

1 飼料中の EPTC 及び二臭化エチレンのガスクロマトグラフ質量分析計による定量法

屋方 光則^{*1}, 鷲尾 和也^{*2}

Determination of EPTC and Ethylene Dibromide in Feeds by GC-MS

Mitsunori YAKATA^{*1} and Kazuya WASHIO^{*2}

(^{*1} Food and Agricultural Materials Inspection Center, Fukuoka Regional Center,
(Now Sapporo Regional Center),

^{*2} Food and Agricultural Materials Inspection Center, Fukuoka Regional Center)

An analytical method for determination of ethyl *N,N*-dipropylthiocarbamate (EPTC) and ethylene dibromide (EDB) in feed using a gas chromatograph-mass spectrometer (GC-MS) was developed. First, 20.0 g of sample and 400 mL of water were placed into a 1 L Dean-Stark distilling flask. After 20 mL of hexane and about 0.2 mL of silicone were added, the flask was attached to the Dean-Stark distillation apparatus and reflux-heated for 60 minutes with a mantle heater. After being cooled, the water in the distillation trap was thrown away and the hexane layer was filtered to a 20 mL test tube with fluid phase separation filter paper and subjected to a GC-MS for determination of EPTC and EDB. A spike test was conducted with two kinds of formula feed, and two kinds of grains (corn and rye) spiked with 25 µg/kg and 200 µg/kg of EPTC, and 5 µg/kg and 200 µg/kg of EDB. The spike test on two kinds of formula feeds, corn and rye resulted in recoveries ranging from 88.1% to 95.5% of EPTC and from 96.2% to 103% of EDB, and in relative standard deviations (RSD) within 11% and 6.3% respectively. A collaborative study was conducted using corn and formula feed for finishing beef cattle spiked with EPTC and EDB at 40 µg/kg and 10 µg/kg respectively. The mean recovery of EPTC in corn was 109%, and the repeatability and reproducibility in terms of the relative standard deviations (RSD_r and RSD_R) were 6.1% and 7.7% respectively. The mean recovery of EDB was 113%, and RSD_r and RSD_R were 1.9% and 6.9%, respectively. The mean recovery of EPTC and EDB in formula feed for finishing beef cattle was 106% with RSD_r of 5.8% and RSD_R of 14%, and 106% with RSD_r of 3.9% and RSD_R of 11% respectively.

Key words: 残留農薬 pesticide residue ; チオカーバメート系除草剤 thiocarbamate herbicide ; EPTC ethyl *N,N*-dipropylthiocarbamate (EPTC) ; 二臭化エチレン ethylene dibromide (EDB) ; デイーン・スターク蒸留器 Dean-Stark distillation apparatus ; 共同試験 collaborative study ; ガスクロマトグラフ質量分析計 gas chromatograph-mass spectrometer (GC-MS) ; 飼料 feed

^{*1} 独立行政法人農林水産消費安全技術センター福岡センター, 現 同札幌センター

^{*2} (独) 農林水産消費安全技術センター福岡センター

1 緒 言

EPTC (Fig. 1) はアメリカの Stauffer Chem 社が 1955 年に開発したチオカーバメート系除草剤であり, 1 年生イネ科雑草及び広葉雑草に広範囲にわたり効果がある. 日本では 1968 年に登録されたが, 1979 年に登録失効している¹⁾. 厚生労働省の定める食品における残留基準値は, 麦・穀類及び綿実で 0.1 ppm となっている²⁾. また, 諸外国の牧草類の基準値は 0.1 ppm である.

二臭化エチレン (Fig. 1. 以下「EDB」という.) は, 日本では 1956 年に登録された. ネコブセンチュウ等の土壌用殺線虫剤又は果実, 穀物等のくん蒸剤として国内でも広く利用されていたが, EDB の発がん性の疑いが認められたことから 1984 年くん蒸の使用が全面禁止となり, 1990 年に登録失効している³⁾. 国内での飼料中の基準⁴⁾は, 小麦が 0.1 ppm, とうもろこし, 大麦, マイロ, ライ麦及びえん麦で 0.01 ppm となっている. 現在, 石黒ら⁵⁾が開発した定量法 (以下「石黒法」という.) が飼料分析基準⁶⁾に記載されている. 石黒らはパックドカラムを用いたガスクロマトグラフィー (検出器: ECD) による定量を行っているが, キャピラリーカラムを使用した分析法の検討及び妥当性の確認が得られていない.

筆者らは, EPTC 及び EDB が共にディーン・スターク蒸留装置を用いた抽出が可能であることから, 平成 18 年度飼料中の有害物質等残留基準を設定するための分析法開発及び家畜等への移行調査委託事業において財団法人日本食品分析センターが開発した飼料中に残留する EPTC の定量法⁷⁾ (以下「分析センター法」という.) 及び石黒法を基に, EPTC 及び EDB の同時定量法を検討し, 良好な結果が得られたのでその概要を報告する.

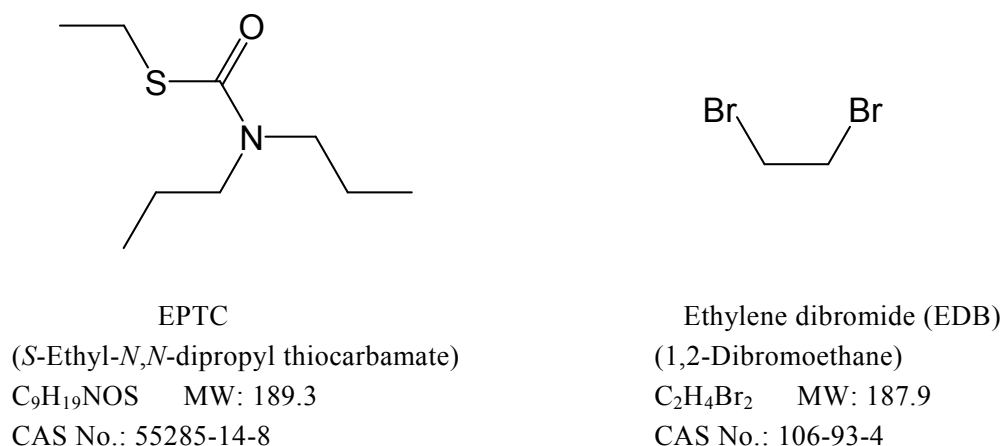


Fig. 1 Structure of EPTC and EDB

2 分析方法

2.1 試 料

市販の牛用配合飼料, 鶏用配合飼料, とうもろこし及びライ麦をそれぞれ 1 mm の網ふるいを通すまで粉碎して用いた. なお, 検討に用いた配合飼料の配合割合の一例を Table 1 に示した.

Table 1 Composition of formula feed used in this study

Kind of formula feed	Group of ingredients	Ratio (%)	Ingredients
For growing chick	Grains	59	Corn, Milo, Dehulled rice
	Oil meals	25	Soybean meal, Rapeseed meal, Corn gluten
	Brans	3	Corn gluten feed
	Animal by products	1	Fish meal
	Others	12	Animal fat, Calcium carbonate, Calcium phosphate, Salt, Feed additives
For finishing beef cattle	Grains	60	Corn, Wheat, Barley, Roast soybean
	Brans	32	Wheat bran, Hominy feed
	Oil meals	7	Soybean meal
	Others	1	Calcium carbonate, Salt, Feed additives

2.2 試薬

1) EPTC 標準原液

EPTC 標準品 (Dr. Ehrenstorfer 製, 純度 97%) 25 mg を正確に量って 50 mL の褐色全量フラスコに入れ, アセトンを加えて溶かし, 更に標線まで同溶媒を加えて EPTC 標準原液を調製した (この液 1 mL は, EPTC として 0.5 mg を含有する.) .

2) EDB 標準原液

EDB 標準品 (東京化成工業製, 純度 99%) 25 mg を正確に量って 50 mL の褐色全量フラスコに入れ, アセトンを加えて溶かし, 更に標線まで同溶媒を加えて EDB 標準原液を調製した (この液 1 mL は, EDB として 0.5 mg を含有する.) .

3) 混合標準液

使用に際して, EPTC 及び EDB 標準原液の一定量を混合した後, ヘキサンで正確に希釈し, 1 mL 中に EPTC 及び EDB としてそれぞれ 0.001, 0.005, 0.01, 0.02, 0.05, 0.1, 0.2 及び 0.5 µg を含有する各混合標準液を調製した.

4) アセトン, ヘキサンは残留農薬分析用試薬を用いた.

5) 消泡用シリコーン油は添加物用を用いた.

2.3 装置及び器具

1) ガスクロマトグラフ質量分析計: 島津製作所製 GCMS-QP2010

2) ディーン・スターク蒸留装置: 桐山製作所製

3) マントルヒーター: 大科電気製 1 L 丸底フラスコ用

4) 液相分離用ろ紙: 東洋濾紙製 ADVANTEC 2S (直径 90 mm)

2.4 定量方法

1) 抽出

分析試料 20.0 g を量って 1 L のディーン・スターク用蒸留フラスコに入れ, 水 400 mL を加えた後, ヘキサン 20 mL 及び消泡用シリコーン油約 0.2 mL を加えディーン・スターク蒸留装置に取り付け, ディーン・スターク蒸留装置及び連結する冷却管の冷却水温度を 5°C に設定し,

マントルヒーターで 60 分間加熱還流した。放冷後、蒸留トラップ内の水を捨てヘキサン層を液相分離用ろ紙で 20 mL の試験管にろ過し、ガスクロマトグラフ質量分析計による測定に供する試料溶液とした。

2) ガスクロマトグラフ質量分析計による測定

試料溶液及び各混合標準液各 2 μL をガスクロマトグラフ質量分析計に注入し、選択イオン検出 (SIM) クロマトグラムを得た。

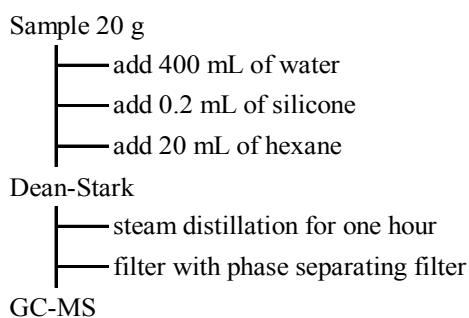
3) 計算

得られた SIM クロマトグラムからピーク面積を求めて検量線を作成し、試料中の EPTC 量及び EDB 量を算出した。

なお、GC-MS の測定条件を Table 2 に、定量法の概要を Scheme 1 に示した。

Table 2 Operating conditions for GC-MS

Column	DB-624 (0.32 mm i.d.×30 m, 1.8 μm film thickness)
Column temp.	50°C →10°C/min→180°C →30°C/min→250°C (10 min)
Injection mode	Splitless (60 s)
Injection temp.	250°C
Carrier gas	He 3.6 mL/min
Transferline temp.	280°C
Ion Source temp.	200°C
Ionization energy	70 eV
Monitor ion	EPTC: m/z 189 (quantitation), 128 (confirmation) EDB: m/z 109 (quantitation), 107 (confirmation)



Scheme 1 Analytical procedure for EPTC and EDB

3 結果及び考察

3.1 検量線

調製した 0.001, 0.005, 0.01, 0.02, 0.05, 0.1, 0.2 及び 0.5 $\mu\text{g/mL}$ の各混合標準液各 2 μL をガスクロマトグラフ質量分析計に注入し、得られた SIM クロマトグラムのピーク面積から検量線を作成した。

その結果、検量線は EPTC 及び EDB とともに 0.002~1.0 ng の範囲で原点を通る直線性を示した。

3.2 抽出条件の検討

抽出方法として、分析センター法及び石黒法ともにディーン・スターク蒸留装置を用いて抽出

を行っていることから本法においても当該装置を用いた抽出の検討を行った。

分析センター法では、分析試料 10.0 g を量って 1 L のディーン・スターク用蒸留フラスコに入れ、水 200 mL を加えた後、ヘキサン 10 mL 及び消泡用シリコーン油約 0.2 mL を加え、60 分間加熱還流することとしている。石黒法では、分析試料 50.0 g を量って 1 L のディーン・スターク用蒸留フラスコに入れ、水 400 mL を加えた後、ヘキサン 15 mL 及び消泡用シリコーン油 1 滴を加え、60 分間加熱還流することとしている。本法では、EPTC として 10 µg/kg 及び EDB として 5 µg/kg 相当量を添加したとうもろこしを用いて、分析センター法及び同法の条件を基に分析試料を 20.0 g、水を 400 mL、ヘキサンを 20 mL に変更した方法（以下「倍量法」という。）の回収試験を実施した。

その結果、Table 3 のとおり倍量法の方が良好な結果が得られたことから、本法では分析センター法の条件を基に分析試料を 20.0 g、水を 400 mL、ヘキサンを 20 mL に変更した条件を採用することとした。

Table 3 Recovery of EPTC and EDB spiked into corn

Spiked level (µg/kg)		Method of Japan Food Research Laboratories		This method	
		Recovery ^{a)}	RSD ^{b)}	Recovery ^{a)}	RSD ^{b)}
EPTC	10	87.3	(15)	97.0	(5.7)
EDB	5	88.7	(5.7)	94.0	(2.1)

a) Mean recovery ($n=3$)

b) Relative standard deviation of repeatability

3.3 冷却水温度の検討

ディーン・スターク蒸留装置及び冷却管に使用する冷却水温度について検討した。EPTC 及び EDB として 25 µg/kg 及び 10 µg/kg 相当量を添加した配合飼料（肉用牛肥育用）を用いて、冷却水温度を 5, 10, 15 及び 20°C に設定し、以下本法に従い回収試験を実施した。また、ヘキサンの捕集率についても調査した。その結果、Table 4 のとおり冷却水を 10°C 以上にした場合、ヘキサンは最初に加えた量を全量捕集出来なかった。これは加熱還流中にヘキサンが揮散したものと考えられた。また、EPTC 及び EDB の回収率については、EPTC は過回収、EDB は低回収となった。これは加熱還流中に EPTC はヘキサンの揮散により濃縮されたこと、EDB はヘキサンとともに揮散したことが原因と考えられた。冷却水温度を 10°C 以下に設定した場合、ヘキサンの捕集率及び回収率で良好な結果が得られたことから、本法では余裕を見て冷却水温度を 5°C とした。

Table 4 Recovery of hexane, EPTC and EDB for several coolant temperatures

Coolant temperature	Recovery rate of hexane ^{a)}	Recovery ^{a)} (%)	
		EPTC ^{b)}	EDB ^{b)}
20°C	85	111	91.4
15°C	95	111	89.3
10°C	100	104	99.1
5°C	100	106	98.0

a) $n=1$

b) Spiked level of 25 µg/kg for EPTC and 10 µg/kg for EDB

3.4 測定条件の検討

ガスクロマトグラフ質量分析計に使用するカラムについて検討を行った。分析センター法では EPTC の定量に J&W 製（現 Agilent Technologies 製）HP-5MS の微極性カラムを採用している。石黒法では J&W 製 DB-WAX 等の高極性カラムを使用することとしている。EPTC 及び EDB を同時定量するにあたり各々の特性を考慮し、本法では J&W 製 DB-1701（低/中極性カラム）と J&W 製 DB-624（中極性/揮発性汚染物質分析カラム）のカラムを用いて検討を行った。EPTC として 25 µg/kg 及び EDB として 10 µg/kg 相当量を添加したとうもろこしを用いて回収試験を実施した。DB-624 を用いた測定条件は本法による。DB-1701 を用いた場合の測定条件は Table 5 のとおりである。

Table 5 Operating conditions for GC-MS with DB-1701

Column	DB-1701 (0.25 mm i.d.×30 m, 0.25 µm film thickness)
Column temp.	50°C →10°C/min→180°C →30°C/min→250°C (10 min)
Injection mode	Splitless (60 s)
Injection temp.	250°C
Carrier gas	He 1.0 mL/min
Transferline temp	280°C
Ion Source temp.	200°C
Ionization energy	70 eV
Monitor ion	m/z 189, 128 (EPTC), 109, 107 (EDB)

その結果、Table 6 のとおり DB-1701 を用いた測定条件では、EPTC のピークときょう雑ピークが分離不十分（クロマトグラムは省略）のため回収率が過大に評価されていると考えられた。DB-624 を用いた測定条件では良好な結果が得られたことから、本法では DB-624 を使用した測定条件を採用することとした。

Table 6 Recovery of EPTC and EDB spiked into corn determined by two types of column (%)

Spiked level (µg/kg)	DB-1701		DB-624	
	Recovery ^{a)}	RSD ^{b)}	Recovery ^{a)}	RSD ^{b)}
EPTC 25	160	(18)	90.3	(10)
EDB 10	95.3	(2.2)	101	(4.0)

a) Mean recovery ($n=3$)

b) Relative standard deviation of repeatability

3.5 妨害物質の検討

配合飼料 6 種類（成鶏飼育用，幼すう育成用，子豚育成用，種豚育成用，乳用牛飼育用，肉用牛肥育用），穀類 6 種類（えん麦，大麦，小麦，マイロ，とうもろこし，ライ麦）及び乾牧草 2 種類（オーツヘイ及びチモシーヘイ）を用い，本法に従って選択イオン検出（SIM）クロマトグラムを作成したところ，EPTC 及び EDB の定量を妨害するピークは認められなかった。

3.6 添加回収試験

鶏用配合飼料，牛用配合飼料，とうもろこし及びライ麦に EPTC としてそれぞれ 25 及び 200 µg/kg，EDB としてそれぞれ 5 及び 200 µg/kg 相当量を添加した試料を用いて，本法に従って回収率及び分析精度を検討した．その結果は Table 7 のとおりであり，EPTC の平均回収率は 88.1~95.5%，その繰返し精度は相対標準偏差（RSD）として 11%以下であった．EDB については，平均回収率は 96.2~103%，その繰返し精度は RSD として 6.3%以下であった。

なお，添加回収試験で得られた SIM クロマトグラムの一例を Fig. 2 に示した。

Table 7 Recovery of EPTC and EDB spiked into four kinds of formula feed (%)

Spiked level (µg/kg)	Formula feed for growing chick		Formula feed for finishing beef cattle		Corn		Rye		
	Recovery ^{a)}	RSD ^{b)}	Recovery ^{a)}	RSD ^{b)}	Recovery ^{a)}	RSD ^{b)}	Recovery ^{a)}	RSD ^{b)}	
EPTC	25	91.9	(8.2)	88.5	(11)	95.5	(3.6)	93.1	(3.0)
	200	88.1	(11)	94.9	(6.5)	93.5	(8.0)	95.5	(6.4)
EDB	5	98.7	(1.2)	101	(4.1)	103	(6.3)	99.3	(3.1)
	200	96.2	(3.5)	101	(1.8)	99.3	(1.7)	98.2	(1.3)

a) Mean recovery ($n=3$)

b) Relative standard deviation of repeatability

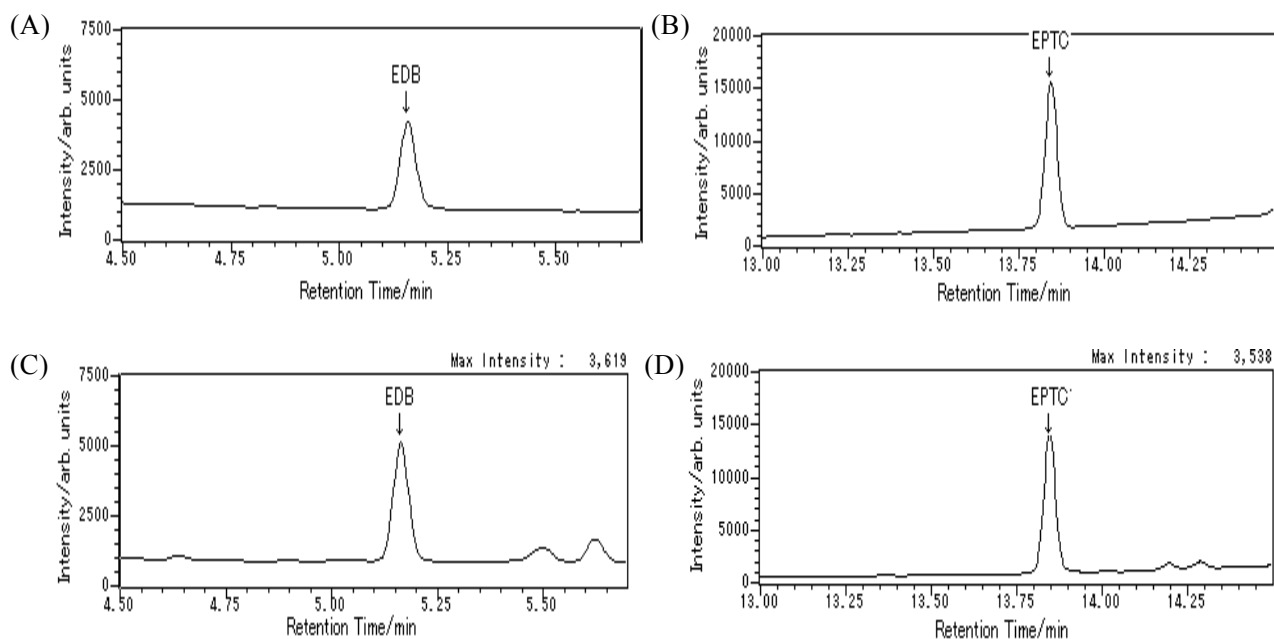


Fig. 2 GC-MS chromatograms of standard solution and sample solution

GC-MS conditions are shown in Table 2

(A) Standard solution (The amount of EDB is 0.02 ng)

(B) Standard solution (The amount of EPTC is 0.05 ng)

(C) Sample solution of spiked corn (spiked EDB at 10 µg/kg)

(D) Sample solution of spiked corn (spiked EPTC at 25 µg/kg)

3.7 定量下限及び検出下限

本法の定量下限を確認するために、牛用配合飼料に EPTC を、ライ麦に EDB をそれぞれ添加し、本法に従って分析を 3 回実施し、得られたピークの SN 比からそれぞれの定量下限及び検出下限を求めた。

牛用配合飼料に EPTC として 5 及び 10 µg/kg 相当量を添加した試料を用いて本法に従って 3 回実施した結果、SN 比が 10 となる濃度は 10 µg/kg であり、EPTC の定量下限は 10 µg/kg と考えられた。添加量 10 µg/kg における平均回収率は Table 8 のとおり 98.3%，繰返し精度は RSD として 6.1%であった。また、EPTC の検出下限は SN 比が 3 となる濃度から 3 µg/kg と見積もられた。

Table 8 Recovery of EPTC spiked into formula feed for beef (%)

Spiked level (µg/kg)	Formula feed for beef	
	Recovery ^{a)}	RSD ^{b)}
EPTC	5	(10)
	10	(6.1)

a) Mean recovery ($n=3$)

b) Relative standard deviation of repeatability

同様にライ麦に EDB として 1 及び 2 µg/kg 相当量を添加した試料を用いて本法に従って 3 回実施した結果、SN 比が 10 となる濃度は 2 µg/kg であり、EDB の定量下限は 2 µg/kg と考えられた。

添加量 2 $\mu\text{g}/\text{kg}$ における平均回収率は Table 9 のとおり 96.7%，繰返し精度は RSD として 3.0% であった。また，EDB の検出下限は SN 比が 3 となる濃度から 0.7 $\mu\text{g}/\text{kg}$ と見積もられた。

Table 9 Recovery of EDB spiked into rye (%)

Spiked level ($\mu\text{g}/\text{kg}$)	Rye	
	Recovery ^{a)}	RSD ^{b)}
EDB	1	117 (9.9)
	2	96.7 (3.0)

a) Mean recovery ($n=3$)

b) Relative standard deviation of repeatability

3.8 共同試験

本法の再現精度を調査するため，とうもろこし及び肉用牛肥育用配合飼料にそれぞれ EPTC として 40 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 相当量及び EDB として 10 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 相当量を添加した試料を用いて，アジレント・テクノロジー株式会社八王子事業所，財団法人日本食品分析センター多摩研究所，全国酪農業協同組合連合会分析センター，独立行政法人農林水産消費安全技術センター肥飼料安全検査部，同札幌センター，同名古屋センター，同神戸センター大阪事務所及び同福岡センターの 8 試験室において，本法に従って共同試験を実施した。

EPTC についての結果は Table 10 のとおりであり，とうもろこしでは，平均回収率は 109%，その室内繰返し精度及び室間再現精度はそれぞれ相対標準偏差 (RSD_r 及び RSD_R) として 6.1% 及び 7.7% であり，HorRat は 0.35 であった。

また，配合飼料では，平均回収率は 113%，その室内繰返し精度及び室間再現精度はそれぞれ RSD_r 及び RSD_R として 1.9% 及び 6.9% であり，HorRat は 0.31 であった。

EDB についての結果は Table 11 のとおりであり，とうもろこしでは，平均回収率は 106%，その室内繰返し精度及び室間再現精度はそれぞれ RSD_r 及び RSD_R として 5.8% 及び 14% であり，HorRat は 0.61 であった。

また，配合飼料では，平均回収率は 106%，その室内繰返し精度及び室間再現精度はそれぞれ RSD_r 及び RSD_R として 3.9% 及び 11% であり，HorRat は 0.51 であった。

参考のため，各試験室で使用したガスクロマトグラフ質量分析計の機種等を Table 12 に示した。

Table 10 Collaborative study results of EPTC

Lab. No.	(µg/kg)			
	Sample			
	Corn		Formula feed	
1	41.1	41.0	41.0	43.1
2	45.3	39.4	42.3	43.7
3	41.0	46.4	47.5	47.4
4	47.9	47.8	47.7	47.5
5	42.7	47.6	47.3	46.2
6	43.4	39.4	43.5	43.2
7	46.6	48.1	48.7	49.6
8	42.1	39.5	40.1	42.0
Spiked value	40.0		40.0	
Mean value ^{a)}	43.7		45.1	
Recovery (%)	109		113	
RSD _r ^{b)} (%)	6.1		1.9	
RSD _R ^{c)} (%)	7.7		6.9	
HorRat	0.35		0.31	

a) $n=16$

b) Repeatability relative standard deviation within same laboratory

c) Reproducibility relative standard deviation

Table 11 Collaborative study results of EDB

Lab. No.	(µg/kg)			
	Sample			
	Corn		Formula feed	
1	10.9	9.04	10.7	9.61
2	10.2	11.5	10.8	10.5
3	10.3	10.4	10.4	10.4
4	13.8	13.8	13.1	13.4
5	9.06	9.72	9.22	9.67
6	10.3	10.5	10.5	9.67
7	10.1	10.3	10.6	10.2
8	9.56	10.1	10.5	9.90
Spiked value	10.0		10.0	
Mean value ^{a)}	10.6		10.6	
Recovery (%)	106		106	
RSD _r ^{b)} (%)	5.8		3.9	
RSD _R ^{c)} (%)	14		11	
HorRat	0.61		0.51	

a) $n=16$

b) Repeatability relative standard deviation within same laboratory

c) Reproducibility relative standard deviation

Table 12 Instruments used in the collaborative study

Lab. No.	GC-MS	GC column (i.d.×length, film thickness)
1	Thermo ELECTRON CORPORATION FOCUS-Polaris Q GC/MS Benchtop Ion Trap Mass Spectrometer	Agilent Technologies DB-624 (0.32 mm i.d.×30 m, 1.8 µm)
2	GC: Agilent Technologies 6890 MS: Agilent Technologies 5973N	Agilent Technologies DB-624 (0.32 mm i.d.×30 m, 1.8 µm)
3	GC: Agilent Technologies 6890N MS: Agilent Technologies 5975B	Agilent Technologies DB-624 (0.32 mm i.d.×30 m, 1.8 µm)
4	GC: Agilent Technologies 7890 GC MS: Agilent Technologies 5975C MSD	Agilent Technologies DB-624 (0.32 mm i.d.×30 m, 1.8 µm)
5	Shimadzu GCMS-Q2010	Agilent Technologies DB-624 (0.32 mm i.d.×30 m, 1.8 µm)
6	Shimadzu GCMS-Q2010	Agilent Technologies DB-624 (0.32 mm i.d.×30 m, 1.8 µm)
7	Shimadzu GCMS-Q2010 Plus	Agilent Technologies DB-624 (0.32 mm i.d.×30 m, 1.8 µm)
8	Shimadzu GCMS-Q2010	Agilent Technologies DB-624 (0.32 mm i.d.×30 m, 1.8 µm)

4 まとめ

ガスクロマトグラフ質量分析計を用いた飼料中の EPTC 及び EDB の同時定量法について検討したところ、次の結果を得た。

- 1) ディーン・スターク蒸留装置による抽出条件で分析試料を 20.0 g, 水を 400 mL, ヘキサンを 20 mL にすることにより良好な結果を得た。
- 2) ディーン・スターク蒸留装置及び冷却管に使用する冷却水の温度を 5°C に設定することで良好な結果を得た。
- 3) ガスクロマトグラフ質量分析計に使用するカラムを DB-624 にした測定条件で良好な結果を得た。
- 4) EPTC 及び EDB の標準液の検量線は 0.002~1.0 ng の範囲で原点を通る直線性を示した。
- 5) 2 種類の配合飼料及び 2 種類の穀類に EPTC として 25 及び 200 µg/kg 相当量を添加し、添加回収試験を実施した結果、平均回収率は 88.1~95.5% であり、繰返し精度は相対標準偏差 (RSD) として 11% 以下であった。また、同様に EDB として 5 及び 200 µg/kg 相当量を添加し、添加回収試験を実施した結果、平均回収率は 96.2~103% であり、繰返し精度は RSD として 6.3% 以下であった。
- 6) 本法による EPTC の定量下限は 10 µg/kg, 検出下限は 3 µg/kg と考えられた。また、EDB の定量下限は 2 µg/kg, 検出下限は 0.7 µg/kg と考えられた。
- 7) とうもろこし及び配合飼料 (肉用牛肥育用) に EPTC 及び EDB としてそれぞれ 40 µg/kg 及び 10 µg/kg 相当量を添加した共通試料を用いて、8 試験室において本法に従って共同分析を実施した。

その結果、とうもろこしの EPTC の平均回収率は 109%, その室内繰返し精度及び室間再現精度はそれぞれ相対標準偏差 (RSD_i 及び RSD_R) として 6.1% 及び 7.7% であり、HorRat は 0.35 であ

った。EDB の平均回収率は 106%，その室内繰返し精度及び室間再現精度はそれぞれ相対標準偏差 (RSD_I 及び RSD_R) として 5.8% 及び 14% であり，HorRat は 0.61 であった。

また，配合飼料の EPTC の平均回収率は 113%，その室内繰返し精度及び室間再現精度はそれぞれ相対標準偏差 (RSD_I 及び RSD_R) として 1.9% 及び 6.9% であり，HorRat は 0.31 であった。EDB の平均回収率は 106%，その室内繰返し精度及び室間再現精度はそれぞれ相対標準偏差 (RSD_I 及び RSD_R) として 3.9% 及び 11% であり，HorRat は 0.51 であった。

謝 辞

共同試験にご協力いただいた，アジレント・テクノロジー株式会社，財団法人日本食品分析センター及び全国酪農業協同組合連合会の試験室の各位に感謝の意を表します。

文 献

- 1) 財団法人日本植物防疫協会，農薬ハンドブック 1988 年度版編集委員会編集：農薬ハンドブック 1988 年度版 (1988).
- 2) 厚生省告示：“食品，添加物等の規格基準”，昭和 34 年 12 月 28 日，厚生省告示第 370 号 (1959).
- 3) 武藤聡雄，株式会社技報堂：農薬概説 (1970).
- 4) 農林省令：“飼料及び飼料添加物の成分規格等に関する省令”，昭和 51 年 7 月 24 日，農林省令第 35 号 (1976).
- 5) 石黒瑛一：飼料研究報告，11，1 (1986).
- 6) 農林水産省消費・安全局長通知：“飼料分析基準の制定について”，平成 20 年 4 月 1 日，19 消安第 14729 号 (2008).
- 7) 財団法人日本食品分析センター：平成 18 年度飼料中の有害物質等残留基準を設定するための分析法開発及び家畜等への移行調査委託事業 飼料中の有害物質等の分析法の開発 (2007).