

超臨界流体抽出 (SFE) および LC-MS/MS による野菜・果実中の 残留農薬の一斉分析法の妥当性評価

(2020年6月4日受付)

(2020年8月9日受理)

米田正樹、西山隆之、南浦茉奈、立本行江

奈良県保健研究センター

Validation study on a method for multiresidue analysis of pesticides in vegetables and fruits with supercritical fluid extraction and LC-MS/MS

(Received June 4, 2020)

(Accepted August 9, 2020)

Masaki Yoneda, Takayuki Nishiyama, Mana Minamiura, Yukie Tatsumoto

Nara Prefecture Institute of Health

Abstract

Supercritical fluid extraction (SFE) was applied to extraction of pesticides from vegetables and fruits. Residues were extracted from homogenized samples mixed with celite and water-absorbent polymer with supercritical carbon dioxide. Measurement was performed by LC-MS/MS. With the Japanese method validation guideline as a reference, the method was assessed in 5 agricultural products spiked with 114 pesticides at 0.01 and 0.05 µg/g. Compounds at each level were extracted from 2 samples on 5 separate days. The trueness of the method for 58–78 pesticides in each samples was 70–120%, and the repeatability and within-run reproducibility were also consistent with the guideline. This method is available as a multiresidue analysis method for vegetables and fruits.

Keywords : 超臨界流体抽出、LC-MS/MS、妥当性評価、残留農薬

supercritical fluid extraction, LC-MS/MS, method validation, pesticide residue

I 緒言

超臨界二酸化炭素流体抽出による残留農薬分析法 (以下、SFE法という) は、従来の溶媒抽出法に比べ、アセトニトリルやメタノール等の人体に有害な有機溶媒の使用量が少なく、MS測定時に妨害要因となる食品由来夾雑物の抽出量が少ない。そのため、精製工程の簡略化やそれに伴う分析時間の短縮、さらには測定機器のメンテナンス頻度の減少などの効果が期待されている¹⁻³⁾。

これまで、SFE法による農薬多成分分析の報告は浦西らによる野菜、果実、穀類、豆類について^{4,5)}の、荒川らによる茶について⁶⁾のGC-MS/MSを用いた報告があり、この他にもGC-MSを用いた報告がある⁷⁻¹⁰⁾。一方SFE法とLC-MS/MSやLC-MSを用いた農薬多成分分析の報告は、Saito-ShidaらがLC-MS/MSを用いてトマトおよびきゅうりを試料とした報告がある¹¹⁾。その他にはLC-MSやHPLCを用いた報告があるが、これらは対象農産物が

少ないものや対象成分数が限られている^{12,13)}。また、移動相として超臨界流体二酸化炭素を用いた超臨界流体クロマトグラフィーによる農薬分析の報告もあるが、QuEChERS法による前処理が必要であるものが多い¹⁴⁻¹⁶⁾。これらの報告の多くは試験法の評価が試行数3程度の1日の添加回収試験による真度の算出までに留まっており、特にSFE法とLC-MS/MSを用いた一斉試験法については報告自体が少なく、妥当性ガイドラインに基づき評価を実施した報告はこれまでになく知見に乏しい。食品衛生法に定められている規格基準への適合について判断を行う試験に用いる分析法については、厚生労働省から通知された「食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドライン」(以下、「妥当性ガイドライン」という)に従い試験を実施することとなっている¹⁷⁾。

今回、野菜・果実を対象に農薬114化合物について、SFE法とLC-MS/MSを用いた一斉分析法を検討するとともに、食品衛生法に定められている規格基準値への適合