

[ノート]

## 輸入水産食品中の使用禁止抗菌剤，マラカイトグリーン の LC/TOF-MS による分析法の検討

服部 涼子\* 後藤 操 赤松 成基 吉岡 直樹 川元 達彦 稲田 忠明

Studies on the determination of Malachite green, a forbiddance antimicrobial agent in imported aquatic foods by using LC/TOF-MS

Ryoko HATTORI\*, Misao GOTOU, Shigeki AKAMATSU, Naoki YOSHIOKA,  
Tatsuhiko KAWAMOTO and Tadaaki INADA

*Life Science Division, Public Health Science Research Center, Hyogo Prefectural Institute of Public Health and Consumer Sciences, 2-1-29, Arata-cho, Hyogo-ku, Kobe 652-0032, Japan*

In order to measure the residues of malachite green (MG) and its metabolites leucomalachite green (LMG) in aquatic foods, we have studied the determination by applying a d-SPE (dispersive solid phase extraction) used in QuEChERS methods using liquid chromatography time-of-flight mass spectrometry (LC-TOF/MS). MG and LMG were extracted and dehydrated by citrate-phosphate buffer (pH3.0), acetonitrile, anhydrous magnesium sulfate, and sodium chloride under shaded conditions. The extracts were cleaned up by the d-SPE containing PAS and anhydrous magnesium sulfate, and then, purified by strongly acidic cation exchange (SCX) solid columns. We evaluated the analytical values corrected by stable isotope labeling, MG-d<sub>5</sub> and LMG-d<sub>5</sub> (surrogates). Compared with the official method, the sample preparation was quicker and simpler. In addition, there was no need to use dichloromethane concerned about its residues in environment and hexane cause of low recovery rate. The limits of quantification by this method were 0.002~0.006µg/g for MG, 0.002~0.004µg/g for LMG. This result showed that the method is suitable for the detection of low concentration levels of these analytes. The recovery rate corrected by surrogates, the variation coefficient, and the recovery rate of surrogates generally conformed to the guideline of the Japanese Ministry of Health, Labour and Welfare.

### I はじめに

#### 1. 実験目的

マラカイトグリーン（以下、MG とする。）は工業用合成色素であり、繊維や皮製品の染料として用いられている。また、MG は還元性を有し、抗菌活性があるため、観賞魚の白癬症等の治療薬としても使用されている。しか

し、発がん性を有する<sup>1)</sup> ことから、日本では全ての養殖水産動物への使用が禁止されており、食品衛生法の規格基準<sup>2)</sup> において「不検出」となっている。平成17年に中国産のうなぎ蒲焼で基準値超過が発生して以降、違反が相次いでおり、違反発生時には早急に対応ができる迅速な検査体制が求められている。

#### 2. MGおよびその代謝物の安定性

MGおよびその代謝物である<sup>3)</sup> ロイコマラカイトグリーン（以下、LMGとする。）は、厚生労働省告示<sup>2)</sup>（以下、公定法とする。）において同時分析法が示されている。しかし、MGは光分解性を有し、不安定な性質があるため、ともに安定して回収率が得ることができないことがある。

---

健康科学部

\*別刷請求先: 〒652-0032 神戸市兵庫区荒田町 2-1-29  
兵庫県立健康生活科学研究所 健康科学研究センター  
健康科学部 服部 涼子

このため、安定同位体元素標識（以下、サロゲートとする。）で補正する方法が通知<sup>4)</sup>されているが、サロゲートの回収率も妥当性評価ガイドライン<sup>5)</sup>の目標値である40%を下回る場合が報告されている<sup>6-8)</sup>。

### 3. 現在の公定法の問題点

公定法は、クエン酸・リン酸緩衝液（pH 3.0）およびアセトニトリルによる抽出を2回行い、ヘキサンによる2回の液液抽出による脱脂後、ジクロロメタンに転溶し、飽和塩化ナトリウム水溶液による液液分配および無水硫酸ナトリウムの添加により脱水を行う。続いて、強酸性陽イオン交換体ミニカラム（以下、SCXとする。）による精製の後に減圧濃縮を行い、アセトニトリルに転溶し、試験溶液とする工程となっている。このように、公定法は前処理の工程数が多く、煩雑であることから、回収率の低下を引き起こしているものと考えられる。さらに、公定法の脱脂工程においてLMGのヘキサンへの移行によるLMGの回収率低下が確認されている<sup>9)</sup>。

### 4. 公定法の改良に関するこれまでの報文

これまでに脱脂の代替法としてC<sub>18</sub>ミニカラムによる精製<sup>6, 9)</sup>、凍結処理による除去<sup>7)</sup>、アルミナ中性ミニカラムによる精製<sup>8)</sup>などが報告されている。また、MG分析法として、操作が簡便で迅速であることから農薬の残留分析において普及している、QuEChERS法による方法<sup>10, 11)</sup>が報告されている。

### 5. 本法の特徴

本報では、安定した回収率を得ることを目的として、これまでの報告<sup>7-11)</sup>をもとにより簡便かつ迅速な前処理法を確立した。また、複数の水産食品へ適用性を検討したので報告する。

## II 材料と方法

### 1. 試料

試料には、市販品のうなぎ蒲焼、うなぎ白焼、さけおよびブラックタイガーを用いた。

### 2. 標準品

MG 標準品は和光純薬工業(株)製 MG シュウ酸塩（純度 98%）、MG-d<sub>5</sub> 標準品は和光純薬工業(株)製 MG-d<sub>5</sub> シュウ酸塩（純度 98%）、LMG 標準品は Dr. Ehrenstorfer GmbH 社製 LMG、LMG-d<sub>5</sub> 標準品は和光純薬工業（株）製 LMG-d<sub>5</sub> を用いた。各構造式を Fig.1 に示す。

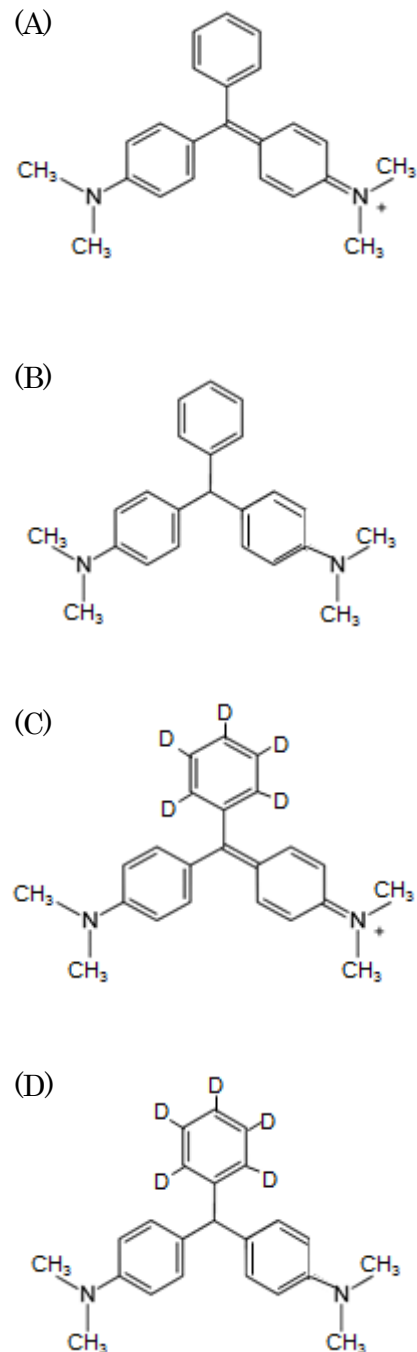


Fig.1 Chemical structures of MG (A), LMG (B), MG-d<sub>5</sub> (C) and LMG-d<sub>5</sub>(D)

### 3. 標準溶液の調製

MG, LMG, MG-d<sub>5</sub>, LMG-d<sub>5</sub>, 各 10 mg を精密に量り、メタノールに溶かして全量を 100 mL とし、それぞれ 100 µg/mL の標準原液を調製した。MG および MG-d<sub>5</sub> 標準原液は 0.2 %ギ酸-アセトニトリル溶液、LMG および LMG-d<sub>5</sub> 標準原液はアセトニトリルで希釈し、MG および LMG は 2 µg/mL、MG-d<sub>5</sub> および LMG-d<sub>5</sub> は 2.5 µg/mL のものを調製した。試験ごとに用時混合し、MG・LMG 混合標準溶液（1 µg/mL）、MG-d<sub>5</sub>・LMG-d<sub>5</sub> 混合標準溶

液 (1.25 µg/mL, d<sub>5</sub> 混合標準) をそれぞれ調製した。次に, MG・LMG 混合標準溶液および d<sub>5</sub> 混合標準をそれぞれアセトニトリルで希釈後, 添加回収試験用混合標準溶液 (MG・LMG 各 0.02 µg/mL), d<sub>5</sub> 混合内部標準溶液 (MG-d<sub>5</sub>・LMG-d<sub>5</sub> 各 0.25 µg/mL) および高速液体クロマトグラフ用混合標準溶液 (MG・LMG 各 0.0004 µg/mL, MG-d<sub>5</sub>・LMG-d<sub>5</sub> 各 0.005 µg/mL) を調製した。

#### 4. 試薬

アンモニア水は, 和光純薬工業(株)製の特級 28 % アンモニア水を用いた。ギ酸アンモニウム, クエン酸一水和物, リン酸二ナトリウム十二水和物, リン酸, 塩化ナトリウム, 無水硫酸マグネシウムは, 和光純薬工業(株)製の試薬特級品を用いた。アセトニトリルおよびメタノールは和光純薬工業(株)製の HPLC 用を用いた。

#### 5. 試液溶液および器具の調整

移動相に用いるギ酸アンモニウム溶液(pH 3.0)は, ギ酸アンモニウムを精製水で溶解して 10 mM となるように調製し, ギ酸にて pH を 3.0 に調整した。

試料からの, MG および LMG の抽出に用いるクエン酸・リン酸緩衝液 (pH 3.0) は, 以下の方法により調製した。クエン酸一水和物 63.0 g を精製水に溶解して全量を 1,000 mL とした液と, リン酸二ナトリウム十二水和物 215 g を精製水に溶かして 1,000 mL とした溶液の等量を混合し, リン酸にて pH を 3.0 に調整した。

分散型固相は, 15 mL ポリプロピレン製遠心管に, 脱水剤である無水硫酸マグネシウム 900 mg, バイオタージ・ジャパン (株) 製 ISOLUTE C<sub>18</sub> (EC) および ISOLUTE PSA を所定の重量で充填した。非極性夾雑物の除去効果を有する SCX には, アジレントテクノロジー (株) 製 Bond Elut SCX (500 mg) をアセトニトリル 5 mL でコンディショニングしたものを用いた。

#### 6. 装置

LC/TOF-MS 装置: アジレントテクノロジー (株) 製 Agilent 1200LC+6210 MSD-TOF

ホモジナイザー: イカジャパン(株)製 ULTRA TURRAX T25 digital

遠心分離器: 久保田商事(株)製 KUBOTA8700

フードプロセッサー: 松下電器産業 (株) 製 National MK-K58

#### 7. 分析条件

##### 7.1 LC 条件

分析カラム: (株) 資生堂製 CAPCELL PAK C<sub>18</sub> MGIII (2.0 mm×150 mm, 5 µm), ガードカラム: (株) 資生堂製 MGIIIカートリッジ (2.0 mm×10 mm, 5 µm), 移動相 A: アセトニトリル, 移動相 B: 10mM ギ酸アンモニウム溶液(pH 3.0), グラジエント条件: B 液; 90% (0 min) →90% (20 min) →10% (20.1 min) →10 % (25 min), 流速: 0.25 mL/min, 注入量: 10 µL, カラム温度: 40 °C, サンプルクーラー温度: 15 °C

##### 7.2 MS 条件

ネブライザーガス: 35 psi, 乾燥ガス: 11 L/min (350 °C), イオン化法およびキャピラリー電圧: ESI (Positive, 4000 V), フラグメンター電圧: 100 V および 300 V, リファレンスマス: *m/z* 121.0509, 922.0098, スキャン範囲: *m/z* 50-950, MG, LMG, MG-d<sub>5</sub>, LMG-d<sub>5</sub> の定量イオンおよび確認イオンは Table 1 に示す精密質量とした。

#### 8. 試験溶液の調製

各試料はフードプロセッサーで約 3 分間細切後, 均一化した。うなぎ蒲焼は, あらかじめ検体からタレを除去した後, 同様に処理した。試料 2.0 g に厚生労働省医薬食品安全部基準審査課長通知<sup>4)</sup>に従い, d<sub>5</sub> 混合内部標準溶液を用いて内部標準物質として MG-d<sub>5</sub> および LMG-d<sub>5</sub> が 0.025 µg/g となるように添加し, 50 mL ポリプロピレン製遠心管に分取した。さらにクエン酸・リン酸緩衝液(pH 3.0)を 4 mL 加え, 約 1 分間磨砕した。次にアセト

Table 1 LC-TOF/MS parameters

Analyte	R.T. <sup>a)</sup> (min.)	Target			Qualifier		
		Monitor ion (m/z)		Frag. <sup>b)</sup>	Monitor ion (m/z)		Frag.
MG	9.29	[M] <sup>+</sup>	329.2012	300V	[M-CH <sub>4</sub> ] <sup>+</sup>	313.1699	300V
MG-d <sub>5</sub>	9.28	[M] <sup>+</sup>	334.2324	100V	[M-CH <sub>4</sub> ] <sup>+</sup>	318.2013	300V
LMG	13.24	[M+H] <sup>+</sup>	331.2169	100V	[M+H-CH <sub>3</sub> ] <sup>+</sup>	316.1934	300V
LMG-d <sub>5</sub>	13.19	[M+H] <sup>+</sup>	336.2483	100V	[M+H-CH <sub>3</sub> ] <sup>+</sup>	321.2248	300V

a) R.T.: Retention Time

b) Frag.: Fragmenter voltage

ニトリルを 10 mL 加えた後、同様に磨砕した。さらに無水硫酸マグネシウム 4 g および塩化ナトリウム 1 g を添加し、手動により 1 分間攪拌後、3,000 rpm で 5 分間遠心分離した。アセトニトリル層を無水硫酸マグネシウム、C<sub>18</sub> および PSA を入れた 15 mL ポリプロピレン製遠心管（分散型固相）へ移した後、20 秒間手動により攪拌し、3,000 rpm で 1 分間遠心分離した。上澄液を全量 Bond Elut SCX ミニカラムに負荷した。アセトニトリル 10 mL を加えて分散型固相を洗浄し、上記と同様に操作した。この上澄液を全量 Bond Elut SCX ミニカラムに負荷し、再度この操作を行った。SCX ミニカラムを 5 mL のアセトニトリルで洗浄後、目的成分を 10 mL メスフラスコを用いて、アセトニトリル-アンモニア水(9:1)溶液により溶出および定容したものを測定用試験溶液とした。なお、全ての操作は直接太陽光や照明が当たらない程度に、遮光下で実施した。

### 9. 添加回収試験

添加回収試験用混合標準溶液を用いて MG および LMG は 0.002 µg/g, MG-d<sub>5</sub> および LMG-d<sub>5</sub> は前述のとおり通知<sup>4)</sup>に従い、d<sub>5</sub> 混合内部標準溶液を用いて 0.025 µg/g となるように添加した試料を用いた。さらに前項の試験溶液の調製と同様に操作を行い、添加回収測定用の試験溶液を調製した

## III 結果および考察

### 1. MG の保存条件の検討

MG 標準溶液をアセトニトリルにより希釈した場合、遮光下において 2 µg/mL 標準溶液で MG 成分が 3 日～1 週間で分解することがあった。このことから、酸性条件にすることで MG が安定化したとする千葉らの報告<sup>9)</sup>を参考に、MG の標準溶液の希釈には、0.2 %ギ酸-アセトニトリル溶液を用いた。この結果、2 µg/mL 標準溶液において溶液成分の分解は抑えられ、約 1 か月間の保存が可能であった。

MG の光分解性を確認するために、褐色バイアルに 0.1 ppm および 0.01 ppm の MG 標準溶液を分注後、室温にて非遮光下で 3 時間放置したところ、それぞれ濃度が約 50%と約 80%に減少した。一方、室温において遮光下では、光分解は抑制されたことから、前処理操作は室温にて遮光下で行うこととした。

### 2. 前処理操作における条件検討

#### 2.1 抽出工程

クエン酸リン酸緩衝液 (pH 3.0) とアセトニトリルとともに磨砕した後に、無水硫酸マグネシウムと塩化ナトリウムを添加し、攪拌する方法<sup>7,8)</sup>を用いた。試料の採取量と抽出溶媒量の最適化を目的として、試料にさけを用い、クエン酸・リン酸緩衝液 (pH3.0) は 4mL で一定とし、重量を 10 g, 5 g, 2 g, 抽出溶媒であるアセトニトリルを 20mL, 10mL, 5mL として MG および LMG の回収率を比較した。MG は、試料組織に強く結合しており、酸性条件にすることで組織が変性し、MG が解離する。続いて、アセトニトリルの添加により、脂質と疎水結合する非極性の LMG ととも抽出溶媒層に移行するとされている<sup>12)</sup>。このことから、試料全体にクエン酸・リン酸緩衝液 (pH3.0) およびアセトニトリルが作用することが必要と考えられる。この要件を満たし、絶対検量線で定量した場合の MG および LMG の回収率、アセトニトリル層の回収量が比較的良好であったことから、試料 2g, アセトニトリル 10mL とした。本抽出法では、攪拌、遠心分離後、アセトニトリル層、油層および水層を明瞭に分離することが出来た。このため、公定法と比較してアセトニトリル層の分取が容易であった。また、同時に脱水が可能であるため、各操作が迅速となった。さらに、試験者への健康影響および廃液時の環境への配慮が必要なジクロロメタンの使用が不要となった。

#### 2.2 脱脂工程

精製に使用する分散型固相に用いる充填剤のうち、無水硫酸マグネシウムは 900 mg で一定とし、PSA / C<sub>18</sub> の重量割合の最適化を行った。すなわち (300 mg / 0 mg) , (200 mg / 100 mg) , (150 mg / 150 mg) , (100 mg / 200 mg) , (0 mg / 300 mg) の 5 種類の組み合わせで充

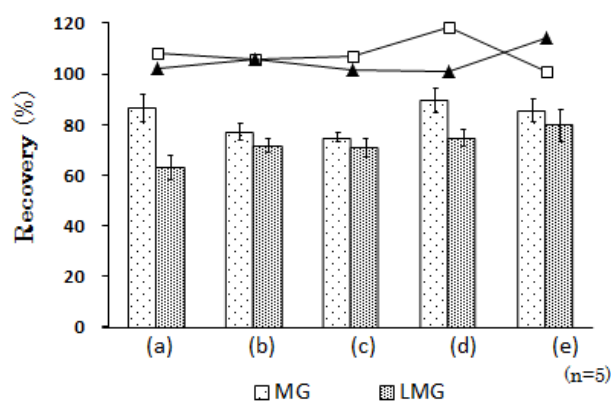


Fig. 2 Effects of weight composition ratios between PSA and C<sub>18</sub> (n=5)

□: correction values of MG by MG-d<sub>5</sub>, ▲: correction values of LMG by LMG-d<sub>5</sub>, PSA/C<sub>18</sub> (0 mg:300 mg) (a), PSA/C<sub>18</sub> (100 mg:200 mg) (b), PSA/C<sub>18</sub> (150 mg:150 mg) (c), PSA/C<sub>18</sub> (200 mg:100 mg) (d), PSA/C<sub>18</sub> (300 mg:0 mg) (e)

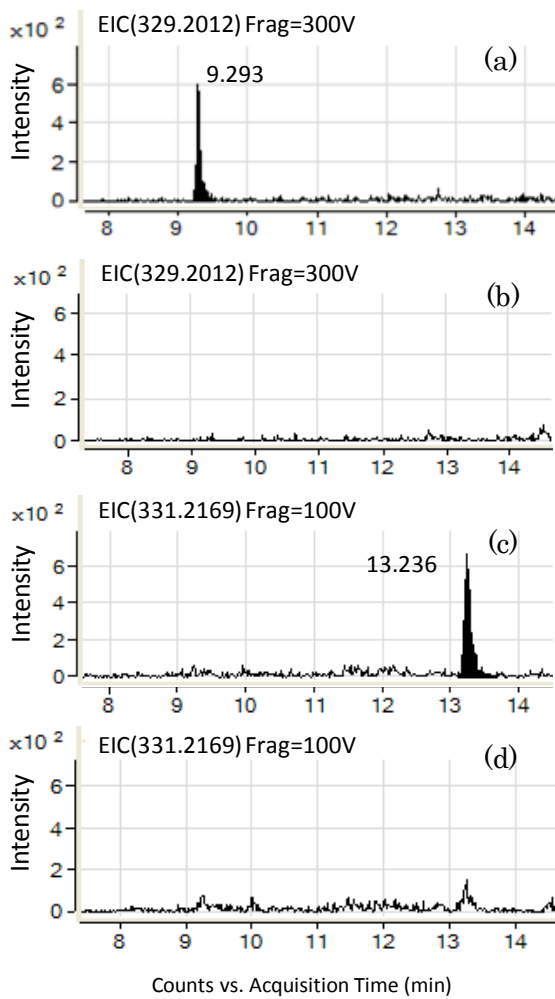


Fig.3 Chromatograms of extract of MG standard solution (0.0004 $\mu$ g/mL) (a), extract of MG blank solution of giant tiger prawns (b), extract of LMG standard solution (0.0004 $\mu$ g/mL) (c), extract of LMG blank solution of giant tiger prawns (d)

填した各固相を用いた。さけの抽出液を添加試料とし、各条件における MG および LMG の添加回収率 ( $n=5$ ) を比較した。その結果を Fig.2 に示す。MG は絶対検量線で求めた平均回収率が 74.4~91.1%であった。LMG は平均回収率が 65.6~81.1%であり、MG に比べて低く、PSA/ C<sub>18</sub> (300 mg/0mg) の場合で最も高い値を示した。LMG の回収率が低い原因として、C<sub>18</sub> への吸着が推測されたため、分散型固相は PSA/ C<sub>18</sub> (300 mg/0 mg) とした。なお、この検討においては、試験溶液を作製するにあたり、減圧濃縮操作を実施した。脱脂方法の変更により、LMG の移行による回収率低下の一因されるヘキサンが不要となり、全工程を通じて使用有機溶媒をアセトニトリルのみとすることができた。

以上の条件による前処理操作に加えて、減圧工程を省略したところ、本法による前処理所要時間が公定法の約 1/2 に短縮した。

### 3. LC/TOF-MS 分析パラメータ

LC-TOF/MS の分析において用いた分析パラメータを Table 1 に示す。フラグメンター電圧は、各イオンについて妨害ピークおよびベースラインノイズが比較的少なく、最も S/N 比が高く得られる条件とした。MG および LMG の選択イオンクロマトグラムと MS スペクトルを Fig. 3 および Fig. 4 に示す。各モニターイオンの抽出では、より選択性の高いピークを得るために  $m/z$  (質量電荷比) を幅 $\pm 0.001$  とした。

### 4. 添加回収試験

うなぎ蒲焼, うなぎ白焼, さけ, ブラックタイガーの

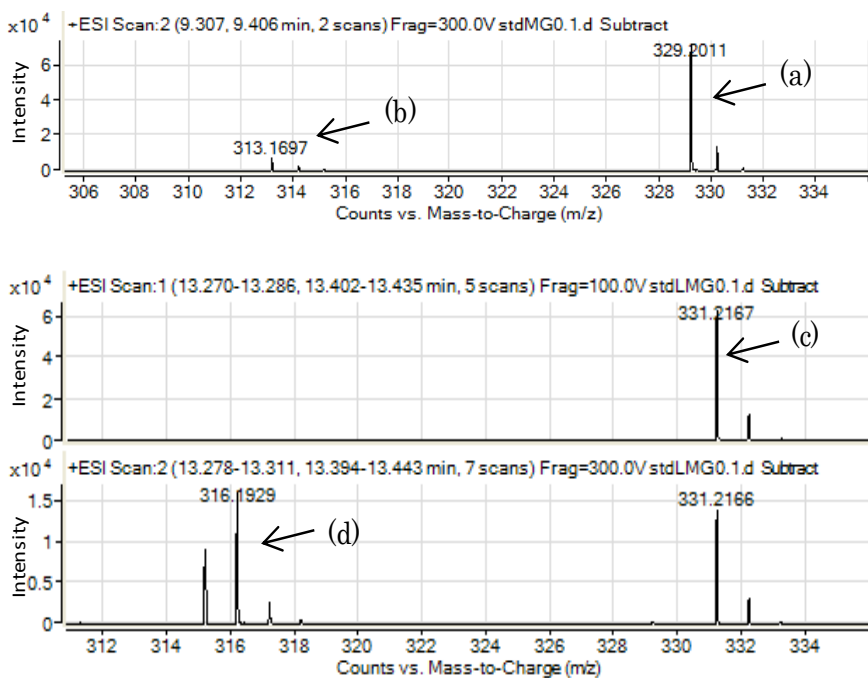


Fig.4 Mass spectra of MG and LMG

standard solution (0.1  $\mu$ g/mL) target ion for MG (a), qualifier ion for MG (b), target ion for LMG (c), qualifier ion for LMG (d)

Table 2 Recoveries, LOQ and LOD of MG, LMG

Samples	fortified concentration ( $\mu\text{g/g}$ ) <sup>a)</sup>	MG			LMG		
		mean recovery (%) <sup>b)</sup>	LOQ <sup>c)</sup> ( $\mu\text{g/g}$ )	LOD <sup>d)</sup> ( $\mu\text{g/g}$ )	mean recovery (%) <sup>b)</sup>	LOQ <sup>c)</sup> ( $\mu\text{g/g}$ )	LOD <sup>d)</sup> ( $\mu\text{g/g}$ )
spitchcocked eels	0.002	112.6 (6.9)	0.0048	0.0014	91.3 (20.9)	0.0016	0.0005
broiled eels		100.1 (12.4)	0.0058	0.0021	100.2 (13.7)	0.0026	0.0009
salmon		98.5 (2.3)	0.0018	0.0005	90.6 (26.6)	0.0034	0.0010
giant tiger prawn		105.6 (15.5)	0.0015	0.0004	82.0 (17.9)	0.0019	0.0006

a) 200  $\mu\text{l}$  of standard solution (0.02  $\mu\text{g/mL}$ ) was added to 2 g sample

b) correction value by surrogate, ( ): CV%, n=3

c) LOD: Limits of Detection defined by S/N $\geq$ 3

d) LOQ: Limits of Quantification defined by S/N $\geq$ 10

Table 3 Recoveries of MG-d<sub>5</sub>, LMG-d<sub>5</sub>

Samples	fortified concentration ( $\mu\text{g/g}$ ) <sup>a)</sup>	mean recovery(%) <sup>b)</sup>	
		MG-d <sub>5</sub>	LMG-d <sub>5</sub>
spitchcocked eels	0.025	83.3 (10.9)	67.6 (8.7)
broiled eels		61.5 (17.6)	56.5 (17.2)
salmon		86.0 (4.0)	56.5 (10.6)
giant tiger prawn		88.3 (12.6)	59.4 (6.0)

a) 200  $\mu\text{l}$  of standard solution (0.25  $\mu\text{g/mL}$ ) was added to 2 g sample

b) ( ): CV%, n=3

各ブランク試料について、MG および LMG の添加回収試験を行った。サロゲートで補正した平均回収率、変動係数 (CV) , 試料ごとの定量下限値および検出限界値を Table 2 に示す。平均回収率について、MG は 98.5~112.6 % , LMG は 82.0~100.2 % の範囲であり、良好な値であった。また、MG-d<sub>5</sub> および LMG-d<sub>5</sub> の平均回収率は、それぞれ 61.5~88.3 % , 56.5~67.6 % (Table 3) の範囲で、全て目標値である 40 % 以上であった。MG は全ての試料で、平均回収率および CV は妥当性評価ガイドラインの目標値に適合したが、さけの LMG の回収率 (n=3) (平均値 90.6, Table 2 参照) は、各値がそれぞれ 101.6 % , 57.2 % , 113.1 % であり、CV が 26.6 % となった。このばらつきの原因として、LMG および LMG-d<sub>5</sub> が同じ挙動を示さない場合があることが報告<sup>6)</sup>されており、本法においても LMG および LMG-d<sub>5</sub> が脂質へ移行<sup>12)</sup> したことによる減少や、前処理過程における分解などにより、LMG および LMG-d<sub>5</sub> の各回収率が一致しなかったため、補正値が低値 (57.2 %) を示したことが推測された。

## 5. 定量下限値

本法による MG および LMG の定量下限値および検出限界値を Table 2 に示す。ブラックタイガーにおける MG および LMG の定量下限値は、それぞれ 0.001  $\mu\text{g/g}$  と 0.002  $\mu\text{g/g}$  であり、通知<sup>13)</sup> に示されている値 (MG, LMG とともに 0.002  $\mu\text{g/g}$ ) より低濃度での検出が可能であった。他の試料については、MG は 0.0018~0.0058  $\mu\text{g/g}$  , LMG は 0.0016~0.0034  $\mu\text{g/g}$  であった。本法において適用した QuEChERS 法<sup>14)</sup> は精製が平易であるが、試料によっては夾雑物が完全に除去されず、クロマトグラムにおいて妨害ピークが生じる可能性がある。今回、精密質量を検出し、高い選択性を有する LC/TOF-MS による測定を行ったところ、低濃度レベルでの検出が可能であることが明らかとなった。

ブラックタイガー以外で、MG および LMG の定量下限値 (0.002  $\mu\text{g/g}$ ) より高い値を示した試料のうち、うなぎ蒲焼およびうなぎ白焼では、MG のピークに対する試料由来と考えられる妨害ピークが、フラグメンター電圧を 100 V とすると消失したため、定量イオンのフラグメンター電圧を 100 V としてさらなる条件の検討が必要と考えられた。また、うなぎ蒲焼、うなぎ白焼およびさけの LMG については、ベースラインノイズが S/N 比の低



下の原因であったため、ノイズを低減化し、ピーク検出を増幅させるために、試料中の標準物質を増加させるための試料調製の最適化が必要であると推測された。

#### IV 結論

MG の公定法において、QuEChERS 法<sup>14)</sup>による方法を適用した迅速かつ簡便な分析法を開発した。また、高速液体クロマトグラフィー/飛行時間型質量分析装置(以下、LC/TOF-MS とする。)による分析条件の検討を行い、複数の水産食品に適用した結果、MG および LMG ともサロゲートで補正した平均回収率は全て 80%以上であり、良好な値であった。サロゲートの回収率も妥当性評価ガイドラインの目標値を満たした。さらに、LC/TOF-MS を用いて低濃度レベルにおける検出が可能であることが明らかとなった。

一方、ブラックタイガー以外の試料の定量下限値は、通知に示す 0.002µg/g より高い値を示したため、今後はさらなる分析条件の検討を行い、行政検査に資することを目的に、迅速かつ高感度な分析法の開発を進めていくこととしている。

#### 文献

- 1) 内閣府食品安全委員長通知：MG および LMG の食品健康影響評価について。別添、平成 17 年 11 月 24 日、府食第 1140 号(2005)
- 2) 厚生労働省：食品、添加物等の規格基準。昭和 34 年 12 月 28 日、告示第 370 号(1959)
- 3) Jun, B. L., Hee, Y. K., Young, M. J., Young, S., Sung, M. W., Mi, S. P., Hyun, S. L., Soon, K. L. and Meehye, K.: Determination of malachite green and crystal violet in processed fish products. *Food Additives and Contaminants*, 27, 953-961 (2010)
- 4) 厚生労働省医薬食品安全部基準審査課長および監視安全課長通知：食品中のマラカイトグリーンを試験法について。平成 18 年 10 月 13 日、食安基発第 1013001 号(2006)、食安監発第 1013003 号(2006)
- 5) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知：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の一部改正について。平成 22 年 12 月 24 日、食安発 1224 第 1 号(2010)

- 6) 大熊紀子, 氏家愛子, 千葉美子, 吉田直人, 濱名徹：うなぎ中のマラカイトグリーン分析法の検討。宮城県保健環境センター年報, 28, 101-102 (2010)
- 7) 濱田寛尚, 山本理世, 村川弘：水産物中マラカイトグリーン簡易迅速分析法の検討。熊本県保健環境科学研究所報, 42, 46-49 (2012)
- 8) 中村昌司, 南谷臣昭, 永井宏幸, 後藤黄太郎, 緒方勇人：うなぎにおけるマラカイトグリーン試験法の検討。平成 25 年度日本獣医公衆衛生学会(中部地区)要旨集, p.228 (2013), 千葉
- 9) 千葉美子, 吉田直人, 高橋祐介, 氏家愛子：うなぎ中のマラカイトグリーン分析における脂質精製と溶解溶媒の違いによる標準溶液の安定性の検討。宮城県保健環境センター年報, 29, 50-53 (2011)
- 10) Maria, V., Bienvenida, G., Juan, F. G., Natividad, R. M. and Antonio, M.: Muticlass detection and quantitation of antibiotics and veterinary drugs in shrimps by fast liquid chromatography time-of-flight mass spectrometry. *Talanta*, 85, 1419-1427 (2011)
- 11) Juliana, C. H. and Jonas, A. R. P.: A simple method for the determination of malachite green and leucomalachite green residues in fish by a modified QuEChERS extraction and LC/MS/MS. *Journal of AOAC International*, 95, 913-922 (2012)
- 12) Noelia, L., Robert, R., José, L. M. V. and Antonia, G. F.: Analysis of triphenylmethane dyes in seafood products: a review of extraction methods and determination by liquid chromatography coupled to mass spectrometry. *Analytical Methods*, 5, 3434-3449 (2013)
- 13) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知：食品、添加物等の規格基準の一部を改正する件について。平成 18 年 5 月 30 日、食安発第 0530001 号(2006)
- 14) Michelangelo, A. and Steven, J. L.: Fast and easy multiresidue method employing acetonitrile extraction/partitioning and "Dispersive Solid-Phase Extraction" for the determination of pesticide residues in produce. *Journal of AOAC International*, 86, 412-431 (2003)

[2015 年 5 月 14 日受理]