

以液相層析串聯質譜儀建立 fluoroimide 於蘋果中殘留檢驗方法

莊瑋臻¹、黃鎮華¹、徐慈鴻¹、林韶凱^{1*}

摘要

莊瑋臻、黃鎮華、徐慈鴻、林韶凱。2021。以液相層析串聯質譜儀建立 fluoroimide 於蘋果中殘留檢驗方法。臺灣農藥科學 10 : 109-120。

本研究係開發殺菌劑 fluoroimide 於蘋果中殘留檢驗方法，檢驗方法參考「食品中殘留農藥檢驗方法－多重殘留分析方法 (六)」(第 1 次修正：108 年 12 月 27 日，TFDAP0007.01) 進行分析，萃取液分別以液相層析串聯質譜儀進行定性及定量，試驗材料以蘋果 (已制定農藥殘留容許量標準，但缺少檢驗方法者) 進行檢驗方法確效，於樣品中添加濃度為 0.01 及 0.05 $\mu\text{g/g}$ 進行同日內與異日間之評估，於同日內 (intra-day) 平均回收率介於 71.6~95.7%，相對標準偏差 (relative standard deviation, RSD) 介於 6.1~14.9%；異日間 (inter-day) 平均回收率介於 80.2~91.8%間，RSD 介於 9.6~14.1%，定量極限可達 0.01 $\mu\text{g/g}$ 。本方法期能作為衛福部食品藥物管理署制定檢驗方法之參考依據，未來將運用於進、出口及市售產品中檢測 fluoroimide 之殘留情形，為食安把關。

關鍵詞：蘋果、fluoroimide、液相層析串聯質譜儀、檢驗方法確效

緒言

殺菌劑 fluoroimide 化學名為 2,3-dichloro-N-4-fluorophenylmaleimide，屬於 pyrrole 系殺菌劑，主要是透過造成

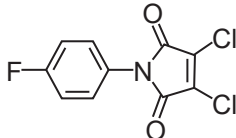
細胞膜上的過氧化作用，導致細胞呼吸作用異常而死亡，可用以抑制真菌孢子發芽，對子囊菌類 (ascomycetes)、擔子菌類 (basidiomycetes) 及不完全菌 (deuteromycetes) 有效⁽¹⁾，其物理化學性質 (表一)。

接受日期：2021 年 6 月 15 日

* 通訊作者。E-mail: sklin@tactri.gov.tw

¹ 臺中市 行政院農業委員會農業藥物毒物試驗所

表一、fluoroimide 物理化學性質⁽⁷⁾Table 1. Physical and chemical properties of fluoroimide⁽⁷⁾

IUPAC name	2,3-dichloro-N-4-fluorophenylmaleimide
CAS RN	41205-21-4
Chemical structure	
Molecular formula	C ₁₀ H ₄ Cl ₂ FNO ₂
Molecular weight	260.1
Melting point	239.1°C
Vapor pressure	3.4 mPa (25°C); 8.1 mPa (40°C)
Octanol-water partition coefficient, log <i>P</i>	3.04 (25°C)
Solubility in water	0.611 mg/l (pH 5.4, 20°C)
Solubility in various solvents	In acetone 17.7, <i>n</i> -hexane 0.073 (both in g/l, 20°C).
Stability	Stable to 120°C, and under uv and sunlight. On hydrolysis, DT ₅₀ 52.9 min (pH 3), 7.5 min (pH 7), 1.4 min (pH 8).

我國食品安全衛生管理法中已明訂農產品⁽⁵⁾及動物產品⁽⁶⁾中殘留農藥安全容許量標準 (maximum residue limits, MRL)，做為保障農產品及動物產品安全之準則，而要執行容許量之法規，則須有明確之農藥殘留分析方法作為執法之依據。目前 CODEX⁽⁸⁾、EU⁽¹⁰⁾ 及美國⁽¹¹⁾ 尚未制訂該藥劑容許量標準，日本⁽¹²⁾ 則制定蘋果、梨、日本柿及茶等容許量標準，MRL 介於 3 至 35 ppm，我國則已制定 fluoroimide 於蘋果中的容許量為 3.0 ppm (表二)。

蔬果農藥殘留分析方法由衛生福利部公告，其中「食品中殘留農藥檢驗方法—多重殘留分析方法 (五)」於 2019 年 5 月 10 日增加至 380 項 (MOHWP0055.04)⁽²⁾，並於 2020 年 1 月 1 日施行，此外，食藥署

亦於 2019 年 12 月 27 日修正「食品中殘留農藥檢驗方法—多重殘留分析方法 (六)」(TFDAP0007.01)⁽³⁾。

然而，我國雖已制定蘋果中 fluoroimide 的殘留容許量，但前述檢驗方法尚未包含 fluoroimide 藥劑，為了補足監測技術缺口及配合食品安全衛生管理法中容許量執行之迫切需要，本研究針對蘋果中 fluoroimide 進行方法開發，並完成檢驗方法確效^(4, 9)。本研究將 fluoroimide 添加於樣品中，濃度分別為 0.01 及 0.05 μg/g (各 5 重複)，先依「食品中殘留農藥檢驗方法—多重殘留分析方法 (五)」進行製備後分析，平均回收率分別為 50.5% 與 73.0%，相對標準偏差 (relative standard deviations, RSD) 為 42.5% 與 18.6%，其回

表二、fluoroimide 各國容許量調查

Table 2. International fluoroimide MRLs in crop products

Pesticide	MRLs (ppm)				
	Taiwan ¹⁾	Codex ²⁾	EU ³⁾	USA ⁴⁾	Japan ⁵⁾
fluoroimide	Apple 3.0	– ⁶⁾	– ⁶⁾	– ⁶⁾	Apple 10, Pear 3, Japanese Persimmon 5, Tea 35

¹⁾ 農藥殘留容許量標準。2020 年 05 月 20 日衛授食字第 1091301085 號令修正 ⁽⁵⁾。

²⁾ Obtained from guidelines in the “Codex Pesticides Residues in Food Online Database” index ⁽⁸⁾.
<http://www.fao.org/fao-who-codexalimentarius/codex-texts/dbs/pestres/pesticides/en/>

³⁾ Obtained from the EU pesticides database ⁽¹⁰⁾. <http://ec.europa.eu/food/plant/pesticides/eu-pesticides-database/public/?event=homepage&language=EN>

⁴⁾ Obtained from the “Electronic Code of Federal Regulations” produced by the U. S. Government Publishing Office (GPO) ⁽¹¹⁾. <https://www.ecfr.gov/cgi-bin/text-idx?SID=a3b649316ccb17c31211db2edd81f789&mc=true&node=pt40.24.180&rgn=div5>

⁵⁾ Obtained from the Japan Food Chemical Research Foundation ⁽¹²⁾. <http://db.ffcr.or.jp/front/>

⁶⁾ –MRL standard not listed.

收率無法符合衛生福利部食品藥物管理署公告之食品化學檢驗方法確效規範 ⁽⁴⁾ 及歐盟檢驗方法確效 ⁽⁹⁾ 規範。且由物理化學性質中可得知如表一，該藥劑於 pH 值較低時其半衰期較長，因此於儀器分析前添加 5% 甲酸後再進行分析，其平均回收率分別為 38.3% 與 72.6%，RSD 為 21.5% 與 11.7%，亦無法達到要求。可能原因是方法中的 PSA 為鹼性物質，主要功能是吸附基質中的醣類、脂肪酸、有機酸及部分色素等干擾，而 PSA 使用量於方法六中少於方法五，故再以「食品中殘留農藥檢驗方法－多重殘留分析方法 (六)」進行後續試驗。以期本方法可作為蘋果中 fluoroimide 檢驗方法制定之參考依據，以確保消費者食用安全，並於外銷時亦可做最嚴謹的把關，使食品安全檢驗的工作更臻完善。

材料與方法

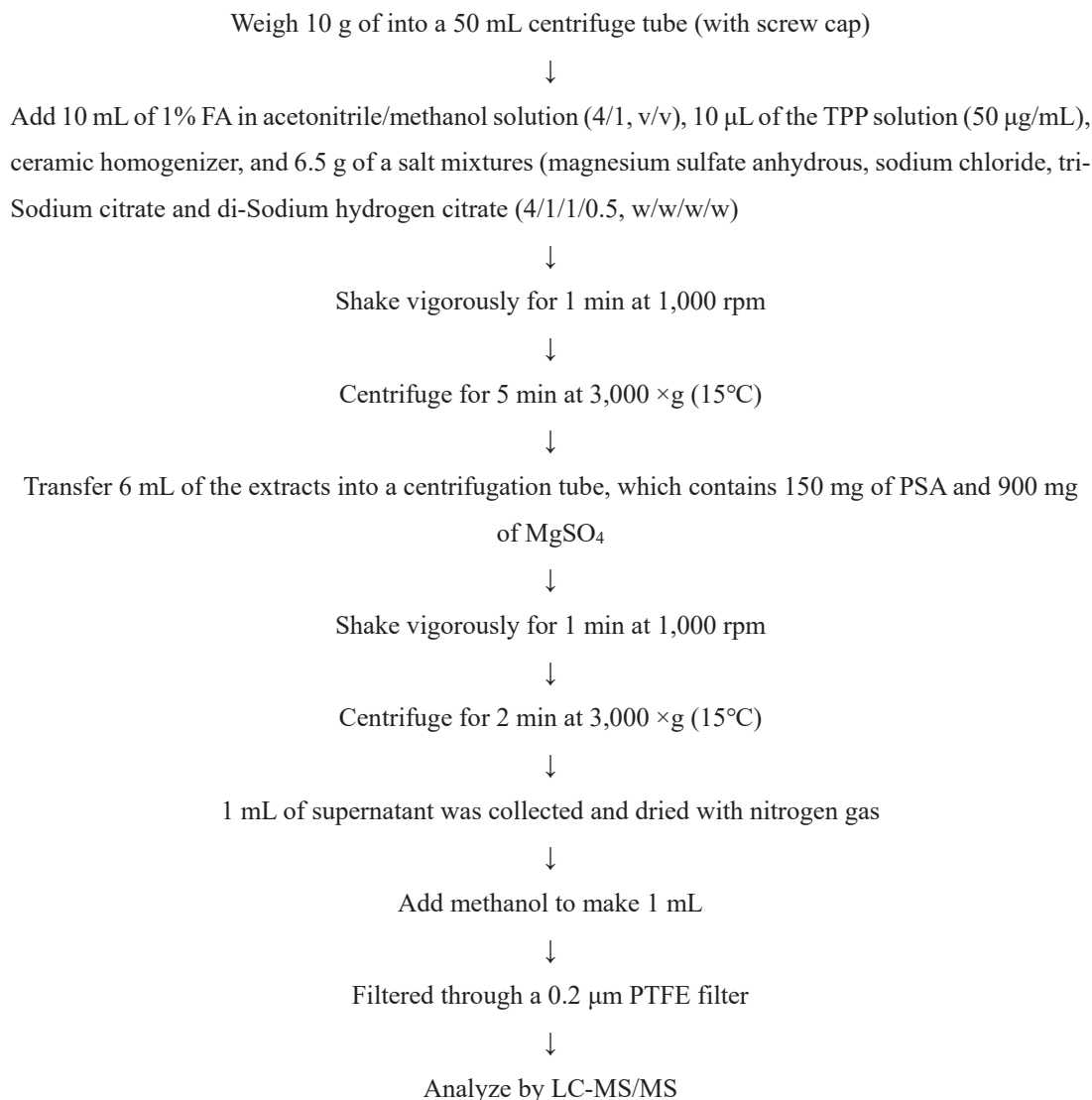
本檢測方法係參考「食品中殘留農藥檢驗方法－多重殘留分析方法 (六)」⁽³⁾ 進行分析，樣品製備流程 (圖一)。

一、試藥及材料

對照物：農藥標準品 fluoroimide，純度 99.9%，Dr. Ehrenstorfer。

試藥：乙腈 (acetonitrile) 層析級，J. T. Baker；去離子水 (比電阻於 25°C 可達 18 MΩ/cm 以上)；檸檬酸鈉 (tri-Sodium citrate) ACS 級，Merck；檸檬酸氫二鈉 (di-Sodium hydrogen citrate) 殘量分析級，Merck；氯化鈉 (Sodium chloride) Ph Eur 級，Merck；無水硫酸鎂 (Magnesium sulphate

anhydrous) ACS 級，J. T. Baker；PSA ACS 級，Merck；磷酸三苯酯 (tri-phenylphosphate, TPP)，純度 99.4%，Dr. Ehrenstorfer 等。



圖一、蘋果中 fluoroimide 檢驗分析流程。

Fig. 1. Flowchart illustrating the analysis of fluoroimide residue in apples.

材料：離心管：15 mL 及 50 mL，PP 材質，CORNING；濾膜：孔徑 0.2 μm ，PTFE 材質，Agilent；容量瓶：25 mL，褐色，BRAND；陶瓷均質石 (Ceramic homogenizer) Bond Elut QuChERS，Agilent；樣品瓶：1.8 mL，玻璃材質，夾蓋或螺旋蓋，Agilent；10 mL，玻璃材質，附螺旋蓋，Thermo；萃取消粉劑：含無水硫酸鎂 4 g、檸檬酸鈉 1 g、氯化鈉 1 g 及檸檬酸氫二鈉 0.5 g；淨化用離心管：含無水硫酸鎂 900 mg 及 PSA 150 mg，檢液負荷量 6 mL。

樣品預處理：將蘋果樣品添加乾冰進行樣品均質化處理，至少取樣 500 公克作為次樣品 (Sub-sample)，裝罐密封，並保存於低溫冷凍 (低於 -18°C) 條件下，待試驗分析使用。

二、設備與裝置

液相層析儀 Shimadzu Nexera series liquid chromatography；質譜儀 Shimadzu LCMS-8050；控制及數據分析系統：LabSolutions (Version 5.97 SP 1) 及 LabSolutions Insight (3.6.65.0)。天平：METTLER Toledo, ME403E。攪拌混合器：Stephan Prime Cut。高速分散裝置：SPEX SamplePrep 2010 Geno/Grinder[®]。氮氣濃縮裝置：Organomation Associates, Inc, N-EVAP[™] 112。旋渦混合器：Vortex-Genie 2。離心機：Beckman Coulter, Allegra X-30R Centrifuge。

三、試劑之調製

乙腈／甲醇 (4/1,v/v) 溶液：取乙腈與甲醇以 4/1 (v/v) 之比例混勻。

含 1% 甲酸之乙腈／甲醇 (4/1,v/v) 溶液：取甲酸 10 mL 及乙腈／甲醇 (4/1,v/v) 溶液 990 mL 混合均勻。

四、移動相溶液之調製

移動相溶液 A：取醋酸銨 0.4 g，以去離水溶解使成 1,000 mL，加入甲酸 1 mL 混合均勻，以濾膜過濾，取濾液供作移動相溶液 A。

移動相溶液 B：取醋酸銨 0.4 g，以甲醇溶解使成 1,000 mL，以濾膜過濾，取濾液供作移動相溶液 B。

五、標準溶液之配製

取農藥對照用標準品 fluoroimide 約 25 mg，精確稱定，以 0.1% 甲酸之丙酮溶液溶解並定容至 25 mL，作為標準原液，於 -18°C 避光貯存備用。取適量標準原液以 0.1% 甲酸之丙酮溶液稀釋至 10 $\mu\text{g}/\text{mL}$ ，供作 LC-MS/MS 分析用標準溶液。

六、檢液製備方式

取均質之蘋果次樣品 10 g 置於離心管中，加入含 1% 甲酸之乙腈／甲醇 (4/1,v/v) 溶液 10 mL 及 50 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 磷酸三苯酯

10 μL ，再依序加入陶瓷均質石 1 顆及萃取用粉劑，蓋上離心管蓋，隨即激烈振盪數次，防止鹽類結塊，再以高速分散裝置於 1,000 rpm 振盪 1 分鐘後，於 15°C 以 3,000 $\times\text{g}$ 離心 5 分鐘。取上清液 6 mL，置於淨化用離心管，以高速分散裝置以 1,000 rpm 振盪 1 分鐘後，於 15°C 以 3,000 $\times\text{g}$ 離心 2 分鐘。取上清液 1 mL，以氮氣吹至剛乾，殘留物以甲醇 1 mL 溶解，以濾膜過濾，供作檢液，以 LC-MS/MS 分析。

七、標準檢量線及基質匹配檢量線之製備

取 1 $\mu\text{g}/\text{mL}$ fluoroimide 標準溶液 5~200 μL 及 5.0 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 磷酸三苯酯 10 μL ，再加入適量甲醇使體積為 1 mL，混合均勻，使成為 0.005、0.01、0.02、0.05、0.1 及 0.2 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 之檢量線，以 LC-MS/MS 分析，利用波峰面積與濃度繪製成標準檢量線。

另取空白檢體，依調製未添加磷酸三苯酯之淨化後上清液，分別量取 1 mL 以氮氣吹至剛乾，分別加入 1 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 標準溶液 5~200 μL 及 5.0 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 磷酸三苯酯 10 μL ，再加入適量甲醇使體積為 1 mL，混合均勻，製作成 0.005、0.01、0.02、0.05、0.1 及 0.2 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 之基質匹配檢量線，以 LC-MS/MS 分析，利用波峰面積與濃度繪製成標準檢量線。

八、儀器分析條件

液相層析儀使用 CORTECS™ UPLC® C18 層析管柱 (100 \times 2.1 mm, 1.6 μm)、層析管柱溫度為 40°C。梯度條件 (表三)、移動相溶液：A 液與 B 液以下列條件進行梯度分析、移動相流速：0.35 mL/min、注入量：10 μL 。

質譜儀之離子源採用電灑離子化 (ESI+)、介面電壓 (interface voltage) 為 2 kV、介面溫度 (interface temperature) 為 250°C、霧化氣體流速 (nebulizing gas flow) 為 3 L/min。加熱氣體流速 (heating gas flow) 為 15 L/min、脫溶劑管溫度 (DL temperature) 為 200°C、加熱塊溫度 (heat block temperature) 為 350°C、乾燥氣體流速 (drying gas flow) 為 5 L/min、偵測模式採用多重反應偵測 (multiple reaction monitoring, MRM) (表四)。

九、鑑別試驗及含量測定

採用基質匹配檢量線法 (matrix-matched calibration curve method)，精確量取檢液及基質匹配檢量線溶液各 10 μL ，

表三、液相層析儀之移動相梯度條件

Table 3. HPLC gradient conditions

Time (min)	A (%)	B (%)
0.0 \rightarrow 2.0	99 \rightarrow 50	1 \rightarrow 50
2.0 \rightarrow 8.0	50 \rightarrow 30	50 \rightarrow 70
8.0 \rightarrow 10.0	30 \rightarrow 1	70 \rightarrow 99
10.0 \rightarrow 13.0	1 \rightarrow 1	99 \rightarrow 99
13.0 \rightarrow 13.5	1 \rightarrow 99	99 \rightarrow 1
13.5 \rightarrow 15.0	99 \rightarrow 99	1 \rightarrow 1

表四、fluoroimide 之多重反應偵測模式參數 (LC-MS/MS)

Table 4. MRM parameters employed in fluoroimide analysis

Compound	Ionization mode	Quantitative			Qualitative		
		Precursor (m/z) >	Q1/Q3pre bias (V)	Collision energy (V)	Precursor (m/z) >	Q1/Q3 pre bias (V)	Collision energy (V)
		Product (m/z)	(V)	(V)	Product (m/z)	(V)	(V)
fluoroimide	ESI+	260>110	-13/-10	-33	260>168	-14/-16	-23
					262>110	-13/-10	-33

分別注入液相層析串聯質譜儀中，就檢液與基質匹配檢量線溶液所得波峰之滯留時間及多重反應偵測相對離子強度 (表五) 鑑別之，並依下列計算式求出檢體中農藥之含量 (ppm)：

$$\text{檢體中農藥之含量 (ppm)} = \frac{C \times V}{M}$$

C：由農藥之基質匹配檢量線求得檢液中農藥之濃度 (µg/mL)

V：萃取檢體之含 1% 甲酸之乙腈/甲醇 (4/1,v/v) 溶液之體積 (10 mL)

M：取樣分析檢體之重量 (g)

十、添加回收率試驗

取均質之蘋果檢體 10 g，分別添加 fluoroimide 標準品溶液，使其樣品濃度為 0.01 及 0.05 µg/g，分別代表定量極限評估濃度及 5 倍定量極限評估濃度，並依分析檢液之製備流程操作，分別進行同日內 (5 重複) 及異日間 (3 重複) 分析，以 LC-MS/MS 進行分析。以檢液測得 fluoroimide 波峰之滯留時間與面積，分別與基質匹配標準品比較鑑別並定量。所得定量極限評估濃度 (0.01 µg/g) 之回收率應介於

60~125%，RSD 應小於 30%，並作為定量極限評估之用；5 倍定量極限評估濃度 (0.05 µg/g) 之回收率應介於 70~120%，RSD 應小於 20%^(4,9)。

十一、定量極限 (limit of quantification, LOQ) 評估

係經由樣品實際添加 0.01 µg/g 濃度，其實測回收率需符合 60~125%，RSD 應小於 30%，定量離子訊號／雜訊比 (signal/noise ratio, S/N ratio) 至少大於 10，定性離子至少大於 3，以此作為定量極限判定標準^(4,9)。

表五、質譜分析之相對離子強度最大可容許範圍

Table 5. Recommended maximum tolerance levels for ion ratios detected using LC-MS/MS

Ion ratio (%)	Tolerance (%)
> 50	± 20
> 20~50	± 25
> 10~20	± 30
≤ 10	± 50

結果與討論

本研究係依據衛生福利部食品藥物管理署公告之食品化學檢驗方法⁽⁴⁾以及參考歐盟檢驗方法確效⁽⁹⁾規範進行，分別進行回收率試驗，評估其精密度 (precision)、準確度 (accuracy) 和可信賴度 (reliability)。

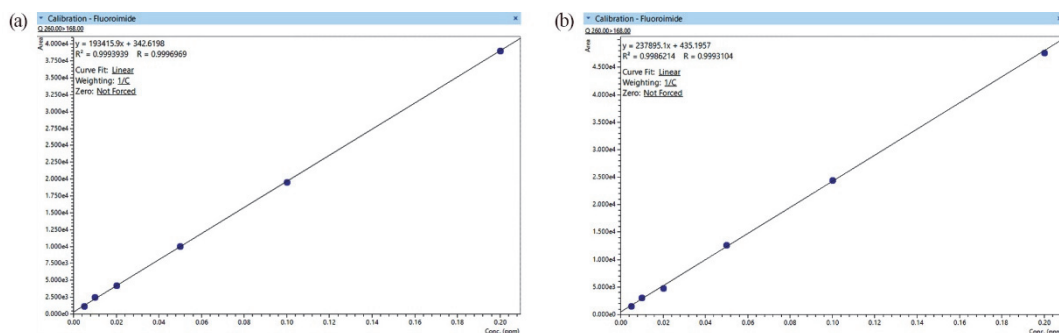
一、檢量線與基質效應

分別製備 fluoroimide 之標準檢量線 (standard calibration curve, SSC) 及基質匹配檢量線 (matrix calibration curve, MCC)，其範圍皆為 0.005 µg/mL 至 0.2 µg/mL (各點的濃度值分別為 0.005、0.01、0.02、0.05、0.1 及 0.2 µg/mL)，其中標準檢量線之線性回歸方程式之決定係數為 0.9994，另基質匹配檢量線之線性回歸方程式之決定係數為 0.9986，上述檢量線皆顯示該濃度範圍內線性關係良好 (圖二)。另評估蘋

果基質對分析物於質譜儀中離子化效率影響，依據所製備之標準檢量線 (SSC) 及基質匹配檢量線 (MCC)，比較其斜率。測得 SSC 方程式為 $y=193415.9x+342.6$ 及 MCC 方程式為 $y=237895.1x+435.2$ ，以【基質效應 = (MCC 之斜率 - SSC 之斜率) / SSC 之斜率 × 100 %】計算公式，求得基質效應為 23.0%，結果顯示 fluoroimide 於蘋果基質會增強離子訊號，因考量分析結果之準確性，本試驗採用基質匹配檢量線進行定性及定量。方法之溶劑分析及基質空白分析於 fluoroimide 滯留時間窗內未檢出殘留，顯示方法之共萃物不會干擾分析鑑別的判定。fluoroimide 標準品及含基質匹配標準品之質譜圖 (圖三)。

二、添加回收率試驗

於蘋果檢體中分別添加 fluoroimide 標準品，使其濃度為 0.01 µg/g (定量極限評估濃度) 及 0.05 µg/g (5 倍定量極限評估

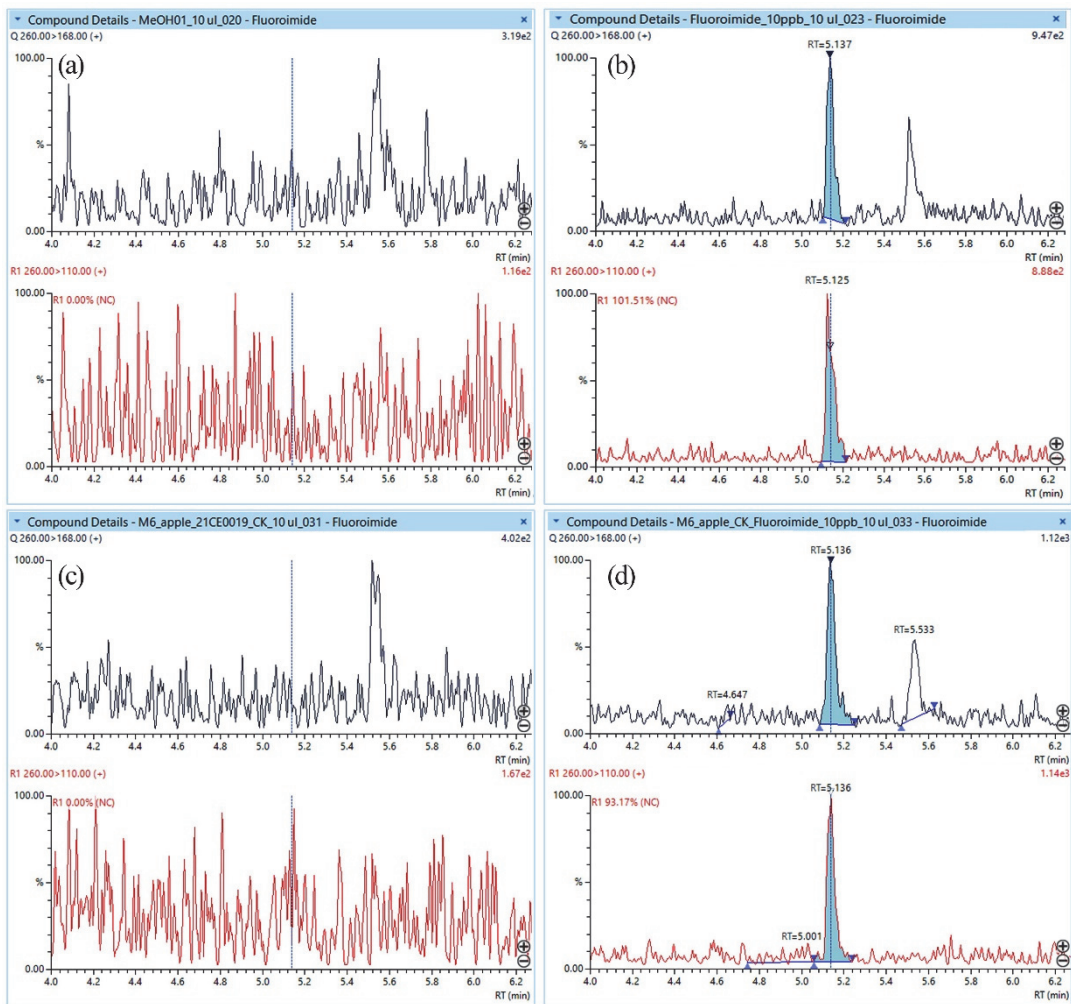


圖二、fluoroimide 分別在溶劑與基質之檢量線 (a) 標準檢量線與 (b) 基質匹配檢量線。

Fig. 2. Calibration curves of fluoroimide (a) in solvent and (b) in matrix.

濃度)，依檢液製備流程操作後，其回收率於同日內 (intra-day) 平均回收率介於 71.6~95.7%，RSD 介於 6.1~14.9%。異日間 (inter-day) 平均回收率介於 80.2~91.8%間，RSD 介於 9.6~14.1% (表六)。結

果顯示，以本試驗方法進行 fluoroimide 於蘋果基質的各項回收率，於 0.01 $\mu\text{g/g}$ 之回收率符合 60~125%，且 RSD 皆小於 30%；於 0.05 $\mu\text{g/g}$ 之回收率符合 70~120%，且 RSD 皆小於 20%，皆符合衛生福利部



圖三、fluoroimide 分別在溶劑與基質之質譜圖 (a) 溶劑；(b) 0.01 $\mu\text{g/mL}$ ；(c) 蘋果空白基質；(d) 於蘋果基質中 0.01 $\mu\text{g/mL}$ 。

Fig. 3. Representative mass chromatograms of (a) solvent, (b) 0.01 $\mu\text{g/mL}$ fluoroimide, (c) matrix blank and (d) apple matrix fortified with 0.01 $\mu\text{g/mL}$ fluoroimide.

表六、fluoroimide 添加回收率試驗結果

Table 6. Results of recovery tests performed on samples fortified with fluoroimide

Concentration of fluoroimide in apple sample ($\mu\text{g/g}$)	Intra-day						Inter-day	
	Day 1		Day 2		Day 3		Average Recovery rate (%)	RSD (%)
	Average Recovery rate (%)	RSD (%)	Average Recovery rate (%)	RSD (%)	Average Recovery rate (%)	RSD (%)		
0.01	71.6	14.9	86.6	11.2	82.4	12.0	80.2	9.6
0.05	95.7	6.1	92.3	7.0	87.5	6.8	91.8	14.1

食品藥物管理署公告之食品化學檢驗方法確效規範⁽⁴⁾以及參考歐盟檢驗方法確效⁽⁹⁾規範。

三、定量極限

本試驗方法 fluoroimide 之定量極限可達 0.01 $\mu\text{g/g}$ ，係經由樣品實際添加 0.01 $\mu\text{g/g}$ 濃度，其實測回收率於同日間 (5 重複分析) 分別為 71.6%、86.6% 與 82.4%，且 RSD 分別為 14.9%、11.2% 與 12.0%；回收率於異日間 (3 重複) 為 80.2%，RSD 為 9.6%，回收率符合 60~125%，RSD 皆小於 30%。其定量離子訊號／雜訊比為 10.3~15.8，符合訊號／雜訊比大於 10 的要求；定性離子訊號／雜訊比為 12.3~22.4，符合訊號／雜訊比大於 3 的要求。

結論

本研究係參考「食品中殘留農藥檢驗方法—多重殘留分析方法 (六)」(第 1 次

修正：108 年 12 月 27 日，TFDAP0007.01) 流程，並利用液相層析串聯式質譜儀 (LC-MS/MS) 開發殺菌劑 fluoroimide 於蘋果中殘留檢驗方法，本方法可進行定性及定量檢分析，基質匹配檢量線之線性決定係數為 0.9986，基質效應為 23%，故建議以基質匹配檢量線進行定量分析。本方法之定量極限為 0.01 $\mu\text{g/g}$ ，同日內及異日間之回收率試驗結果顯示，fluoroimide 於蘋果基質的各項回收率皆介於 70~120%，且相對標準偏差皆小於 20%，符合衛生福利部食品藥物管理署公告之食品化學檢驗方法確效規範，本方法可作為蘋果中 fluoroimide 之殘留監測，未來也可作為衛生福利部食品藥物管理署增訂農藥殘留檢驗方法之參考依據。

謝辭

本試驗承蒙衛生福利部食品藥物管理署 2020 年度「農禽畜產品中殘留農藥檢驗方法開發研究」(109TFDA-A-102) 計畫經費補助及本所殘毒管制組檢驗方法研

究室及衛生福利部食品藥物管理署研究檢驗組多位同仁，以及參加實驗室比對的所有實驗室及其成員協助試驗工作，謹此謝忱。

引用文獻

1. 行政院農業委員會動植物防疫檢疫局。2005。殺真菌劑的種類與特性。檢自農藥資訊服務網 <https://pesticide.baphiq.gov.tw/web/briefDetailView.aspx?sn=46> (Apr. 7, 2021)
2. 衛生福利部。2019。食品中殘留農藥檢驗方法－多重殘留分析方法 (五)。衛授食字第 1081900612 號，MOHWP0055.04。
3. 衛生福利部。2019。建議檢驗方法－食品中殘留農藥檢驗方法－多重殘留分析方法 (六)，TFDAP0007.01。
4. 衛生福利部食品藥物管理署。2013。食品化學檢驗方法之確效規範。2013 年 9 月 9 日第二次修正。
5. 衛生福利部。2020。農藥殘留容許量標準。衛授食字第 1091301085 號令修正。
6. 衛生福利部。2021。動物產品中農藥殘留容許量標準。衛授食字第 1091303385 號令修正。
7. 日本農藥株式會社。2013。農藥抄錄。フルオルイミド (殺菌劑)。檢自 https://www.acis.famic.go.jp/syouroku/fluoroimide/fluoroimide_01.pdf (Jan. 15, 2020)
8. Codex Pesticides Residues in Food Online Database. Retrieved from <http://www.fao.org/fao-who-codexalimentarius/codex-texts/dbs/pestres/pesticides/en/> (Nov. 11, 2020)
9. European Committee Directorate General for Health and Food Safety. 2017. Analytical quality control and method validation procedures for pesticide residues and analysis in food and feed. Document number SANTE/12682/2019.
10. European Commission. EU Pesticides database. Retrieved from <http://ec.europa.eu/food/plant/pesticides/eu-pesticides-database/public/?event=homepage&language=EN> (Nov. 11, 2020)
11. National Archives and Records Administration's Office of the Federal Register (OFR) and the Government Publishing Office. Electronic code of federal regulations. Retrieved from <https://www.ecfr.gov/cgi-bin/text-idx?SID=a3b649316ccb17c31211db2edd81f789&mc=true&node=pt40.24.180&rgn=div5> (Nov. 11, 2020)
12. The Japan Food Chemical Research Foundation. 2019. Maximum residue limits (MRLs) list of agricultural chemicals in foods (Updated on Feb. 1, 2018). Retrieved from <http://db.ffcr.or.jp/front/> (Nov. 11, 2020)

Establishment of an Analytical Method to Assess Fluoroimide Residue in Apples by LC-MS/MS

Wei-Chen Chuang¹, Chen-Hua Huang¹, Tsyr-Horng Shyu¹, Shao-Kai Lin^{1*}

Abstract

Chuang, W. C., Huang, C. H., Shyu, T. H., and Lin, S. K. 2021. Establishment of an analytical method to assess fluoroimide residue in apples by LC-MS/MS. *Taiwan Pestic. Sci.* 10: 109-120.

In this study, a method for testing fluoroimide residues in apples was established. This analytical method was developed using the “Method of Test for Pesticide Residues in Foods-Multiresidue Analysis (6)” (TFDAP0007.01) as a reference. The extract was qualitatively and quantitatively performed using a liquid chromatography tandem mass spectrometer. We validated our analytical method using apples as a test material. (Maximum residue limits [MRLs] have been established for apples, but to date, no testing method has been developed.) In accordance with the “Method of Test for Pesticide Residues in Foods-Multiresidue Analysis (6)”, when apples were fortified at level of 0.01 and 0.05 µg/g fluoroimide, inter-day average recovery rates ranged from 80.2~91.8%, and relative standard deviation (RSD) ranged from 9.6~14.1%. Intra-day average recovery rates ranged from 71.6~95.7%, and RSD ranged from 6.1~14.9%. The limit of quantification (LOQ) was 0.01 µg/g. The method developed in this study can serve as a reference for development of additional testing methods by the Food and Drug Administration, Ministry of Health and Welfare. In the future, our method can be applied to detect fluoroimide residues in imported, exported, and other commercially available products, thereby safeguarding food safety.

Key words: apple, fluoroimide, liquid chromatography tandem mass spectrometer, method validation

Accepted: June 15, 2021.

* Corresponding author, E-mail: sklin@tactri.gov.tw

¹ Taiwan Agricultural Chemicals and Toxic Substances Research Institute, Council of Agriculture, Taichung