

## 2) LC/MS/MS を用いた畜水産物中動物用医薬品等の

### 迅速一斉分析法の検討(第3報)

松本理世 飛野敏明 西名武士 宇梶徳史 濱本愛 村川弘

#### 要旨

マラカイトグリーン類及びテトラサイクリン系抗生物質を含む広範囲の畜水産物中動物用医薬品等の迅速一斉分析法の開発を目的として、ギ酸含有アセトニトリル及びエチレンジアミン四酢酸含有クエン酸緩衝液による抽出後、LC/MS/MS を用いた定量分析法の検討を行った。

また、上記分析法について、15種類の畜水産物試料を用いて、妥当性評価ガイドラインに準拠した妥当性評価試験を行った結果、152成分中140～148成分が目標値に適合し、良好な結果が得られた。

**キーワード：**動物用医薬品等、LC/MS/MS、マラカイトグリーン類、テトラサイクリン系抗生物質

#### はじめに

本県では、食の安全・安心の確保に資するため、平成17年度からLC/MS/MSを用いた畜水産物中動物用医薬品等の一斉分析を開発<sup>1)</sup>(以下、「従来法」という。))し、食品衛生法等に基づき収去検査等を実施してきた。

しかし、従来法では、水産物で検出頻度の高いマラカイトグリーン類(以下「MG類」という。))及び畜水産物で広く用いられているテトラサイクリン系抗生物質(以下、「TC類」という。))は、抽出効率等が十分でない場合が多く、別途個別分析法にて対応する必要があるため、これら一連の検査に約2～3日を要していた。

そこで今回、MG類及びTC類を含む広範囲の動物用医薬品等の迅速一斉分析法の開発を目的に、ギ酸含有アセトニトリル及びエチレンジアミン四酢酸含有クエン酸緩衝液(以下、「EDTA含有クエン酸緩衝液」という。))による抽出後、精製操作を行わず、希釈した溶液をLC/MS/MSを用いた定量分析法(以下、「希釈法」という。))の検討を行った。

また、希釈法について、動物用医薬品等152成分を対象に「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」<sup>3)</sup>(以下、「ガイドライン」とい

う。))に準拠した妥当性評価を行ったところ、良好な結果が得られたので報告する。

#### 実験方法

##### 1 試薬等

###### 1.1 標準品

標準品は林純薬工業製、関東化学製、和光純薬工業製、Dr.Ehrenstorfer GmbH製、Sigma-aldrich製、Riedel-de Haen 製を用いた。

###### 1.2 混合標準溶液

各標準品を秤量し、メタノール、アセトン、アセトニトリル(一部ジメチルスルホキシド、水等を添加)に溶解後、混合したものに市販混合標準液(和光純薬工業製PL-1-3及びPL-2-1)を加え、さらにメタノール及び水でメタノール：水=9：1となるように希釈し、100ng/mLの混合標準溶液を調製した。

###### 1.3 その他の試薬等

- ・メタノール：和光純薬工業製、HPLC用
- ・アセトニトリル：和光純薬工業製、HPLC用

- ・ギ酸：和光純薬工業製，LC/MS用
- ・酢酸アンモニウム：和光純薬工業製，試薬特級
- ・ろ過フィルター：GL Sciences 社製(0.2 $\mu$ m, 25N)
- ・ポリプロピレン製バイアル：GL Sciences社製
- ・EDTA 含有クエン酸緩衝液：クエン酸 21.0g を水に溶かして 1000mL とした(第 1 液)。リン酸二ナトリウム 71.6g を水に溶かして 1000mL とした(第 2 液)。エチレンジアミン四酢酸二ナトリウム 1.86g に第 1 液 307mL と第 2 液 193mL を加えて混和し，溶解した。

## 2 LC/MS/MS測定条件

LC：Nexera X2 (島津製作所社製)

- ・注入量：5 $\mu$ L
- ・分離カラム：GL Sciences 社製  
InertsustainC18 PEEK (2.1 $\times$ 150mm, 3 $\mu$ m)
- ・カラムオープン温度：40 $^{\circ}$ C
- ・移動相：A 液(水)，B 液(メタノール)，C 液(1%ギ酸)，D 液(250mM 酢酸アンモニウム)
- ・グラジエント条件：表 1 のとおり

MS/MS：TRIPLE QUAD5500(AB SCIEX 社製)

- ・イオン化法：ESI
- ・分析モード：sMRM(ポジティブ，ネガティブ同時取り込み)

表 1 グラジエント条件

min	A(%)	B(%)	C(%)	D(%)	Flow (mL/min)
0	98	0	1	1	0.4
0.5	78	20	1	1	0.4
19.9	8	90	1	1	0.4
20	0	98	1	1	0.4
25	0	98	1	1	0.4
25.1	98	0	1	1	0.4
30	98	0	1	1	0.4

## 3 試料

試料には，分析対象の動物用医薬品等が含まれないことを確認したフグ，ブリ，ウナギ，ウナギ素焼き，エビ，コイ，タイ，ニジマス，牛肉，鶏肉，豚肉，馬肉，馬肝臓，牛乳及び鶏卵を，フードプロセッサーで細切し，以下の処理を行った。

### 3.1 添加回収試験用試料

3で均質化した試料5.0 g を100 mLPP遠沈管にとり，

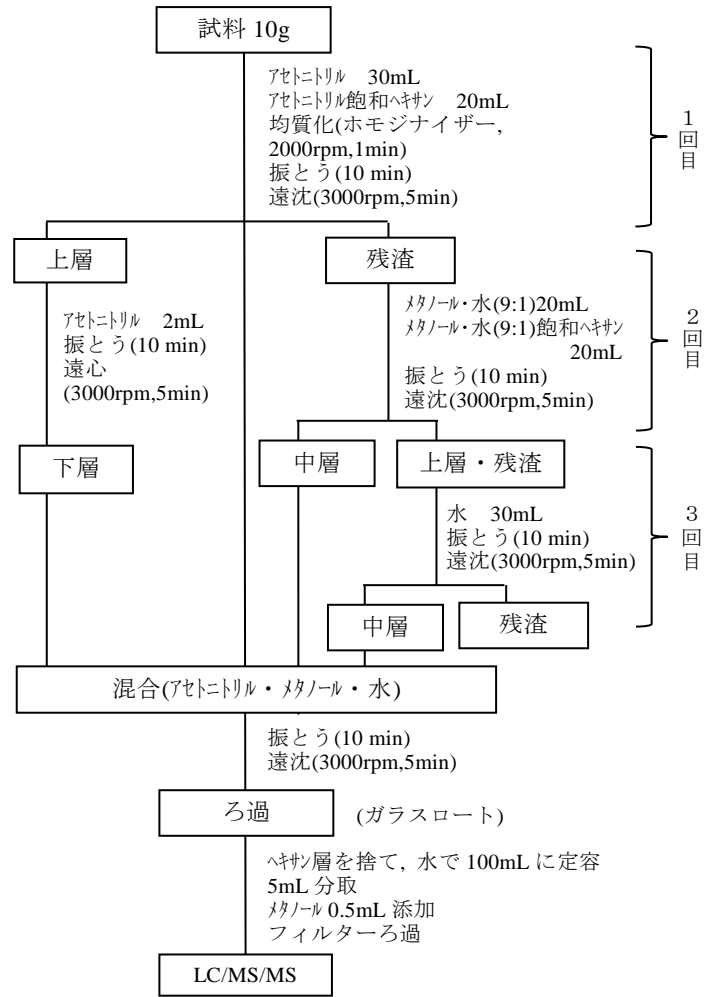


図 1 従来法分析フロー

混合標準溶液を0.01 $\mu$ g/gとなるように添加し，30分間静置したものを添加回収試験用試料とした。

### 3.2 妥当性評価試験用試料

3で均質化した試料5.0 g を100 mLPP遠沈管にとり，混合標準溶液を0.01 $\mu$ g/g(MG類については0.002 $\mu$ g/g)となるように添加し，30分間静置したものを妥当性評価試験用試料とした。

## 4 前処理法の検討

### 4.1 MG類抽出効率向上のための検討(ギ酸含有アセトニトリルを用いた抽出の検討)

従来法では，低極性動物用医薬品を対象としたアセトニトリル抽出(1回目抽出)及びメタノール抽出(2回目抽出)並びに高極性動物用医薬品を対象とした水抽出(3回目抽出)に加え，脱脂を目的としたヘキサンによる液-液分配を行ってきた(図1)。このため，MG類は抽出過程でのマラカイトグリーン(以下，「MG」という。)からロイコマラカイトグリーン(以下，「LMG」という。)への変換や分解<sup>4)</sup>及び脱脂過程でのヘキサンへの移行<sup>5)</sup>によ

り回収率が悪化したと推察された。

そこで、これらの問題を解決するため、従来法を基本とし、脱脂操作を除いたうえで、千葉らの報告<sup>4)</sup>を参考に、1回目及び2回目抽出にギ酸含有アセトニトリルを用いることとし、そのギ酸添加濃度の検討を行った。

#### 4.2 TC類抽出効率向上のための検討 (EDTA含有クエン酸緩衝液を使用した抽出の検討)

上記のとおり、従来法ではTC類を含む高極性動物用医薬品を対象に、水抽出(3回目抽出)を行っていたが、いくつかの試料において、良好な回収率が得られなかった。これは、試料中の金属イオンとTC類がキレート<sup>9)</sup>を形成することにより、抽出効率の低下やLC/MS/MS測定における測定効率の低下等が起ることによると考えられた。

そこで、TC類のキレート形成を抑制することを目的に、通知試験法等<sup>6-9)</sup>を参考に従来法における3回目抽出にEDTA含有クエン酸緩衝液を用いることとし、その適用性を検討した。

#### 4.3 その他 (PPバイアルの検討)

従来法では、畜水産物試料の種類によってニューキノロン系を含む数種類の動物用医薬品で検量線が2次式を描き、回収率が120%を超過するなど、回収率異常が起こることがあり、分析精度の面から問題があった。

これらの原因として、試験溶液充填バイアル中での分析対象物質の分解、吸着等<sup>10)</sup>が考えられたため、その対策として、ポリプロピレン製バイアル(以下「PPバイアル」という。)の適用性を検討した。

### 5 妥当性評価試験

#### 5.1 妥当性評価方法

4の検討結果から作成した希釈法について、動物用医薬品等152成分を対象として、分析者2名、2併行5日間の添加回収試験を実施し、ガイドラインに基づき真度、併行精度及び室内精度の評価を行った。

#### 5.2 希釈法

3.2の試料5.0gに0.2%または2%ギ酸アセトニトリル(フグ、ブリ、ウナギ、牛肉、鶏肉、豚肉、馬肉、馬肝臓、牛乳、鶏卵は0.2%、ウナギ素焼き、エビ、コイ、タイ、ニジマスは2%)15mLを加え、1分間ホモジナイズ(15000~20000rpm)する。これを、3000rpmで5分間遠心分離し、上澄みを50mLのメスフラスコ中にガラスロートを用いてろ過する。また、残渣に0.2%または2%ギ酸アセトニトリル10mLを加え、5分間振とうし、3000rpmで5分間遠心分離後、上澄みを先のメスフラスコにガラスロートを用いてろ過し合わせる。さらに、先の残渣にEDTA

含有クエン酸緩衝液15mLを加え、5分間振とうし、3000rpmで5分間遠心分離後、上澄みを先のメスフラスコ中にガラスロートを用いてろ過し合わせ、水を加え、正確に50mLに定容したものを試料抽出液とする。この試料抽出液2.5mLを正確に分取し、メタノール水混液(9:1)0.25mLを加え混和する。これを0.2µm非水系マイクロフィルターでろ過し、PPバイアルに充填したものを試験溶液とする。なお、検量線は、マトリックス試料からの抽出液2.5mLに、メタノール水混液(9:1)で希釈した、0.1, 0.5, 1, 5, 10, 40, 100 ng/mLの混合標準溶液0.25mLを加え、フィルターろ過したものを検量線用マトリックスマッチ標準溶液(0.01, 0.05, 0.1, 0.5, 1, 4, 10ng/mL)とする。

### 結果及び考察

#### 1 前処理法の検討

##### 1.1 MG類抽出効率向上のための検討 (ギ酸含有アセトニトリルを用いた抽出の検討)

MG類の抽出効率向上を目的に、1回目及び2回目抽出に用いる溶媒を検討するに当たり、まず、千葉らの報告<sup>4)</sup>に示された0.2%ギ酸含有アセトニトリルを用いた抽出によるMG類の添加回収試験を、MG類が使用される可能性のある水産物試料8種類(フグ、ブリ、ウナギ、ウナギ素焼き、エビ、コイ、タイ及びニジマス)を対象に行った。その結果、表2に示すとおり、LMGはすべての試料でガイドラインに示される回収率の目標値(70~120%、以下「回収率の目標値」という。)が得られたが、MGはいくつかの試料で回収率が50%前後と低く、この条件では水産物の種類によってはMG類の変換や分解が抑制できないと考えた。

そこで、広範囲の水産物においてMG類の変換や分解を抑制できる動物用医薬品等の一斉分析条件を検索するために、先の検討において、MGの回収率が特に低

表2 0.2%ギ酸含有アセトニトリル抽出における添加回収試験結果

ギ酸添加濃度	0.2%	
	MG	LMG
試料		
フグ	77.9	106.7
ブリ	84.4	100.2
ウナギ	89.7	103.2
エビ	47.7	97.6
コイ	50.9	98.7
タイ	61.6	95.3
ニジマス	65.5	97.8
ウナギ素焼き	54.9	103.5

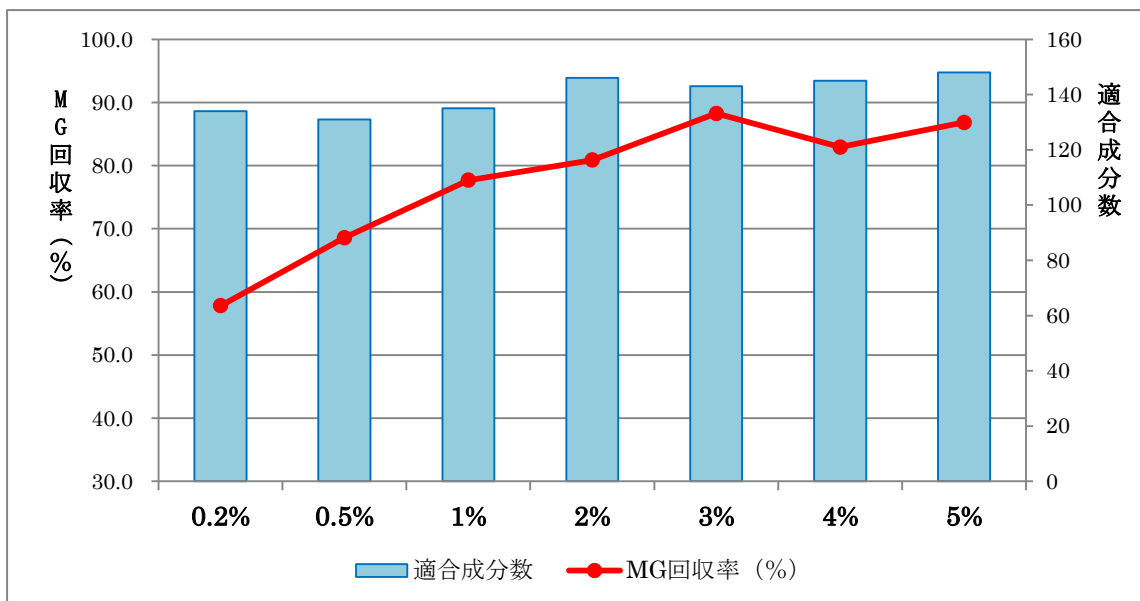


図2 ギ酸添加濃度の変化によるMG回収率と目標値適合成分数の比較

表3 0.2%及び2%ギ酸含有アセトニトリル抽出における添加回収試験結果の比較

ギ酸 添加濃度	0.2%		2%	
	MG	LMG	MG	LMG
試料				
フグ	77.9	106.7	93.1	146.6
ウナギ	89.7	103.2	108.9	—
ブリ	84.4	100.2	89	76.2
エビ	47.7	97.6	83.9	101.1
コイ	50.9	98.7	76.1	99.1
タイ	61.6	95.3	90.9	98.7
ニジマス	65.5	97.8	89.2	91.8
ウナギ素焼き	54.9	103.5	84.8	94.6

—：定量不能

かったエビ試料について、抽出溶媒に7濃度(0.2%, 0.5%, 1%, 2%, 3%, 4%, 5%)のギ酸含有アセトニトリルを用いて、MG類を含む動物用医薬品等152成分を対象とした添加回収試験(n=1)を実施した。その結果、図2のとおり、MGの回収率は、ギ酸添加濃度の上昇に伴い向上し、ギ酸添加濃度2%以上で回収率の目標値を十分に満たす結果が得られ、また、他の動物用医薬品等についてもギ酸濃度による回収率の低下等の影響がみられなかった。これらの結果に加え、ギ酸濃度の上昇による操作性や機器への影響等も考慮し、2%ギ酸含有アセトニトリルを用いた抽出により、MG類を含む動物用医薬品等の一斉分析が可能であると考えられた。

次に、エビ試料以外の水産物試料への適用性を調べるため、上記水産物試料8種類を用いたMG類の添加回

収試験(n=1)を実施した。その結果及び前述の0.2%ギ酸含有アセトニトリルを用いた抽出によるMG類の添加回収試験の結果比較を表3に示す。

表3に示すとおり、ギ酸添加濃度2%において、ブリ、エビ、コイ、タイ、ニジマス及びウナギ素焼きでは、MG類は回収率の目標値を満たす結果が得られたが、その他の水産物ではLMGが回収率の目標値を満たさなかった。また、ギ酸添加濃度0.2%においては、フグ、ウナギ及びブリでは回収率の目標値を満たす結果が得られたが、その他の水産物ではMGが回収率の目標値を満たさなかった。このように水産物の種類によって大きな差がみられた原因は、抽出過程でのMG類の挙動が非常に不安定であり、水産物中のマトリックス成分の差異により、MG類の変換や分解の起こりやすさが異なるためと推察され、単一の条件ではすべての水産物においてMG類の変換や分解を抑制できる一斉分析条件は困難であると考えられた。一方で、今回用いたすべての水産物において0.2%又は2%ギ酸含有アセトニトリル何れかでMG類が目標値を満たしたことから、水産物の種類によってギ酸添加濃度を選択することにより、MG類を含む動物用医薬品等の一斉分析が可能であることが示唆された。

以上のことから、1回目及び2回目抽出に用いる溶媒は、フグ、ウナギ、ブリについては0.2%ギ酸含有アセトニトリルを、また、エビ、コイ、タイ、ニジマス及びウナギ素焼きについては2%ギ酸含有アセトニトリルを選択することとした。

なお、畜産物(牛肉、鶏肉、豚肉、馬肉、馬肝臓、牛

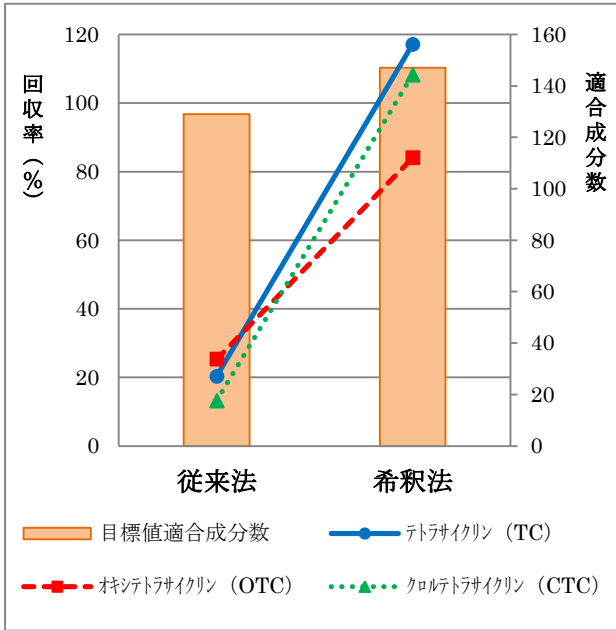


図3 従来法と希釈法における目標値適合成分数及びTC類の回収率の比較

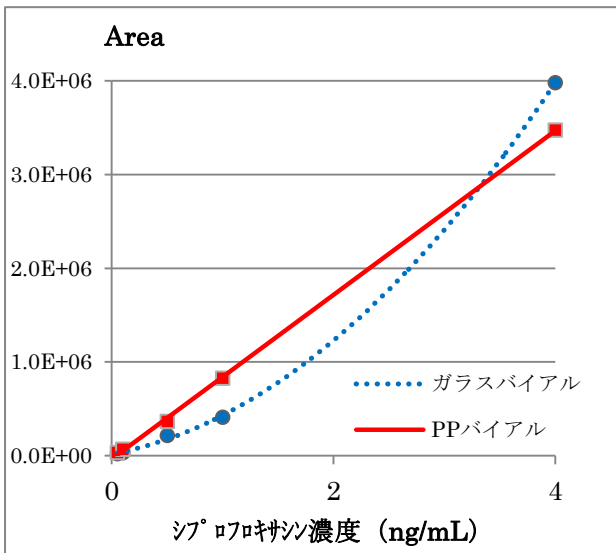


図4 充填バイアルの違いによるニューキノロン系動物用医薬品(シプロロキサシン)の検量線の変化

乳及び鶏卵)については、MG類の検査の必要性が低いことから、0.2%ギ酸含有アセトニトリルを選択した。

### 1.2 EDTAを使用した抽出の検討

EDTA含有クエン酸緩衝液の適用性を確認するため、従来法においてTC類の回収率が特に低かった鶏卵試料を用い、TC類を含む動物用医薬品等152成分を対象に、従来法における3回目抽出に、EDTA含有クエン酸緩衝液を用いた方法にて添加回収試験を実施し、従来法での添加回収試験結果との比較を行った。その結果、図3のとおり、EDTA含有クエン酸緩衝液を用いることにより、TC類の回収率が大幅に上昇し、また、他の動物用

医薬品等についてもEDTA含有クエン酸緩衝液を用いたことによる回収率の低下等の影響がみられず、その適用性が確認できた。

### 1.3 その他(試験溶液充填バイアルの検討)

試験溶液充填バイアル中での分解、吸着等の影響を調べるため、各濃度(0.01, 0.05, 0.1, 0.5, 1, 4, 10ng/mL)の混合標準溶液を作成し、ガラスバイアル及びPPバイアルに充填し、それぞれLC/MS/MSに5µl注入し検量線を作成し比較した。その結果、図4に示すとおりガラスバイアルでは一部のニューキノロン系動物用医薬品等において検量線が2次を描いたが、PPバイアルでは良好な直線性が得られた。このことから、試験溶液充填にPPバイアルを用いることで、分解、吸着等が抑制され、これまで回収率異常がみられていた動物用医薬品等の分析精度が向上すると考え、試験溶液充填にPPバイアルを用いることにした。

以上の結果から、1回目、2回目抽出にギ酸含有アセトニトリルを、3回目抽出にEDTA含有クエン酸緩衝液を用い、試験溶液をPPバイアルに充填してLC/MS/MSを用いて定量する希釈法を作成した(図5)。

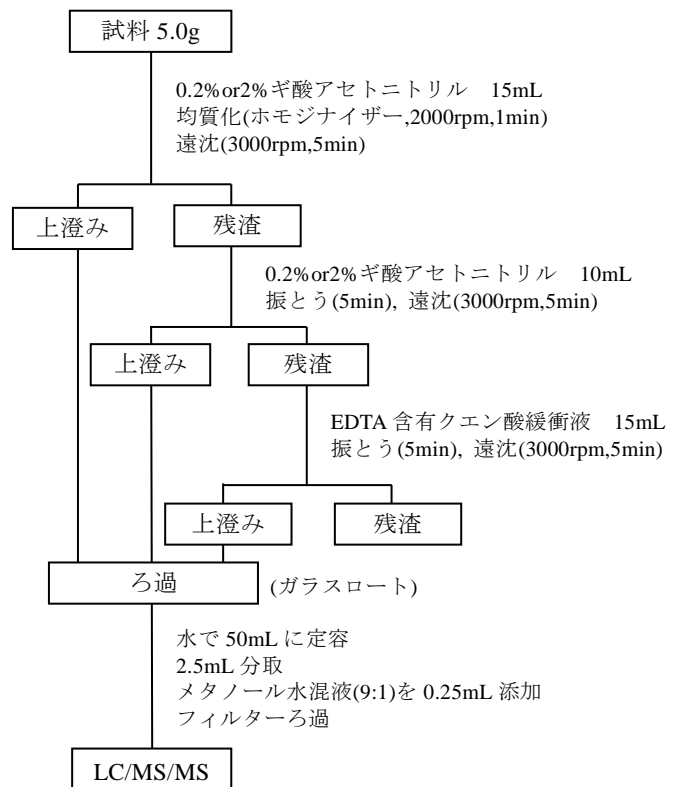


図5 希釈法分析フロー

表4 MG類, TC類の回収率及び目標値適成分数

試料	MG	LMG	OTC	CTC	TC	適成分数
フグ	78.2	113.2	86.6	74.3	100.7	146
ブリ	88.3	73.5	73.3	77.7	98.6	146
ウナギ	75.8	87.2	85.6	79.7	115.3	140
ウナギ素焼き	87.0	97.5	82.7	76.4	102.9	142
エビ	92.0	94.0	86.5	85.2	89.1	148
コイ	85.3	92.7	74.8	84.3	92.3	148
タイ	82.9	108.4	87.4	74.3	105.1	147
ニジマス	90.8	74.2	82.8	86.0	93.1	147
牛肉	61.4	20.1	78.0	72.5	115.3	140
鶏肉	74.7	86.6	84.4	73.6	109.6	142
豚肉	74.1	87.3	85.3	81.1	89.8	140
馬肉	79.3	54.5	92.8	81.7	92.5	141
馬肝臓	80.8	79.9	78.2	75.6	98.8	144
牛乳	102.3	111.4	106.1	82.7	112.6	146
卵	99.5	113.3	80.7	103.5	115.7	147

## 2 妥当性評価試験

希釈法について、15種類の畜水産物試料を用いて妥当性評価ガイドラインに準拠した妥当性評価試験を行った。表4にすべての畜水産物のMG類、TC類の回収率及び目標値(真度70~120%, 併行精度<25, 室内精度<30)適成分数を、表5に一部の畜水産物(ウナギ及び鶏卵)における妥当性評価試験結果を示す。表4, 5に示すとおり、152成分中140~148成分が目標値を満たし、また、MG類はすべての水産物で、TC類はすべての畜水産物で目標値を満たしたことから、希釈法は広範囲の動物用医薬品等及び畜水産物に適用できることが確認できた。

なお、希釈法は、脱脂操作を含む精製操作を行っていないため、試験溶液中の夾雑物の影響による選択性や再現性の低下が懸念されたが、今回用いた畜水産物試料ではこれらの現象は確認されなかった。

また、馬肝臓についても良好な結果が得られたことから、筋肉試料のみでなく内臓試料についても適用可能であることが示唆された。

さらに、今回の検討を通して約3ヶ月間にわたり約1000サンプルをLC/MS/MSに注入したが、分析カラムの劣化や感度の低下は発生しなかったことから、長期間を通しての検査業務に適用できるものと考えられる。

## まとめ

MG類及びTC類を含む広範囲の畜水産物中動物用医薬品等の迅速一斉分析法の開発を目的として、ギ酸含有アセトニトリル及びEDTA含有クエン酸緩衝液による抽出後、精製操作を行わず、そのままLC/MS/MSを用いて定量する希釈法の検討を行った。

また、希釈法について、15種類の畜水産物試料を用いてガイドラインに準拠した妥当性評価を行った結果、152成分中140~148成分が目標値を満たし、MG類はすべての水産物で、TC類はすべての畜水産物で目標値を満たす良好な結果が得られた。

従来法では、MG類及びTC類については十分な回収率が得られず、これらの個別検査を含め一連の検査に2~3日を要していたが、希釈法においては、MG類及びTC類を含む広範囲の動物用医薬品等の検査が可能であり、また、使用する溶媒等も少なく、かつ、操作が簡便なためその前処理時間も1回の試験当たり1時間半程度と非常に短いことから、畜水産物中動物用医薬品等の迅速一斉分析法として有効な手法と考えられる。

## 謝辞

本研究にあたり、検討用HPLCカラム試供品の提供をいただいた、ジーエルサイエンス株式会社に深謝します。

表5 妥当性評価試験結果

No	成分名	鶏卵				ウナギ			
		真度 (%)	精度(%)		評価	真度 (%)	精度(%)		評価
			併行	室内			併行	室内	
1	2-Acetylamino-5-nitrothiazole	102.3	4.2	4.2	○	115.7	8.4	8.4	○
2	5-Propylsulfonyl-1H-benzimidazole-2-amine	101.2	7.2	7.2	○	94.6	2.6	6.7	○
3	Albendazole	94.0	1.7	2.6	○	104.9	3.2	3.2	○
4	Azaperone	105.5	3.5	4.7	○	114.4	15.5	20.2	○
5	Altrenogest	93.0	4.4	5.9	○	104.6	14.0	14.2	○
6	Amprolium	93.6	4.8	6.3	○	96.1	4.6	6.5	○
7	Isoprothiolane	98.5	1.3	1.3	○	107.5	1.4	2.0	○
8	Isometamidium	94.5	8.4	8.4	○	88.1	15.1	15.1	○
9	Ivermectin	89.6	7.6	7.6	○	101.7	7.4	7.4	○
10	Ethopabate	99.3	1.3	2.3	○	101.6	14.9	14.9	○
11	EprinomectinB1a	97.6	6.9	6.9	○	107.3	7.4	7.4	○
12	Epoxiconazole	92.6	3.8	3.8	○	95.2	10.5	13.1	○
13	EM_8,9Z	95.6	1.8	1.8	○	101.6	2.4	2.4	○
14	EM_B1a	98.5	2.2	2.2	○	101.1	2.8	3.3	○
15	Erythromycin	104.3	1.7	1.8	○	107.3	2.4	5.3	○
16	Ciprofloxacin	102.3	2.3	2.4	○	94.5	6.0	6.9	○
17	Enrofloxacin	103.4	2.6	3.2	○	103.1	7.3	7.3	○
18	Oxacillin	105.1	7.9	7.9	○	113.1	12.1	13.0	○
19	Oxabetrinil	101.8	1.5	1.5	○	105.6	1.7	2.1	○
20	Oxytetracycline	80.7	8.5	8.5	○	85.6	4.3	4.3	○
21	Chlortetracycline	103.5	4.7	4.7	○	79.7	5.3	10.6	○
22	Tetracycline	115.7	5.6	5.6	○	115.3	4.3	4.3	○
23	Oxibendazole	85.2	6.8	7.0	○	94.7	5.9	5.9	○
24	Oxolinic acid	104.8	3.0	3.0	○	113.3	23.4	23.9	○
25	Ofloxacin	109.9	4.3	4.3	○	102.5	5.0	5.5	○
26	Olaquinox	—	—	—	×	—	—	—	×
27	Orbifloxacin	102.8	2.7	4.2	○	106.6	3.9	4.4	○
28	Ormetoprim	105.3	5.0	5.0	○	105.8	3.3	3.9	○
29	Oleandomycin	106.8	10.3	10.9	○	92.7	12.2	16.8	○
30	Carazolol	91.6	6.3	8.2	○	100.5	26.0	28.1	×
31	Carprofen	94.4	4.7	5.1	○	93.5	4.0	5.4	○
32	Xylazin	102.6	2.3	2.3	○	104.3	3.0	3.7	○
33	Cloxacillin	97.4	6.9	11.0	○	—	—	—	×
34	Cloquintocet-mexyl	106.0	2.1	2.1	○	106.9	2.8	2.8	○
35	Closantel	92.4	3.3	3.5	○	100.0	5.4	5.4	○
36	Clostebol	95.7	5.5	5.5	○	102.9	7.5	7.5	○
37	Clopidol	107.3	5.3	5.3	○	106.5	6.1	6.1	○
38	Clorsulon	96.4	10.2	11.0	○	109.7	18.8	18.8	○
39	Chlorhexidine	81.3	2.7	4.8	○	75.8	8.9	12.3	○
40	Chlormadinone	98.4	2.1	2.1	○	107.5	1.6	1.8	○
41	Ketoprofen	102.8	3.4	3.4	○	108.1	7.3	7.3	○
42	Alfa-Trenbolone	101.6	2.8	3.9	○	107.4	1.8	2.7	○
43	Beta-Trenbolone	99.7	2.8	4.0	○	109.4	3.5	3.5	○

No	成分名	鶏卵				ウナギ			
		真度 (%)	精度(%)		評 価	真度 (%)	精度(%)		評 価
			併行	室内			併行	室内	
44	Melengestrol acetate	93.7	3.3	3.3	○	109.2	2.4	3.8	○
45	Sarafloxacin	106.2	3.1	3.8	○	100.7	6.4	6.4	○
46	Diaveridine	109	3.4	3.5	○	105.3	2.1	2.2	○
47	Diclazuril	103.8	10.7	10.7	○	100.2	18.5	18.5	○
48	Dicyclanil	102.1	8.3	8.3	○	99.8	7.4	7.6	○
49	Dinitolmide	96.1	10.6	17.3	○	123.7	18.9	20	×
50	Difloxacin	98.5	3.2	4.9	○	98.3	5.3	8.1	○
51	Josamycin	98.2	4.5	4.8	○	103	4.1	5.9	○
52	Cyromazin	82.8	12.8	12.8	○	—	—	—	×
53	Neospiramycin	98	2.9	2.9	○	99.6	5.9	6.2	○
54	Spiramycin	98.3	5.1	5.1	○	109.3	30.5	32.1	×
55	Sulfaethoxypyridazine	102.4	2.2	2.2	○	106.5	7.3	7.3	○
56	Sulfaquinoxaline	103.5	6.3	8	○	118	12.7	16.2	○
57	Sulfachlorpyridazine	92.9	9.1	9.1	○	96	5.8	6.5	○
58	Sulfadiazine	103.2	4.1	4.1	○	109	6.3	6.3	○
59	Sulfadimidine	97.2	3.7	5.1	○	103	3.6	6.2	○
60	Sulfadimethoxine	99.9	1.8	4.1	○	119.2	11.5	15.6	○
61	Sulfacetamide	107.1	2.3	2.9	○	105.7	3.1	3.1	○
62	Sulfathiazole	104.9	4.2	4.9	○	102.4	5.7	6	○
63	Sulfadoxine	102.2	2.9	2.9	○	105	3.8	3.8	○
64	Sulfatroxazole	105.3	3.9	3.9	○	104.2	4.4	4.4	○
65	Sulfanitran	99.6	9.5	9.7	○	164.2	19.8	19.8	×
66	Sulfapyridine	93.2	3.2	5.6	○	108	6	6	○
67	Sulfabromomethazine	100.9	2.3	4.5	○	113.6	7.9	8.2	○
68	Sulfabenzamide	102.2	3.3	3.3	○	104.4	5.2	5.2	○
69	Sulfamethoxazole	106.8	2.9	4.8	○	108.8	5.8	5.8	○
70	Sulfamethoxypyridazine	102.2	6.5	6.5	○	97.9	6.2	6.2	○
71	Sulfamerazine	102.1	5.8	5.8	○	105.6	5	6	○
72	Sulfamonomethoxine	107	5.3	5.3	○	105.4	3.1	3.4	○
73	Sulfisozole	103.6	3	3	○	106.9	2.5	4.1	○
74	Zeranol	99.6	13.9	17.2	○	119.3	13.1	13.1	○
75	Tylosin	108.2	1.9	1.9	○	109.9	3.8	6.6	○
76	Danofloxacin	102.2	4.5	4.5	○	102.7	8	8	○
77	Thiabendazole	99.9	2	2.7	○	109.2	34	34	×
78	Thiabendazole metabolite	97.1	7	7	○	98	7.5	7.5	○
79	Tiamulin	105.5	1.2	1.3	○	111.5	1.9	4.4	○
80	Thiamphenicol	109.4	13.6	13.6	○	115.7	6.8	11.9	○
81	Tilmicosin	105.7	2.8	4.5	○	111.3	5.8	5.8	○
82	Dexamethason	101.6	4.6	8.1	○	109.2	7.5	7.5	○
83	Decoquinat	88.2	2.4	4.2	○	97.5	2.5	3.5	○
84	Temephos(Abate)	101	1.2	2.3	○	102.5	2.3	2.6	○
85	Doramectin	94.6	4.2	5.4	○	115.7	6.9	7.5	○
86	Triclabendazole	97.2	2.8	2.8	○	105.4	3.1	3.9	○



No	成分名	鶏卵				ウナギ			
		真度 (%)	精度(%)		評 価	真度 (%)	精度(%)		評 価
			併行	室内			併行	室内	
87	Triclabendazole metabolite	80.7	12.8	19.7	○	118.3	12.5	12.5	○
88	Trichlorfon(DEP)	103.4	1.3	1.6	○	110.1	3.3	3.3	○
89	Tribromsalan	89.4	6.4	7.9	○	97.7	7.3	7.3	○
90	Tripeleennamine	103.2	3	3	○	115.2	5.7	8.5	○
91	Trimethoprim	106.1	4.5	5.8	○	103.4	4.5	5.1	○
92	Toltrazuril	96.5	19.9	19.9	○	95.4	9.2	16	○
93	Tolfenamic acid	93.9	4.9	4.9	○	104.6	3	3.6	○
94	Nicarbazin	94.9	4.3	4.3	○	109.3	3.7	4	○
95	Nafcillin	95.9	1	1.5	○	103.6	2.4	3.8	○
96	Nalidixic acid	102.8	0.8	1.6	○	115.7	6.5	7.5	○
97	Nitarson(Nifuroxazide)	—	—	—	×	—	—	—	×
98	Nitroxynil	—	—	—	×	—	—	—	×
99	Novobiocin	91.6	41.9	41.9	×	106.7	16.8	18.9	○
100	Norfloxacin	105.4	5.5	5.5	○	101.4	6.4	6.4	○
101	Halofuginone_lactate	100.5	6.2	6.2	○	114.2	6.3	11.3	○
102	Bithionol	83.2	8.3	8.3	○	112	8.5	10.6	○
103	Hydrocortison	101.9	2	3.3	○	113.1	3.2	4.4	○
104	Pyrantel	99.2	4.7	4.7	○	102.6	4.9	4.9	○
105	Pyrimethamine	104.1	3.1	3.2	○	106.6	28.1	28.1	×
106	Famphur	106.7	2.8	2.8	○	110.5	1.7	4.8	○
107	Fenitrothion	101.3	14.8	14.8	○	109.1	7.3	8.3	○
108	PenicillinV	113.7	9.7	9.7	○	116	12.9	13.1	○
109	Fenobucarb(BPMC)	99.8	1.1	1.1	○	108	1.2	2.3	○
110	Praziquantel	99.7	1.8	1.8	○	108.2	2	2.9	○
111	Flamprop_methyl	92.5	2.6	3.3	○	103.4	1.4	3.6	○
112	Prifinium	98.3	4.5	5.5	○	116.8	5.7	5.7	○
113	Flunixin	92.2	1.6	1.6	○	104.2	7.2	9.2	○
114	Flubendazole	106.4	4.1	4.1	○	110.9	12.6	12.6	○
115	Flumequine	109.8	1.7	1.7	○	115.7	5.4	6.3	○
116	Prednisonlone	103.4	3.7	3.7	○	111.3	2.8	5.3	○
117	Brotizolam	103.4	2.2	2.2	○	110.4	2.8	2.9	○
118	Propaquizafop	96.6	1.8	1.8	○	101.2	2.8	2.8	○
119	Propoxur	106.6	2.7	2.7	○	115.1	4.9	6.8	○
120	Florfenicol	101.1	10.5	10.5	○	112.7	17.2	17.2	○
121	Permethrin_cis	90.1	3.7	3.8	○	92.5	2.2	4.9	○
122	Permethrin_trans	87.6	4.1	5.6	○	95.8	3.3	5.6	○
123	PenicillinG	96.6	4.5	4.5	○	108.4	7.2	9.6	○
124	Benzocaine	96.9	4	4.2	○	111.6	20.9	23.7	○
125	Boscalid	103	8	8	○	116.9	10.2	10.2	○
126	Mafoprazine	105	2.3	2.3	○	114.2	16.8	17.8	○
127	Marbofloxacin	103.2	5.5	5.5	○	107.1	4.3	4.3	○
128	Miloxacin	110.6	4.4	4.4	○	111.7	20.9	23.3	○
129	Methylprednisolone	92.3	4.3	4.6	○	101.5	3.5	7.1	○

No	成分名	鶏卵				ウナギ			
		真度 (%)	精度(%)		評 価	真度 (%)	精度(%)		評 価
			併行	室内			併行	室内	
130	Mefenpyr_diethyl	93	2	4.3	○	99.1	2.6	4.4	○
131	Mebendazole	104.1	1.4	2	○	110.8	1.5	4	○
132	Meloxicam	97.9	2.1	2.7	○	103.7	2.8	6.7	○
133	Menbutone	98.1	3	3	○	105	3.6	4.1	○
134	Moxidectin	94	4.2	5	○	110.9	6.7	7.1	○
135	Monensin	101.5	5.2	5.2	○	112.8	3.2	3.2	○
136	Morantel	100.1	4.5	4.8	○	101.8	3.7	4.4	○
137	Lasalocid	70.5	2.1	2.7	○	94.9	6.5	6.5	○
138	Rifaximin	101.3	2.9	2.9	○	103.6	4.9	5	○
139	Lincomycin	101.2	3.8	3.8	○	104.2	4	4	○
140	Levamisole	106.3	3.2	3.2	○	104.1	3.1	3.1	○
141	Robenidine	93.1	3.3	3.3	○	97.3	3.6	3.7	○
142	Warfarin	92.9	7.4	7.4	○	117.7	5.9	5.9	○
143	Glycyrrhizic_acid	—	—	—	×	—	—	—	×
144	Leucomalachite Green	113.3	1.6	2.3	○	75.8	5.1	8	○
145	Malachite Green	99.5	3.2	3.2	○	89.7	3.1	4.1	○
146	Oxfendazole	104.8	4.6	4.6	○	115.7	5.3	7.7	○
147	Febantel	104.3	1.2	1.8	○	108.8	1.5	1.5	○
148	Fenbendazole	100.3	3.2	3.2	○	105.2	2.3	2.3	○
149	Oxfendazole_sulfone	104.9	6	6	○	114.1	8	9.1	○
150	Canthaxanthin	76.2	22.2	23.2	○	93.5	10.3	10.7	○
151	Pirlimycin	102.9	9.5	9.5	○	108.5	11.4	11.4	○
152	Ractopamine	92.8	5.9	5.9	○	98.5	7.3	7.3	○
合計			147				140		

#### 文献

- 和久田俊裕, 西名武士, 増永ミキ, 飛野敏明: 熊本県保健環境科学研究所報, **35**, 39-44 (2005).
- 村川弘, 福島孝兵, 飛野敏明: 熊本県保健環境科学研究所報, **39**, 21-25 (2009).
- 「食品中に残留する農薬等に関する妥当性評価ガイドラインの一部改正について」厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知: 平成22年12月24日付け食安発第1224第1号.
- 千葉美子, 吉田直人, 高橋祐介, 濱名徹: 宮城県保健環境センター年報, **29**, 50-53(2011).
- 大熊紀子, 氏家愛子, 千葉美子, 吉田直人, 濱名徹: 宮城県保健環境センター年報, **28**, 101-102 (2010).
- 藤田和弘, 伊藤嘉奈子, 高山正彦, 丹野憲二, 村山三徳, 齊藤行生: 食品衛生学雑誌, **37**, 222-225(1996).
- 藤田和弘, 伊藤嘉奈子, 高山正彦, 丹野憲二, 村山三徳, 齊藤行生: 食品衛生学雑誌, **38**, 12-15(1997).
- 村山三徳, 齋藤行生: 食品衛生研究, **46**, 7-15(1996).
- 「食品中に残留する農薬, 飼料添加物又は動物用医薬品の成分である物質の試験法について」厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知別添: 平成 17 年 1 月 24 日付け食安発第 0124001 号.
- 久保記久子, 中村正規: 福岡市保健環境研究所報, **35**, 110-115(2009).