

畜産物中の動物用医薬品試験法の妥当性評価

佐々木 珠生 松木 司 小中 ゆかり 松室 信宏*
福田 裕

動物用医薬品 41 項目について、LC-MS/MS を用いた一斉分析法を検討し、鶏の筋肉、鶏卵、生乳を対象として妥当性評価を実施した。その結果、41 項目中 25~35 項目が「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」¹⁾(以下、ガイドライン)の評価基準を満たした。

キーワード： LC-MS/MS, 動物用医薬品, 妥当性評価

はじめに

当所では、テトラサイクリン系抗生物質については蛍光検出器付き高速液体クロマトグラフを用いた分析法^{2),3)}、その他の動物用医薬品については主に多波長検出器付き高速液体クロマトグラフ(HPLC-DAD)を用いた一斉試験法を実施してきたが、HPLC-DAD では試料中のきょう雑成分の妨害ピークが多く、HPLC 用カラムを変更して再測定を行うなど苦慮してきた。

一方、食品衛生法に定められている規格基準への適合性の判断を行う試験については、ガイドラインの定める目標値等に適合していることが求められている。

そこで、当所の HPLC-DAD 測定項目について、高感度で選択性の高い LC-MS/MS を用いた一斉試験法について検討し、ガイドラインに基づき、妥当性評価を行ったので、その結果について報告する。

方 法

1 試料

鶏の筋肉、鶏卵、生乳

2 試薬及び器具等

標準品：寄生虫用剤；5-(プロピルスルホニル)-1H-ベンズイミダゾール-2-アミン(アルベンダゾール代謝産物)は和光純薬工業(株)製の高速液体クロマトグラフ用、5-ヒドロキシチアベンダゾールは和光純薬工業(株)製の残留農薬試験用、チアベンダゾール及びレバミゾールは関東化学(株)製の残留農薬試験用、フルベンダゾールは関東化学(株)製の食品分析用を使用した。

サルファ剤；スルファキノキサリン、スルファジアジン、スルファジミジン、スルファジメトキシ、

スルファチアゾール、スルファニトラン、スルファメトキサゾール、スルファメトキシピリダジン、スルファメラジン、スルファモノメトキシは和光純薬工業(株)製の高速液体クロマトグラフ用、スルファクロルピリダジン、スルファドキシ、スルファピリジンは関東化学(株)製の食品分析用を使用した。

ホルモン剤； α -トレンボロンは林純薬工業(株)製の残留動物薬試験用、 β -トレンボロン、酢酸メレンゲステロール、ゼラノールは和光純薬工業(株)製の高速液体クロマトグラフ用を使用した。キノロン剤；エンロフロキサシン、シプロフロキサシン塩酸塩一水和物、オフロキサシン、サラフロキサシン塩酸塩、ジフロキサシン、ノルフロキサシンは和光純薬工業(株)製の高速液体クロマトグラフ用、オキシリニック酸、メシル酸ダノフロキサシン、ナリジクス酸、ピロミド酸、フルメキンは関東化学(株)製の食品分析用を使用した。オルビフロキサシンは林純薬工業(株)製の残留動物薬試験用を使用した。

エトパベート、オルメトプリム、チアンフェニコール、トリメトプリムは和光純薬工業(株)製の高速液体クロマトグラフ用、クロピドール、ナイカルバジン、ピリメタミンは関東化学(株)製の食品分析用を使用した。

標準原液：各標準品をメタノールに溶解して 100 μ g/mL とした(ナイカルバジンは 50 μ g/mL)。

検量線用混合標準溶液：各標準原液を混合し、メタノールで希釈して 1 μ g/mL とした。この溶液をアセトニトリル：水(4：6)混液で適宜希釈して検量線用混合標準溶液を調製した。

添加回収試験用混合標準溶液：添加濃度が基準値(基準値が 0.1ppm を超える場合には、0.1ppm)となるように各標準原液を混合し、メタノールで

*：現 衛生研究所生物科学部

希釈して調製した。

その他の試薬：ヘキサン，無水硫酸ナトリウムは関東化学(株)製の残留農薬試験用，アセトニトリル，メタノールは関東化学(株)製のLC/MS用，0.1%ギ酸溶液は関東化学(株)製の高速液体クロマトグラフィー用，精製水は日本ミリポア(株)製のMILLIPORE 純水装置により精製した MILLI-Q 水を使用した。

メンブランフィルター：アドバンテック東洋(株)製 DISMIC(親水性 PTFE, 13mm φ, 0.2 μm)を使用した。

オートサンプラーバイアル：La-Pha-Pack 製ポリプロピレン(PP)製スクリーバイアル(1.5mL)を使用した。

3 装置

高速液体クロマトグラフ装置は(株)島津製作所製 Prominence, 質量分析装置は(株)エービー・サイエックス製 API-4000 を使用した。

4 分析条件

(1) HPLC 条件

カラム：Ascentis Express C18(2.1 φ × 750mm, 2.7 μm) (SUPELCO 社製)

ガードカラム：Ascentis Express C18(2.1 φ × 5mm, 2.7 μm) (SUPELCO 社製)

移動相 A 液：0.1%ギ酸

移動相 B 液：アセトニトリル

グラジエント条件：0 分(B=1%)→35 分(B=100%)→40 分(B=100%)→41 分(B=1%)

平衡時間：5 分

流速：0.2 mL/min

カラム温度：40°C

試料温度：15°C

注入量：5 μL

(2) MS/MS 条件

イオン化法：ESI

測定モード：MRM

ポジティブモードとネガティブモードの測定は別々に行った。その測定条件を表 1 に示した。化合物別の測定条件は表 2 に示した。

5 試験溶液の調製

通知法「HPLC による動物用医薬品等の一斉試験法 I (畜水産物)」⁴⁾(以下、通知法 I)に準じて調製した。ただし、最終試験溶液量を 1mL から 5mL に変更した。試験溶液はメンブランフィルターでろ過して使用した。

表 1 MS/MS 測定条件

Polarity	Positive	Negative
Curtain Gas(psi)	50	20
Ion SourceGas1(psi)	50	70
Ion SourceGas2(psi)	60	50
Ion SprayVoltage(V)	5500	-4500
Temperature(°C)	600	600
Collision Gas	8	7
Entrance Potential	10	-10
Resolution Q1	Unit	Unit
Resolution Q3	Unit	Unit
Dwell Time(msec)	12	150

6 妥当性評価

ガイドラインに従い、枝分かれ実験計画により、1 日 2 併行、5 日間の添加回収試験を実施した。添加濃度は、基準値濃度とした。ただし、抗生物質・合成抗菌剤については、規格基準に示されている「食品は、抗生物質又は化学的合成品たる抗菌性物質を含有してはならない。」が適用されるため、ポジティブリストにない食品の添加濃度は通知法 I 及び通知法「HPLC による動物用医薬品等の一斉試験法 III (畜水産物)」⁵⁾で示されている定量限界濃度とした。また、α-トレンボロン、β-トレンボロンは、農薬等の残留基準告示において「不検出」とされているので、添加濃度は、施行通知⁶⁾に示されている検出限界濃度 0.002ppm とした。

結果と考察

1 LC-MS/MS 測定条件の検討

当所の HPLC-DAD 測定対象項目の 19 項目に、新たに 22 項目を加えた 41 項目について LC-MS/MS 測定条件を検討した。

まず、シリンジポンプを用いて、10 ~ 100ng/mL(ただし、スルファニトランは 1 μg/mL)の標準溶液を MS/MS へ直接注入し、プリカーサーイオン及びプロダクトイオンの選択、デクラスタリング電位(DP)、コリジョンエネルギー(CE)など化合物ごとの設定が必要なパラメーターの最適化を行った。ゼラノール、チアンフェニコール及びナイカルバジンはネガティブモード、その他の成分については、ポジティブモードで測定することとした。

イオンソースのパラメーターの最適化は Flow Injection Analysis によって行った。移動相には

表 2 化合物別の MS/MS 測定条件

分析対象化合物	極性	DP	定量イオン			定性イオン		
			MRM トランジション(m/z)	CE (V)	CXP (V)	MRM トランジション(m/z)	CE (V)	CXP (V)
5-プロピルスルホニル-1H-ベンゾイミダゾール-2-アミン	+	71	240.0 / 133.0	47	12	240.0 / 198.0	25	14
エトパペート	+	51	238.0 / 206.1	15	22	238.0 / 136.0	41	10
オキシリニック酸	+	56	262.0 / 216.0	43	16	262.0 / 160.1	57	10
オルメトプリム	+	91	275.1 / 123.1	35	12	275.1 / 81.1	59	6
クロピドール	+	81	191.8 / 101.2	37	8	191.8 / 87.1	45	14
酢酸メレンゲステロール ^{*1}	+	81	397.3 / 337.2	19	28	397.3 / 279.2	31	22
スルファキノキサリン	+	91	301.2 / 155.9	25	12	301.2 / 92.1	49	16
スルファクロルピリダジン	+	91	285.3 / 156.0	23	10	285.3 / 92.2	43	8
スルファジアジン	+	71	251.1 / 156.1	21	12	251.1 / 92.0	35	6
スルファジミジン	+	56	279.1 / 92.1	47	6	279.1 / 186.1	25	12
スルファジメトキシシ	+	61	311.2 / 156.0	33	12	311.2 / 92.1	53	6
スルファチアゾール	+	61	256.0 / 156.0	21	12	256.0 / 92.1	37	8
スルファドキシシ	+	76	311.3 / 156.1	27	10	311.3 / 92.1	45	4
スルファニトラン	+	61	336.2 / 156.0	19	12	336.2 / 198.1	25	14
スルファピリジン	+	96	250.0 / 156.1	25	10	250.0 / 92.1	39	16
スルファメトキサゾール ^{*2}	+	66	254.1 / 156.0	23	14	254.1 / 92.1	43	6
スルファメトキシピリダジン	+	86	281.1 / 156.0	23	12	281.1 / 92.1	39	8
スルファメラジン	+	61	265.0 / 156.1	27	10	265.0 / 92.1	47	16
スルファモノメトキシシ	+	61	281.1 / 155.9	25	14	281.1 / 92.1	45	6
ゼラノール	-	-75	321.2 / 321.0	-14	-5	321.2 / 277.2	-30	-3
チアベンダゾール	+	76	202.1 / 175.1	35	14	202.1 / 131.0	51	8
5-ヒドロキシチアベンダゾール	+	81	217.9 / 191.0	37	14	217.9 / 147.1	49	10
チアンフェニコール	-	-75	354.0 / 184.9	-28	-11	354.0 / 79.0	-52	-11
トリメトプリム	+	56	290.9 / 230.2	35	16	290.9 / 261.1	35	20
α-トレンボロン	+	101	271.0 / 199.3	35	14	271.0 / 115.2	95	6
β-トレンボロン	+	101	271.0 / 199.3	35	14	271.0 / 115.2	95	6
ナイカルバジン	-	-65	301.1 / 136.8	-16	-5	301.1 / 107.1	-52	-5
ナリジクス酸	+	61	233.1 / 187.0	35	16	233.1 / 104.1	59	10
ピリメタミン	+	96	249.1 / 177.0	43	12	249.1 / 198.2	55	18
ピロミド酸	+	41	289.1 / 243.0	41	18	289.1 / 201.1	53	12
フルベンダゾール	+	81	314.2 / 282.1	35	22	314.2 / 123.1	51	10
レバミゾール	+	86	205.0 / 178.1	31	12	205.0 / 91.2	61	6
ニューキノロン剤								
エンロフロキサシン	+	76	360.1 / 316.1	29	22	360.1 / 245.0	39	18
シプロフロキサシン	+	91	332.3 / 288.3	27	20	332.3 / 245.2	35	18
オフロキサシン	+	71	362.2 / 318.0	27	24	362.2 / 261.0	39	18
オルビフロキサシン	+	81	396.1 / 351.9	25	24	396.1 / 295.0	35	28
サラフロキサシン	+	101	386.3 / 342.2	27	8	386.3 / 299.1	37	20
ジフロキサシン	+	76	400.1 / 356.0	29	24	400.1 / 299.0	43	22
ダノフロキサシン	+	71	358.1 / 340.2	31	38	358.1 / 314.2	27	8
ノルフロキサシン	+	71	320.2 / 276.0	25	22	320.2 / 302.2	29	24
フルメキン	+	51	262.1 / 244.0	27	20	262.1 / 202.0	45	12

*1: 鶏の筋肉の定量イオンは 397.3 / 279.2, 定性イオンは 397.3 / 337.2

*2: 生乳の定量イオンは 254.1 / 92.1, 定性イオンは 254.1 / 156.0

0.1%ギ酸：アセトニトリル(1：1)，0.05%トリフルオロ酢酸：アセトニトリル(1：1)を用いた。標準液は，化合物ごとの最適化において低感度であった化合物(ポジティブモードではオキシリン酸，ネガティブモードではチアンフェニコール)を用いて，イオンスプレー電圧，ターボガス温度などのパラメーターの最適化を行った。移動相は0.1%ギ酸：アセトニトリル(1：1)を用いた方がポジティブモード，ネガティブモードともに高感度であったため，移動相には，0.1%ギ酸，アセトニトリル(1：1)を用いることとした。

2 バイアルの検討

ガラス製バイアルを使用して添加回収試験を実施したところ，いくつかのニューキノロン剤で回収率が真度の目標値(70~120%)を大きく超えた。ニューキノロン剤の多くが，ガラスに吸着することが報告されている⁷⁾⁻⁹⁾ことから，ガラス製

バイアルへの吸着が疑われた。そこで，ニューキノロン剤 9 項目の混合標準溶液 10 μg/mL(アセトニトリル：水(4：6))をガラス製バイアルとPP製バイアルに入れ，オートサンプラー(15°C)に保管して，12 時間後まで 3 時間ごとに測定した。PP製バイアルの測定開始時の残存率を 100%としたときの経時変化を図 1 に示した。ガラス製バイアルでは，多くのニューキノロン剤で吸着が確認されたが，PP製のバイアルでは，ほとんど変化が見られなかった。また，マトリックス添加標準溶液では，ガラス製バイアルとPP製バイアルで残存率にほとんど差がなかった。添加回収試験では，試料溶液ではきょう雑物によりニューキノロン剤のガラスへ吸着が抑制されているが，検量線用標準溶液ではガラス製バイアルへの吸着が起こり，回収率が見かけ上，高くなったと考えられる。そこで，PP製バイアルを用いることとした。

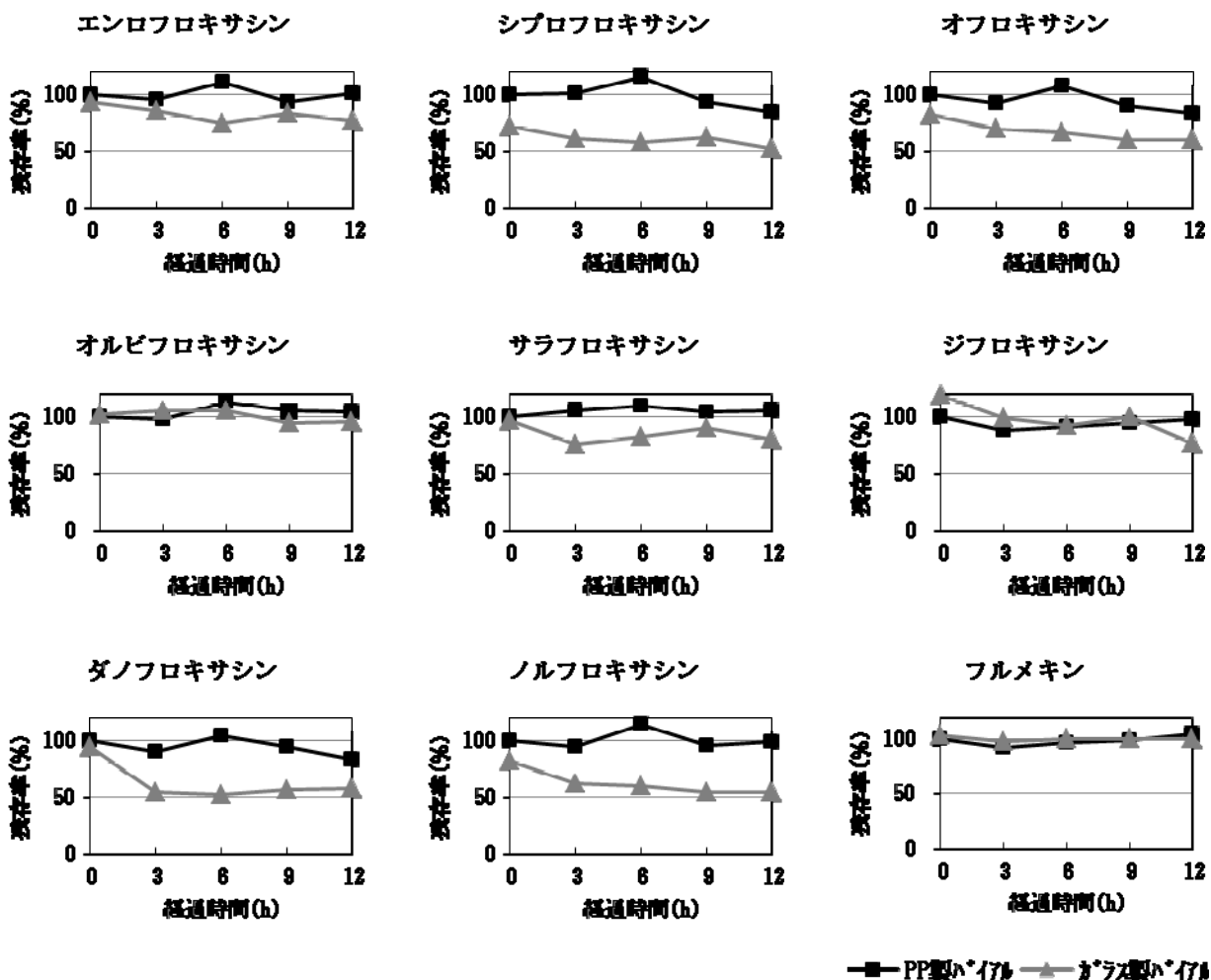


図 1 バイアルの材質の違いによる残存率の経時変化

3 検量線

検量線用混合標準溶液の希釈にガラス製の器具を使用したところ、ガラス製のバイアルと同様に、ニューキノロン剤の吸着が確認されたので、混合標準溶液の採取は PP 製チップを装着したマイクロピペットを使用し、直接 PP 製バイアルに採り、アセトニトリル：水(4：6)混液で希釈して、検量線用標準溶液を調製した。

検量線は絶対検量線を用いた。ポジティブモードの測定では、1~25ng/mL の範囲で、ネガティブモードの測定では 0.5~25ng/mL の範囲で良好な直線性(r=0.99 以上)が得られた。

4 妥当性評価

(1) 定量限界

α-トレンボロン、β-トレンボロンについては、検出限界濃度 0.002ppm を添加した試料のピークが S/N 比 \geq 10 であることを確認した。その他の項目については、定量限界濃度を添加した試料のピークが S/N 比 \geq 10 であることを確認した。

(2) 選択性

ブランク試料を試験法に従って試験し、定量を妨害するピークの有無を確認した。すべての動物用医薬品でガイドラインに規定された許容範囲内であった。

(3) 真度(回収率)及び精度

真度及び精度の結果を表 3~5 に示した。なお、表中の網掛けは、ガイドラインの目標値を満足できなかったものを示す。

5-ヒドロキシチアベンダゾールについては、鶏の筋肉、鶏卵で、真度が目標値(70~120%)を超えた。マトリックス添加標準溶液を調製し、マトリックス効果の有無を確認したところ、マトリックスによるイオン化促進効果が確認された。

スルファピリジンとナイカルバジンについては、全ての食品で真度が目標値を下回った。

試料別の真度の分布を図 2 に示した。鶏の筋肉では 5 項目、鶏卵では 15 項目、生乳では 8 項目で真度が目標値を下回った。今後、抽出方法やサロゲートの使用を検討する必要があると思われる。

(4) 評価結果

全ての性能パラメーター(定量限界、選択性、真度及び精度)が、ガイドラインの目標値等に適合している場合は○、適合していない場合は×を表 3~5 の判定の欄に示した。適合項目数は、鶏の筋肉では 35 項目、鶏卵では 25 項目、生乳では 33 項目であった。

ま と め

LC-MS/MS 一斉試験法においては、試料中のきょう雑成分の妨害ピークはなく、解析にかかる時間が短縮された。鶏の筋肉、鶏卵及び生乳について妥当性評価を行ったところ、検討対象 41 項目に対して 25~35 項目がガイドラインの評価基準を満たした。

文 献

- 1) 厚生労働省通知，食安発 1124 第 1 号，平成 22 年 12 月 24 日
- 2) 生活科学部：畜水産食品中のオキシテトラサイクリン分析法の改良，広島市衛生研究所年報，18，79~80(1999)
- 3) 佐々木珠生 他：畜水産物中のテトラサイクリン系抗生物質試験法の妥当性評価，広島市衛生研究所年報，34，57~58(2015)
- 4) 厚生労働省通知，食安発 0526001 号，平成 18 年 5 月 26 日
- 5) 厚生労働省通知，食安発 0713002 号，平成 19 年 7 月 13 日
- 6) 厚生労働省通知，食安発 1129001 号，平成 17 年 11 月 29 日
- 7) 久保記久子 他：LC-MS/MS による畜水産物中の動物用医薬品等の一斉分析(Ⅲ)，福岡市保健環境研究所報，35，110~115(2009)
- 8) 田沢悌二郎 他：LC/MS/MS による畜産食品中残留動物用医薬品等の一斉試験法，北海道立衛生研究所報，60，1~10(2010)
- 9) 内田耕太郎 他：溶液中における合成抗菌剤の安定性，大阪府立公衆衛生研究所報，52，21~26(2014)

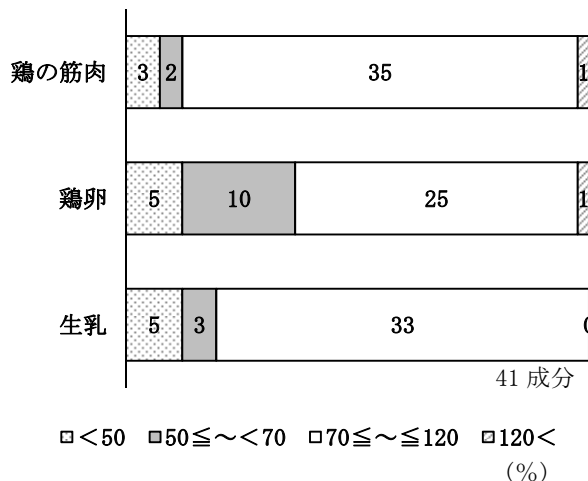


図 2 試料別真度の分布

表 3 鶏の筋肉の妥当性評価結果

品目名	基準値 (ppm)	分析対象化合物	定量限界 (ppm)	添加濃度 (ppm)	真度 (%)	併行精度 (RSD%)	室内精度 (RSD%)	判定
5-プロピルスルホニル-1H-ベンズイミダゾール-2-アミン	0.1	5-プロピルスルホニル-1H-ベンズイミダゾール-2-アミン	0.01	0.1	116.6	2.6	6.6	○
エトパベート	0.04	エトパベート	0.01	0.04	90.8	0.8	3.6	○
オキシロニック酸	0.03	オキシロニック酸	0.01	0.03	82.1	5.7	5.7	○
オルメトプリム	0.1	オルメトプリム	0.02	0.1	93.3	2.7	4.4	○
クロピドール	0.1	クロピドール	0.01	0.1	95.7	2.5	4.2	○
酢酸メレンゲステロール		酢酸メレンゲステロール	0.001	0.001	86.2	15.4	29.9	○
スルファキノキサリン	0.05	スルファキノキサリン	0.01	0.05	97.4	1.7	2.6	○
スルファクロルピリダジン		スルファクロルピリダジン	0.01	0.01	82.3	4.1	5.2	○
スルファジアジン	0.1	スルファジアジン	0.01	0.1	75.2	4.4	11.2	○
スルファジミジン	0.1	スルファジミジン	0.01	0.1	94.2	2.8	3.3	○
スルファジメトキシシ	0.05	スルファジメトキシシ	0.01	0.05	101.6	2.8	3.4	○
スルファチアゾール	0.1	スルファチアゾール	0.01	0.1	76.9	3.9	13.6	○
スルファドキシシ		スルファドキシシ	0.01	0.01	92.8	4.0	4.0	○
スルファニトラン	0.1	スルファニトラン	0.01	0.1	95.9	4.3	5.3	○
スルファピリジン		スルファピリジン	0.01	0.01	49.8	3.5	22.0	×
スルファメトキサゾール	0.02	スルファメトキサゾール	0.01	0.02	85.8	5.0	5.8	○
スルファメトキシピリダジン		スルファメトキシピリダジン	0.01	0.01	87.3	5.1	5.5	○
スルファメラジン		スルファメラジン	0.01	0.01	68.3	6.5	6.5	×
スルファモノメトキシシ	0.1	スルファモノメトキシシ	0.01	0.1	100.0	2.9	6.9	○
ゼラノール	0.002	ゼラノール	0.0005	0.002	104.6	4.3	5.6	○
チアベンダゾール	0.05	チアベンダゾール	0.01	0.025	85.2	3.1	7.7	○
		5-ヒドロキシチアベンダゾール	0.01	0.025	127.4	4.1	11.8	×
チアンフェニコール	0.05	チアンフェニコール	0.01	0.05	99.3	2.0	6.4	○
トリメトプリム	0.05	トリメトプリム	0.02	0.05	92.2	2.8	4.1	○
酢酸トレンボロン	N.D.	α-トレンボロン	0.002	0.002	78.7	12.6	18.5	○
		β-トレンボロン	0.002	0.002	75.2	8.4	13.3	○
ナイカルバジン	0.2	ナイカルバジン	0.02	0.1	24.9	3.4	4.6	×
ナリジクス酸		ナリジクス酸	0.01	0.01	90.9	6.1	6.1	○
ピリメタミン	0.05	ピリメタミン	0.02	0.05	94.5	3.1	4.9	○
ピロミド酸		ピロミド酸	0.01	0.01	76.6	3.4	4.3	○
フルベンダゾール	0.2	フルベンダゾール	0.01	0.1	100.9	1.3	2.5	○
レバミゾール	0.01	レバミゾール	0.01	0.01	88.6	4.7	7.4	○
エンロフロキサシ	0.05	エンロフロキサシ	0.01	0.025	92.0	9.1	9.1	○
		シプロフロキサシ	0.01	0.025	52.0	4.3	20.7	×
オフロキサシ	0.05	オフロキサシ	0.01	0.05	88.4	2.7	2.7	○
オルピフロキサシ		オルピフロキサシ	0.01	0.01	76.6	10.8	10.8	○
サラフロキサシ	0.01	サラフロキサシ	0.01	0.01	70.8	6.8	7.1	○
ジフロキサシ		ジフロキサシ	0.01	0.01	90.7	7.5	10.0	○
ダノフロキサシ	0.2	ダノフロキサシ	0.01	0.1	86.4	6.3	8.5	○
ノルフロキサシ	0.02	ノルフロキサシ	0.01	0.02	49.5	9.4	9.4	×
フルメキン	0.5	フルメキン	0.01	0.1	103.7	2.6	4.6	○
適合項目数								35

表4 鶏卵の妥当性評価結果

品目名	基準値 (ppm)	分析対象化合物	定量限 界(ppm)	添加濃 度(ppm)	真度 (%)	併行精度 (RSD%)	室内精度 (RSD%)	判定
5-プロピルスルホニル-1H-ベンズイミダゾール-2-アミン		5-プロピルスルホニル-1H-ベンズイミダゾール-2-アミン	0.01	0.01	84.5	5.0	8.1	○
エトパベート		エトパベート	0.01	0.01	85.4	6.3	8.6	○
オキシロニック酸		オキシロニック酸	0.01	0.01	77.0	10.3	11.0	○
オルメトプリム		オルメトプリム	0.02	0.02	88.6	3.5	4.3	○
クロピドール		クロピドール	0.01	0.01	76.3	3.8	3.8	○
酢酸メレンゲステロール		酢酸メレンゲステロール	0.001	0.001	78.2	15.7	31.2	○
スルファキノキサリン	0.01	スルファキノキサリン	0.01	0.01	58.9	6.1	20.7	×
スルファクロルピリダジン		スルファクロルピリダジン	0.01	0.01	71.8	5.7	6.3	○
スルファジアジン	0.02	スルファジアジン	0.01	0.02	48.1	4.6	19.3	×
スルファジミジン	0.01	スルファジミジン	0.01	0.01	59.7	6.4	11.5	×
スルファジメトキシシ	1	スルファジメトキシシ	0.01	0.1	89.3	3.8	4.5	○
スルファチアゾール		スルファチアゾール	0.01	0.01	50.8	6.1	15.1	×
スルファドキシシ		スルファドキシシ	0.01	0.01	77.7	5.5	6.3	○
スルファニトラン	0.02	スルファニトラン	0.01	0.02	89.5	5.6	7.6	○
スルファピリジン		スルファピリジン	0.01	0.01	49.0	14.7	66.4	×
スルファメトキサゾール		スルファメトキサゾール	0.01	0.01	70.7	3.6	12.1	○
スルファメトキシピリダジン		スルファメトキシピリダジン	0.01	0.01	72.7	2.2	16.2	○
スルファメラジン		スルファメラジン	0.01	0.01	75.3	3.6	4.9	○
スルファモノメトキシシ		スルファモノメトキシシ	0.01	0.01	77.1	5.1	6.8	○
ゼラノール	0.002	ゼラノール	0.0005	0.002	91.2	5.9	10.8	○
チアベンダゾール	0.1	チアベンダゾール	0.01	0.05	89.7	3.6	6.3	○
		5-ヒドロキシチアベンダゾール	0.01	0.05	123.9	2.1	14.2	×
チアンフェニコール		チアンフェニコール	0.01	0.01	101.0	4.5	8.5	○
トリメトプリム	0.02	トリメトプリム	0.02	0.02	89.1	3.1	6.5	○
酢酸トレンボロン	N.D.	α-トレンボロン	0.002	0.002	76.7	10.8	19.5	○
		β-トレンボロン	0.002	0.002	93.2	5.9	13.7	○
ナイカルバジン		ナイカルバジン	0.02	0.02	63.3	8.2	10.1	×
ナリジクス酸		ナリジクス酸	0.01	0.01	66.6	4.7	7.1	×
ピリメタミン		ピリメタミン	0.02	0.02	89.8	5.9	6.3	○
ピロミド酸		ピロミド酸	0.01	0.01	55.1	15.9	39.1	×
フルベンダゾール	0.40	フルベンダゾール	0.01	0.1	93.0	5.3	5.3	○
レバミゾール		レバミゾール	0.01	0.01	81.4	5.6	8.7	○
エンロフロキサシ		エンロフロキサシ	0.01	0.01	67.9	13.7	13.7	×
		シプロフロキサシ	0.01	0.01	31.0	13.4	19.6	×
オフロキサシ		オフロキサシ	0.01	0.01	59.3	12.0	13.5	×
オルピフロキサシ		オルピフロキサシ	0.01	0.01	66.9	10.1	10.1	×
サラフロキサシ		サラフロキサシ	0.01	0.01	47.6	20.0	20.0	×
ジフロキサシ		ジフロキサシ	0.01	0.01	71.5	10.3	10.3	○
ダノフロキサシ		ダノフロキサシ	0.01	0.01	62.8	11.9	11.9	×
ノルフロキサシ		ノルフロキサシ	0.01	0.01	32.5	21.5	22.0	×
フルメキン		フルメキン	0.01	0.01	72.5	4.4	5.7	○
適合項目数								25

表5 生乳の妥当性評価結果

品目名	基準値 (ppm)	分析対象化合物	定量限 界(ppm)	添加濃 度(ppm)	真度 (%)	併行精度 (RSD%)	室内精度 (RSD%)	判定
5-プロピルスルホニル-1H- ベンズイミダゾール-2-アミ ン	0.1	5-プロピルスルホニル-1H- ベンズイミダゾール-2-アミ ン	0.01	0.1	110.7	2.6	6.6	○
エトパベート		エトパベート	0.01	0.01	93.9	0.8	3.6	○
オキシロニック酸		オキシロニック酸	0.01	0.01	82.7	5.7	5.7	○
オルメトプリム		オルメトプリム	0.02	0.02	81.1	2.7	4.4	○
クロピドール	0.02	クロピドール	0.01	0.02	82.3	2.5	4.2	○
酢酸メレンゲステロール		酢酸メレンゲステロール	0.001	0.001	71.8	19.4	34.1	○
スルファキノキサリン	0.01	スルファキノキサリン	0.01	0.01	73.2	1.7	2.6	○
スルファクロルピリダジン		スルファクロルピリダジン	0.01	0.01	69.8	4.1	5.2	×
スルファジアジン	0.07	スルファジアジン	0.01	0.07	60.0	4.4	11.2	×
スルファジミジン	0.025	スルファジミジン	0.01	0.025	49.2	2.8	3.3	×
スルファジメトキシシ	0.02	スルファジメトキシシ	0.01	0.02	81.6	2.8	3.4	○
スルファチアゾール	0.09	スルファチアゾール	0.01	0.09	46.8	3.9	13.6	×
スルファドキシシ	0.06	スルファドキシシ	0.01	0.06	79.1	4.0	4.0	○
スルファニトラン		スルファニトラン	0.01	0.01	90.7	4.3	5.3	○
スルファピリジン	0.01	スルファピリジン	0.01	0.01	43.9	3.5	22.0	×
スルファメトキサゾール		スルファメトキサゾール	0.01	0.01	70.2	4.6	5.2	○
スルファメトキシピリダジ ン		スルファメトキシピリダジ ン	0.01	0.01	55.9	5.1	5.5	×
スルファメラジン		スルファメラジン	0.01	0.01	43.8	6.5	6.5	×
スルファモノメトキシシ		スルファモノメトキシシ	0.01	0.01	74.0	2.9	6.9	○
ゼラノール	0.002	ゼラノール	0.0005	0.002	96.6	4.3	5.6	○
チアベンダゾール	0.1	チアベンダゾール	0.01	0.05	89.7	3.1	7.7	○
		5-ヒドロキシチアベンダゾ ール	0.01	0.05	114.9	4.1	11.8	○
チアンフェニコール		チアンフェニコール	0.01	0.01	76.7	2.0	6.4	○
トリメトプリム	0.05	トリメトプリム	0.02	0.05	88.7	2.8	4.1	○
酢酸トレンボロン	N.D.	α-トレンボロン	0.002	0.002	73.3	12.6	18.5	○
		β-トレンボロン	0.002	0.002	72.6	8.4	13.3	○
ナイカルバジン		ナイカルバジン	0.02	0.02	22.0	3.4	4.6	×
ナリジクス酸		ナリジクス酸	0.01	0.01	86.9	6.1	6.1	○
ピリメタミン		ピリメタミン	0.02	0.02	89.5	3.1	4.9	○
ピロミド酸		ピロミド酸	0.01	0.01	80.3	3.4	4.3	○
フルベンダゾール	0.01	フルベンダゾール	0.01	0.01	92.2	1.3	2.5	○
レバミゾール		レバミゾール	0.01	0.01	83.3	4.7	7.4	○
エンロフロキサシ	0.05	エンロフロキサシ	0.01	0.025	93.2	8.1	10.7	○
		シプロフロキサシ	0.01	0.025	81.5	6.0	9.3	○
オフロキサシ		オフロキサシ	0.01	0.01	91.2	5.4	8.3	○
オルピフロキサシ	0.02	オルピフロキサシ	0.01	0.02	88.0	4.9	5.5	○
サラフロキサシ		サラフロキサシ	0.01	0.01	86.6	9.2	10.3	○
ジフロキサシ		ジフロキサシ	0.01	0.01	88.2	7.2	9.0	○
ダノフロキサシ	0.05	ダノフロキサシ	0.01	0.05	97.9	6.5	7.3	○
ノルフロキサシ		ノルフロキサシ	0.01	0.01	75.4	4.4	5.2	○
フルメキン	0.1	フルメキン	0.01	0.1	105.1	2.5	5.6	○
適合項目数								33

