難分解性と生物蓄積性を引き起こす可能性が高い。難燃剤の内、ポリ臭素化ジフェニルエーテル、ポリ臭素化ビフェニルのいくつかがストックホルム条約により残留性有機汚染物質として指定され、使用禁止となった。このため代替物質へ切り替えが進んでおり、代替物質として繁用される物質のモニタリングは必須不可欠である。このうち、塩素系難燃剤について、高感度高選択性の機器による測定方法を開発した。POPsについて既存の確立された前処理技術と、負イオン化ガスクロマトグラフー質量分析計（GC-ECNI-MS）を用いた分析技術で、より高感度で効率よく測定が可能となった。試行した食品試料中に対象物質が検出されるものもあり、食品を通じた摂取が起こりうると考えられ、次年度以降の調査で検討していく。

A. 研究目的

難燃剤は各種プラスチックの発火を防止するために様々な製品に利用されている。しかし難燃剤の多くは燃焼時のラジカル補足剤としてハロゲンを含む。これらは難分解性と生物蓄積性を引き起こす可能性が高い。難燃剤の内、ポリ臭素化ジフェニルエーテル、ポリ臭素化ビフェニルのいくつかがストックホルム条約により残留性有機汚染物質として指定され、使用禁止となった。このため代替物質へ切り替えが進んでおり、代替物質として繁用される物質のモニタリングは健康影響評価のためには、必須不可欠である。

塩素系難燃剤は、これまでに残留性有機汚染物質として指定されている

塩素化シクロペンタジエン誘導体（ドリン類、クロルデン類、マイレックス）と同様、塩素化シクロペンタジエンから合成され、難分解性である。Dechlorane 類は主に Dechlorane 602, 603, 604, 605 が知られている。Dechlorane 605はDechlorane Plus (DP) と呼ばれ、米国環境保護庁では高生産量化合物に指定している。毒性に関する調査データは少なく、米国環境保護庁は生産者であるOxyChem社に詳細なデータの報告を要請している (USEPA, 1998)。

生産拠点のある五大湖周辺、中国南部での調査では環境試料から Dechlorane Plus が検出されている (Sverko E et al., 2011)。日本では調査事例は少なく、屋内、屋外粉じんの調査

のみである(先山ら, 2012)。

そこで本研究では食事試料中の塩素系難燃剤についてガスクロマトグラフィー電子捕獲負イオン化法質量分析計 (GC / ECNI / MS) を用いて測定可能な方法を検討した。

B. 研究方法

定量化のための標準液として使用された化学物質Dec 602 (95%), Dec 603 (98%), Dec 604 (98%) は Toronto Research Chemical Inc. (Toronto, ON,) より購入した。syn-DP, and anti-DPは Cambridge Isotope Laboratoriesより購入した。 $^{13}\text{C}_{12}$ -2,3,3 ',5,5' - ペンタクロロビフェニル (CB-111、CIL社製) をSCCPs定量の内部標準として使用した。アセトン、トルエン、ヘキサン、ジクロロメタンは残留農薬試験及びポリ塩化ビフェニル試験用 (関東化学社製) を使用した。多層シリカゲル、フロリジルは和光純薬製を使用した。

・抽出、精製と機器分析

陰膳食事試料を攪拌し、凍結乾燥された試料5gを分取し、1:1 (vol / vol) アセトン/トルエン200mL、炭素13標識標準物質DP 10ngを加えて、ソックスレー抽出装置で16時間抽出した。有機層をロータリーエバポレーターを用いて約1 mLに濃縮させた。粗抽出液をメスフラスコを用いてヘキサン10 mLに希釀した。

粗抽出液10mLを酸化銀、40%硫酸シリカゲルカラムに滴下し、1:1 ジクロロメタン/ヘキサン溶液30mLで溶出させた。ロータリーエバポレーターを用いて約1 mLに濃縮させた。溶出液を8g活性化フロリジルカラム (Florisil PR、和光純薬製) に滴下し、ヘキサン30mLで洗浄した後、10% ジクロロメタン/

ヘキサン溶液30 mLで溶出させ、ロータリーエバポレーターを用いて約1 mLに濃縮させた。デカン0.5 mLに濃縮して $^{13}\text{C}_{12}$ 標識CB-111を添加し、GC / ECNI / MS分析に供した。

・測定

GC / ECNI / MSは、Agilent 6890、5973iを用いた。キャピラリーカラムはDB-5MSを用いて、15m×内径0.25 mm、膜厚0.1 μm とした。それぞれの分子イオン[M]を定量イオンとして用いた。検出限界 (IDL) はS/N比3のとして定義した。ブランクサンプルではSCCPsがIDL以下なので、検出限界 (MDL) の値はIDLに等しいとした。抽出効率と回収率は、5g食品試料に標準溶液添加し、評価した。ブランク試料を用いて、抽出精製でのコンタミネーションを評価した。

C. 研究結果

陰イオン化学イオン化は、それぞれ分子量関連イオン[M]をベースピークとして与えた (図1)。Dechlorane類では臭素原子を含むDec604では他のDechlorane類より感度が低かった (比1/20)。またキャピラリーカラムが長く、膜厚が長い場合、塩素原子が脱離したと考えられるピークが認められた (図2)。そのため、キャピラリーカラムは15mで膜厚は0.25umのものを利用した。

今回の前処理過程には多層シリカゲルを用いたが、硫酸シリカゲルによる分解は見られなかった。フロリジルカラムからの溶出もDechlorane類で大きな差はなく、炭素13標識標準物質DPを内部標準として採用できると考えられた。

食事試料のクロマトグラムのベース

ラインノイズから、Dec602, 603, 605の検出限界は1試料について1 ngとなり、Dec 604は20 ngとなった。試行した4試料の内、1検体でDec602が検出され、食事湿重量16 ng/gで、1日摂取量で39μg/dayとなった（図3）。

D. 考察

今回、新規塩素系難燃剤を食餌試料中で測定を試みた。これまでの残留性有機汚染物質測定の前処理同様、多層シリカゲルカラムで精製しても分解などは生じなかった。このため、他の残留性有機汚染物質の測定と平行してスクリーニングすることが可能である。キャピラリーカラムとの相性をあらかじめ調べておく必要があるが、Dechlorane類はいずれも沸点が高く、他のPOPsより遅れて溶出してくるため、測定イオンの干渉は少なく、一般的なカラムでの分離で問題はないと考えられた。今回はまだ試行であったが、Dechlorane類が検出される食事試料があったことから、何らかの経路で曝露が生じうる可能性がある。生体中の濃度も今後検討する必要があると考えられた。

E. 結論

Dechlorane類を食事試料で、化学イオン化で高感度に測定する方法を確立した。

F. 健康危険情報
なし

G. 研究発表
1. 論文発表
なし

2. 学会発表・その他
なし

H. 知的財産権の出願・登録状況
1. 特許取得
なし
2. 実用新案登録
なし
3. その他
なし

I. 文献

- (1) USEPA, Letter to Manufacturers/Importers, 10/9/98, High Production Volume (HPV) Challenge. 1998. <http://www.epa.gov/chemrtk/pubs/general/ceoltr1.htm>
- (2) Ed Sverko, Gregg T. Tomy, Eric J. Reiner, Yi-Fan Li, Brian E. McCarry, Jon A. Arnot, Robin J. Law, and Ronald A. Hites. Environ. Sci. Technol., 2011, 45 (12), pp 5088–5098
- (3) 先山孝則, 中野武. 高分解能GC/MS法を用いる環境中の塩素系難燃剤Dechlorane Plusの分析. 分析化学 61(9), 2012.

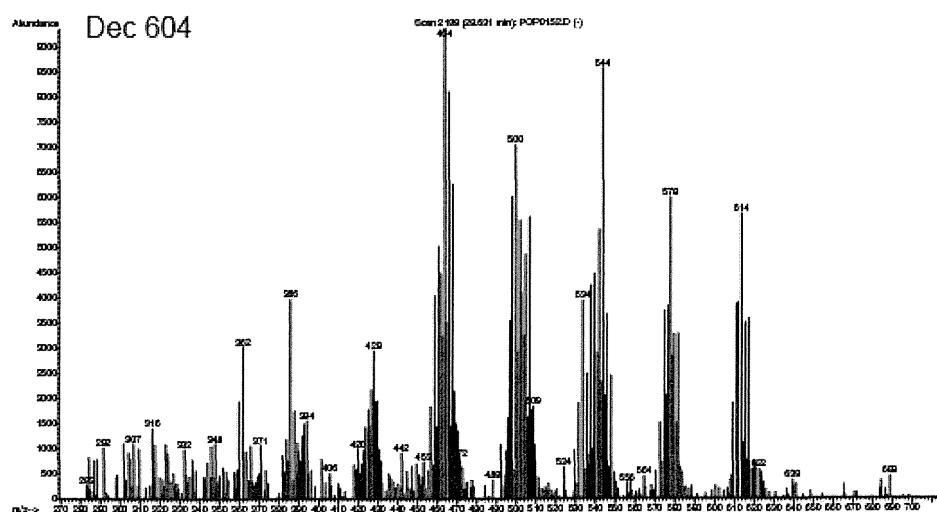
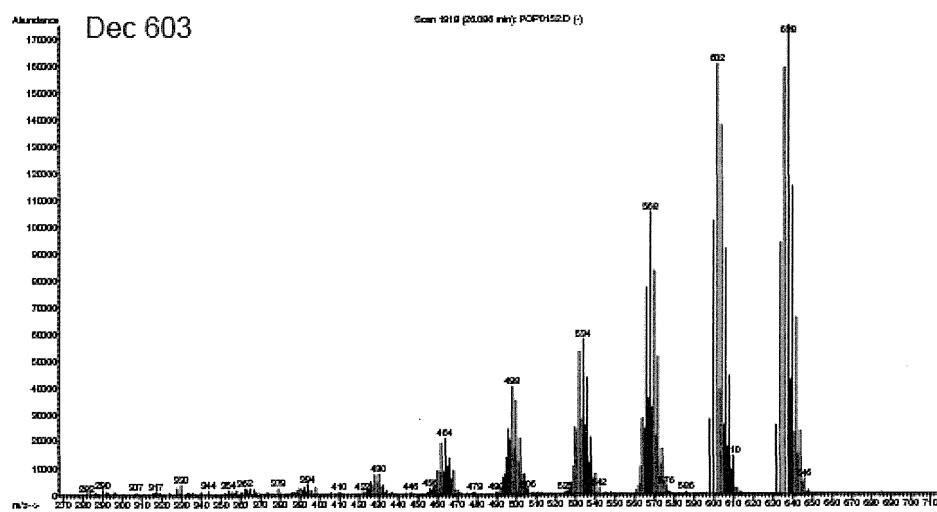
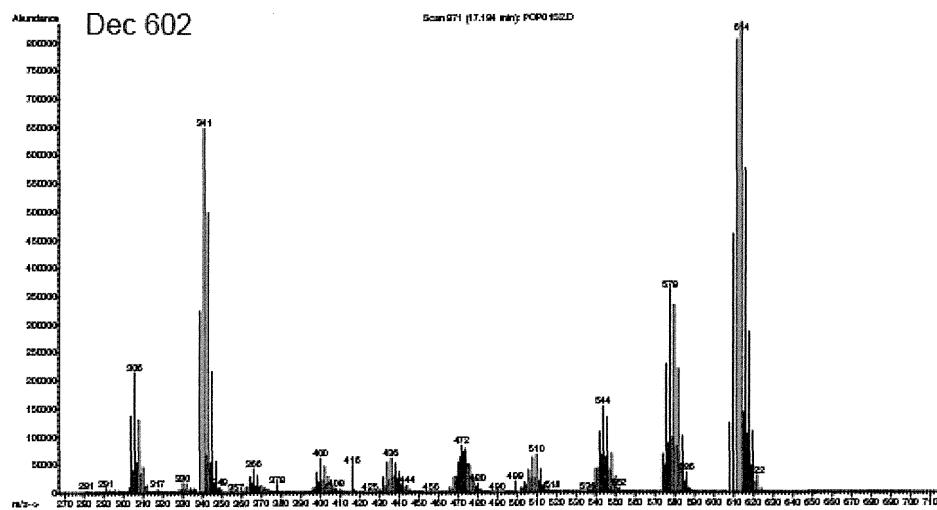


図1. 隠イオン化学イオン化におけるDechlorane類の質量スペクトラム

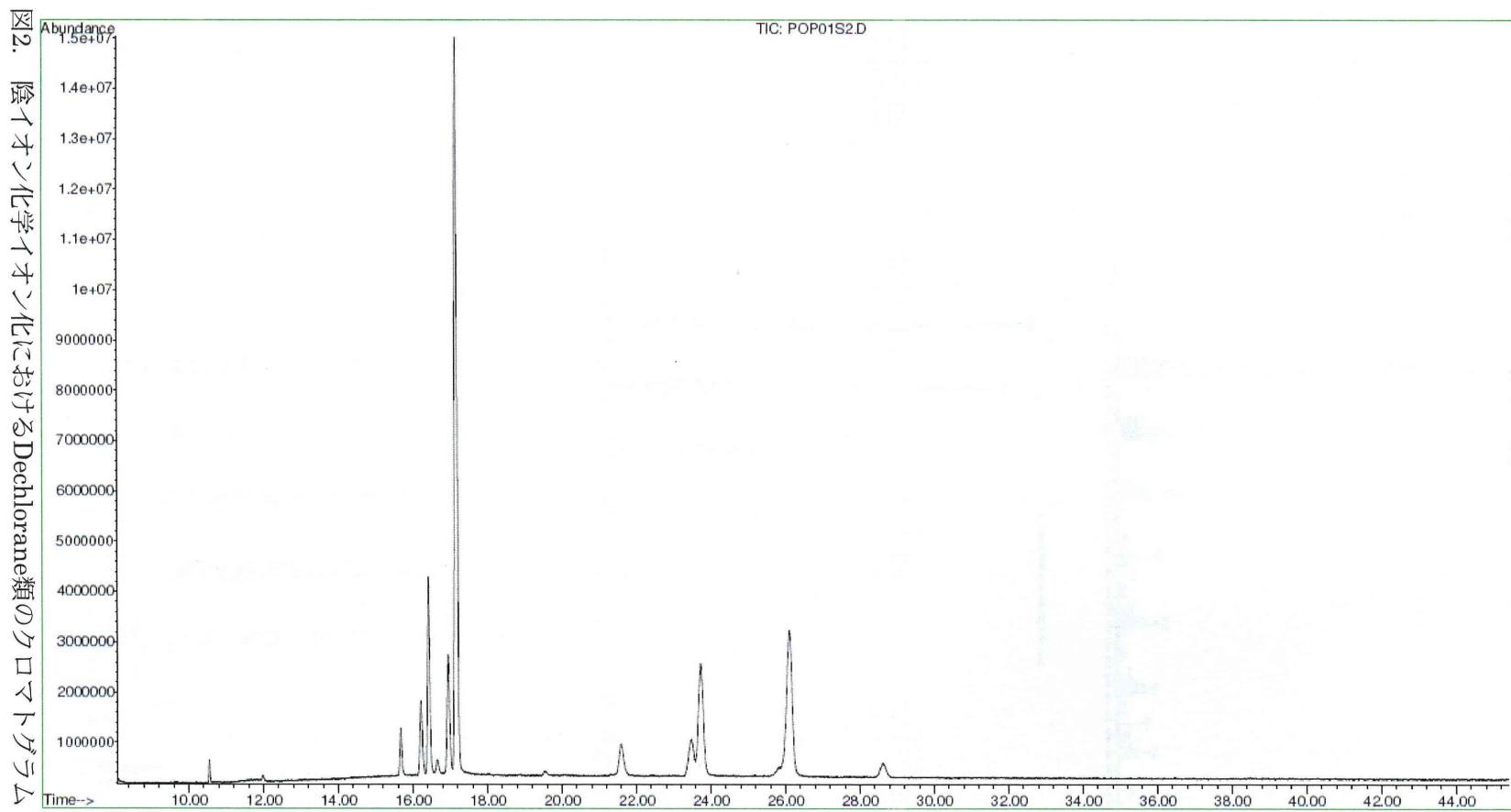


図2. 陰イオン化化学イオン化におけるDechlorane類のクロマトグラム