

資料

LC/MS/MSによる残留動物用医薬品等の一斉試験法（畜水産物）の
適合性調査（第Ⅱ報）

下堂 蘭 栄 子 西 村 修 一 岩 屋 あまね
大小田 修 司 愛 甲 武 仁

1 はじめに

2006年5月29日に農薬等のポジティブリスト制度が施行され、一定量以上の農薬等が残留する食品の流通が禁止されることになった。この制度により残留動物用医薬品（以下「薬剤」という。）の分析対象項目が大幅に増大した。これに伴い多成分一斉試験法である「HPLCによる動物用医薬品等の一斉試験法Ⅰ（畜水産物）」（以下「一斉法Ⅰ」という。）が、厚生労働省から通知された²⁾。

当センターにおいて、この一斉法Ⅰが運用可能か、分析対象薬剤と各食品の関係において回収率や再現性などを調査し、その適合性を2006年度から3カ年計画で確認している。

今回は第Ⅰ報²⁾に続き、一斉法Ⅰに準拠した方法で輸入牛肉、本県産養殖魚類（カンパチ、ブリ、エビ、マダイ）と、新たに本県産鶏卵と養殖魚類のウナギ及び輸入ウナギの蒲焼きにおける多成分同時分析の適用の可否について、検量線の直線性、回収率及び相対標準偏差（以下「RSD」という。）を調査したので報告する。

また、残留基準値の設定によりエンロフロキサシンが、エンロフロキサシン及びその代謝物であるシプロフロキサシンの和に改定されたため、シプロフロキサシンについての新たな適合性調査を実施した。さらに、一斉法Ⅰでは試験対象薬剤にあげられていない薬剤ピロミド酸について、一斉法Ⅰの検査対象薬剤に追加できないか引続き検討を行ったので併せて報告する。

2 調査方法

2. 1 試料

鶏卵、養殖魚類のウナギ、輸入ウナギ蒲焼き、輸入牛肉、養殖魚類（カンパチ、ブリ、エビ、マダイ）

2. 2 対象薬剤

一斉法Ⅰの対象薬剤のうち、今年度当センターで入手できた57種にピロミド酸を加えた58種。その中で測定可能であった50種について適合性調査を実施した。内訳は表1に示す。

2. 3 試薬及び試液

2. 3. 1 試薬

市販の混合液：和光純薬工業㈱製の動物医薬品混合液PL-1-2及びPL-2-1（各20 μ g/mL、メタノール溶液）を用いた。

標準品：クエン酸モランテルー水和物、クロピドール、エンロフロキサシン、フルベンダゾール、ナリジク酸、オフロキサシン、ピロミド酸及びオキシリニック酸（以上関東化学㈱製）、ジクラズリル（畜水産品残留安全協議会製）、塩酸サラフロキサシン、チアベンダゾール代謝物（林純薬工業㈱製）及びシプロフロキサシン、ナイカルバジン、リファキシミン（和光純薬工業㈱製）を用いた。

有機溶媒：n-ヘキサン（残留農薬・PCB試験用）、抽出用のアセトニトリル、テトラヒドロフラン及び1-プロパノール（以上液体クロマトグラフィー用）は和光純薬工業㈱製を、LC/MS/MSの移動相用のアセトニトリル及びメタノールは関東化学㈱製のLC/MS用を使用した。

その他の試薬：無水硫酸ナトリウムは和光純薬工業㈱製の残留農薬試験用を、ギ酸は関東化学㈱製のLC/MS用を、その他の試薬については関東化学㈱製の特級を使用した。

2. 3. 2 標準原液及び混合標準液の調製

各標準品10mgを量り採り、ナイカルバジン及びジクラズリルはジメチルホルムアミドに、フルベンダゾールはテトラヒドロフランに、ピロミド酸は少量のテトラヒド

表1 薬剤ごとの保持時間及びMS/MSのパラメータ

薬剤名	Q1 (m/z)	Q3 (m/z)	R. T. *1 (min)	DP (V)	CE (V)
ポジティブモード					
レバミゾール	205.2	178.3	8.9	61	33
リンコマイシン	407.1	126.3	9.1	46	45
チアベンダゾール代謝物	218.1	190.9	9.1	61	39
ABZ-Met*2	240.0	133.3	9.3	56	43
スルファチアゾール	256.0	156.1	9.5	21	23
スルファピリジン	250.1	92.2	9.6	46	39
チアベンダゾール	202.0	175.1	9.7	51	37
スルファメラジン	265.2	156.1	9.9	21	25
トリメトプリム	291.2	230.1	9.9	36	33
オフロキサシン	362.2	318.1	10.0	56	25
オルメトプリム	275.1	123.3	10.1	61	35
トリクロロホン	259.1	122.9	10.1	111	39
シプロフロキサシン	332.1	288.3	10.1	31	25
ダノフロキサシン	358.2	340.2	10.2	56	31
エンロフロキサシン	360.3	316.1	10.4	51	27
スルファジミジン	279.3	186.1	10.5	51	25
キシラジン	221.1	90.1	10.6	51	33
スルファメトキシピリタジン	281.0	92.1	10.7	31	43
クレンプテロール	277.0	203.2	10.7	21	23
サラフロキサシン	386.1	298.9	10.8	56	43
スルファモノメトキシ	281.0	92.3	11.2	11	43
モランテル	221.1	123.3	11.0	56	49
チルミコシン	435.4	174.2	11.3	16	61
スルファクロロピリダジン	285.0	156.1	11.4	16	23
ナリジクス酸	233.1	198.1	11.4	116	35
スルファジアジン	251.1	179.2	11.4	61	43
ピリメタミン	249.0	233.2	11.4	71	41
スルファドキシ	311.0	156.2	11.7	36	31
スルファメトキサゾール	254.0	92.1	11.7	26	37
オキシロニック酸	262.2	244.1	12.2	56	25
エトパベート	238.1	206.2	12.4	11	15
スルファジメトキシ	311.0	156.2	12.5	41	31
スルファキノキサリン	301.0	156.2	12.5	41	23
チアムリン	494.3	192.3	12.8	41	31
クロピドール	192.0	100.8	12.8	96	25
スルファセタミド	215.1	187.0	13.2	56	27
フルベンダゾール	314.2	282.0	13.2	46	31
α-トレンボロン	271.1	253.1	13.6	86	31
β-トレンボロン	271.1	199.3	13.7	86	33
ピロミド酸	289.1	243.1	13.9	51	41
フェノブカルブ	208.1	95.2	14.9	26	19
エマメクチンB1a	886.3	158.3	14.9	76	59
ファミフル	325.9	93.3	15.0	21	47
リファキシミン	786.1	95.3	15.0	56	73
アレスリン	303.1	135.3	17.4	11	17
テムホス	466.9	125.2	17.5	41	43
ネガティブモード					
ANZ*3	186.0	138.8	11.7	-11	-18
スルファニトラン	333.9	135.9	13.4	-56	-48
ナイカルバジン	301.0	136.9	15.1	-6	-20
ジクラズリル	404.9	334.0	15.5	-46	-26

*1: 保持時間

*2: 5-プロピルスルホニル-1H-ベンズイミダゾール-2-アミン

*3: 2-アセチルアミノ-5-ニトロチアゾール

ロフランで溶解後メタノールに、その他の薬剤はメタノールに溶かし、メスフラスコで100mLとしたものを各標準原液とした。市販の混合液及び各標準原液をアセトニトリル：水（4：6）混液により適宜希釈して混合標準溶液とした。

2. 3. 3 試液

0.05%ギ酸は、ギ酸0.5mLを超純水で1Lにメスアップしたものをを用いた。アセトニトリル飽和ヘキサンはアセトニトリルとn-ヘキサンを30分間振とう後、1時間ほど静置したヘキサン層を用いた。

2. 4 装置

装置は第I報²⁾と同じものを使用した。

2. 5 測定条件

2. 5. 1 高速液体クロマトグラフ条件

第I報²⁾により次のとおり行った。

分析カラム；Inertsil ODS-SP（内径2.0mm，長さ100mm，粒径3μm）

移動相；アセトニトリル及び0.05%ギ酸

グラジェント条件；ポジティブイオン化では0min（アセトニトリル：0.05%ギ酸=5：95）→3min（5：95）→15min（95：5）→20min（95：5），ネガティブイオン化では0min（アセトニトリル：0.05%ギ酸=5：95）→3min（5：95）→15min（95：5）→20min（95：5）とした。流速は0.2mL/min，カラム温度は40℃，注入量は10μL。

2. 5. 2 質量分析装置の条件

イオン化法；ESI法（エレクトロスプレーイオン化法）のポジティブモード及びネガティブモード，測定モード；MRM（Multiple Reaction Monitoring）モード。薬剤ごとのプレカーサーイオン（Q1），プロダクトイオン（Q3）及びMRMの各モードにおけるDP（Declustering Poetensial）及びCE（Collision Energy）を表1に示す。ポジティブイオン化において，イオン化はESIのポジティブモード，イオンスプレー電圧；5.5kV，イオンソース温度；400℃。また，ネガティブイオン化において，イオン化はESIのネガティブモード，イオンスプレー電圧；-4.5kV，イオンソース温度；400℃。

2. 6 試験溶液の調製

一斉法Iに準拠し，以下のとおり実施した。なお，試験フローを図1に示した。

試料5.0gを量り採り，アセトニトリル30mL，アセト

ニトリル飽和ヘキサン20mL及び無水硫酸ナトリウム10gを加え、ホモジナイズした後、毎分3000回転で5分間遠心分離し、有機層を採った。得られた有機層からアセトニトリル層を分取し、残ったヘキサン層を遠心分離した残留物に加え、さらにアセトニトリル20mLを加えて激しく振り混ぜた後、毎分3000回転で5分間遠心分離した。ヘキサン層を捨て、得られたアセトニトリル層を合わせ、1-プロパノール10mLを加えて、40℃以下で乾固直前まで濃縮し、窒素ガス（純度：99.999%）で還流させ、プロパノール臭がなくなるまで完全に乾固し、溶媒を除去した。得られた残留物にアセトニトリル：水（4：6）混液1.0mLを加え、超音波処理により溶解し、アセトニトリル飽和ヘキサン0.5mLを積層して、毎分3000回転で5分間遠心分離し、アセトニトリル-水層を試験溶液とした。

また、添加回収試験を行う試料には、試料5.0gに混合標準液0.05mg/Lを1.0mL添加（各薬剤の濃度が試料中換算で0.01 μ g/g）して、直ちに試験に供した。

3 結果及び考察

3.1 MS/MS条件の検討

今回新たに追加したシプロフロキサシンについて、インフュージョン法による最適化を行い、プレカーサーイオン、プロダクトイオンを求めた。プレカーサーイオンは、プロトン化分子のm/z：332.1を抽出し、プレカーサーイオンから衝突遊離解離したイオンのうち、最も感度の高かったプロダクトイオンのm/z：288.3を定量用モニターイオンとした。次にフローインジェクションを用いて、イオンソースの最適化を行った。結果は、イオンズプレー電圧が4.5kV、イオンソース温度が500℃であったが、第1報⁹⁾の条件下でも測定に十分な強度が得られた。

今年度当センターで確保できた標準品57種及びピロミド酸を加えた58種の中で、測定に十分な強度をもつ薬剤は50種であった。各薬剤のプレカーサーイオン、プロダクトイオン、DP及びCEの条件は表1のとおり。

3.2 検量線の直線性

50種の薬剤について、各定量用イオンのピーク面積を用いて、絶対検量線を作成した。20~200ng/mL（LC/MS/MSへの注入量：0.2~2ng）の範囲で良好な直線性（相関係数 $r=0.99$ 以上）が得られた。混合標準液20ng/mLにおける各薬剤のクロマトグラムはS/N \geq 10を担保していた。

試料 5.0g

- 混合標準液添加
- アセトニトリル30mL
- アセトニトリル飽和ヘキサン20mL
- 無水硫酸ナトリウム10g
- ホモジナイズ
- 遠心分離 毎分3000回転 5分間

有機層

残留物

- ヘキサン層
- アセトニトリル20mL
- 遠心分離 毎分3000回転 5分間
- アセトニトリル層
- ヘキサン層

合わせたアセトニトリル層

- 1-プロパノール10mL
- 40℃以下で減圧濃縮

残留物

- アセトニトリル：水（4：6）1.0mL

アセトニトリル-水層

- アセトニトリル飽和ヘキサン 0.5mL積層
- 遠心分離 毎分3000回転 5分間

アセトニトリル-水層

LC/MS/MS 10 μ L注入

図1 試験フロー

得られた混合標準液のクロマトグラフからS/N=10となる濃度を定量限界として求めたところ、0.0002~0.0098mg/kg（試料中換算：0.00004~0.00196mg/kg）であった。この値は、一斉法Iに示してある各薬剤の定量限界より低い濃度であり、基準値が定量下限値を下回っていたトリクロルホンは、この値を採用することにより定量が可能になった。ただし、定量限界は装置の状態によって変化するため、今後にも必要に応じ適宜、確認していきたい。

3.3 添加回収試験

3.3.1 各食品ごとの添加回収

添加回収試験は、各試料に対して各薬剤が0.01 μ g/g（添加量として0.05 μ g）となるように添加し、5回繰り返す（ウナギ蒲焼きは3回）試験を実施し、平均回収率及びRSDを求めた（表2）。

表2 添加回収試験

薬剤名	平均回収率, % (RSD, %)							
	鶏卵	ウナギ	ウナギ蒲焼き	牛肉	ブリ	カンパチ	マダイ	エビ
ANZ*1	74.5(23.9)	74.8(5.3)	75.1(7.8)	72.3(4.4)	83.8(3.4)	72.2(5.8)	82.5(6.2)	86.0(2.0)
アレスリン	—	—	—	—	—	—	—	—
エトバベート	81.4(7.9)	79.8(3.9)	74.5(2.5)	80.3(4.1)	73.8(4.4)	72.9(3.9)	91.0(3.7)	89.2(9.5)
エマメクチンB1a	27.7(31.8)	55.9(11.2)	67.5(6.3)	87.9(3.6)	25.6(11.6)	—	20.9(21.0)	85.7(4.9)
エンロフロキサシン	85.5(13.4)	99.6(3.8)	95.8(2.2)	87.5(9.5)	97.8(1.8)	96.2(1.3)	92.9(4.8)	103.2(3.2)
オキシリニック酸	84.6(12.4)	92.4(3.8)	95.9(1.6)	89.0(8.8)	74.6(4.6)	74.2(9.2)	74.2(9.2)	99.2(3.5)
オフロキサシン	80.8(8.9)	99.6(3.0)	96.6(2.9)	80.9(16.1)	100.3(6.8)	79.2(5.6)	95.7(4.5)	93.3(6.7)
オルメトプリム	78.8(6.5)	86.5(6.9)	74.7(2.0)	71.5(4.0)	77.0(7.4)	70.0(5.9)	72.2(10.7)	73.4(4.6)
キシラジン	53.1(10.8)	72.8(10.0)	50.1(5.1)	68.4(3.1)	75.8(13.1)	24.4(32.2)	52.6(13.5)	71.2(7.8)
クレンブテロール	67.2(17.9)	87.4(4.9)	82.3(9.8)	70.7(10.5)	56.0(5.6)	66.4(11.5)	82.3(7.2)	75.6(4.1)
クロピドール	47.6(18.9)	75.9(10.5)	89.3(4.1)	92.7(13.1)	76.8(12.4)	75.6(14.0)	71.8(16.8)	75.4(16.6)
サラフロキサシン	76.7(11.8)	98.1(4.8)	91.2(8.8)	89.0(4.0)	86.0(7.3)	78.7(4.2)	97.7(4.0)	98.8(3.4)
シプロフロキサシン	76.3(12.2)	84.0(6.5)	93.7(7.6)	71.8(2.8)	76.1(7.0)	70.7(4.4)	73.6(5.9)	70.0(5.6)
ジクラズリル	45.1(21.6)	21.3(40.1)	20.5(5.6)	37.7(49.1)	29.3(39.1)	22.1(46.1)	72.8(9.0)	90.0(11.8)
スルファキノキサリン	76.9(7.4)	86.9(2.4)	75.7(1.9)	83.9(9.9)	80.7(6.5)	70.9(8.2)	91.8(10.8)	99.4(3.2)
スルファクロルピリダジン	74.8(14.3)	83.8(7.5)	82.1(3.8)	75.4(9.3)	77.8(11.8)	71.9(6.4)	75.6(5.7)	93.0(5.0)
スルファジアジン	71.2(7.4)	78.6(8.7)	79.1(8.3)	72.1(11.5)	83.4(15.7)	74.8(9.1)	74.1(8.7)	72.0(9.0)
スルファジミジン	79.0(8.6)	98.3(6.3)	70.9(5.3)	72.9(4.6)	72.0(8.3)	76.3(9.4)	88.8(11.4)	98.3(5.2)
スルファジメトキシシン	84.2(12.2)	94.6(3.8)	78.9(4.4)	88.8(6.9)	78.7(7.6)	71.8(8.0)	85.1(7.0)	100.3(4.0)
スルファセタミド	83.0(14.6)	95.6(6.3)	95.9(4.3)	97.2(11.1)	71.3(2.4)	82.0(9.3)	93.7(7.1)	91.5(4.8)
スルファチアゾール	70.4(14.1)	82.7(8.0)	73.9(3.6)	75.0(7.1)	76.8(11.1)	72.9(9.7)	77.0(4.0)	89.0(3.9)
スルファドキシシン	72.1(7.7)	94.7(4.4)	74.9(3.6)	80.3(7.9)	77.8(8.0)	76.1(9.0)	85.4(6.8)	98.1(5.7)
スルファニトラン	41.6(21.4)	96.8(2.7)	72.1(6.9)	99.6(5.9)	82.1(3.7)	75.8(7.9)	99.6(3.2)	77.2(4.2)
スルファピリジン	81.7(9.9)	95.2(3.2)	76.7(2.4)	80.6(11.0)	84.2(10.1)	80.2(11.3)	96.5(4.0)	93.0(4.4)
スルファメトキサゾール	79.6(8.4)	86.1(3.1)	71.4(1.7)	75.6(7.7)	74.6(5.9)	74.8(5.4)	78.9(5.1)	94.2(5.5)
スルファメトキシピリダジン	74.2(10.7)	91.2(8.2)	75.6(4.9)	73.6(6.9)	77.0(7.3)	80.3(7.2)	80.9(5.3)	92.9(7.0)
スルファメラジン	74.6(10.2)	93.9(2.8)	73.9(5.9)	88.2(13.7)	77.1(9.3)	81.4(4.5)	83.6(6.5)	97.6(4.7)
スルファモノメトキシシン	78.3(9.6)	86.6(8.2)	78.8(2.1)	77.5(5.9)	93.9(13.4)	73.6(5.4)	90.2(5.9)	101.0(5.0)
ダノフロキサシン	89.8(8.3)	100.0(11.7)	92.7(4.1)	89.6(7.0)	97.4(7.8)	88.8(1.7)	90.8(12.1)	100.7(5.8)
チアベンダゾール	78.2(6.5)	70.9(0.7)	76.1(1.6)	75.3(6.9)	73.6(5.4)	74.9(5.2)	73.2(9.2)	73.0(5.3)
チアベンダゾール代謝物	103.4(2.9)	106.7(2.2)	101.7(1.1)	97.4(10.0)	103.3(3.7)	101.4(2.4)	107.5(0.8)	109.5(2.3)
チアムリン	76.2(9.2)	74.9(3.5)	79.9(8.6)	86.7(6.9)	76.0(6.5)	77.4(2.8)	78.2(5.5)	78.3(3.8)
チルミコシン	100.7(6.6)	94.0(5.3)	90.6(6.4)	118.3(2.6)	100.1(5.9)	97.7(8.7)	110.4(1.6)	115.0(2.8)
テメホス	—	—	—	—	—	—	—	—
トリクロルホン	88.2(14.1)	87.6(3.1)	71.3(9.2)	67.0(11.5)	76.1(9.1)	72.8(13.0)	88.1(8.2)	63.3(11.5)
トリメトプリム	78.0(6.4)	87.8(6.8)	81.8(10.4)	75.0(10.4)	85.6(4.5)	83.2(4.5)	87.4(5.2)	71.4(6.1)
α-トレンボロン	76.3(8.7)	99.3(1.5)	92.7(4.9)	80.7(10.8)	25.7(10.2)	45.1(10.7)	75.3(3.2)	83.7(12.7)
β-トレンボロン	81.2(5.2)	102.9(3.4)	66.9(14.1)	63.2(36.5)	17.0(23.5)	21.4(20.5)	64.8(13.7)	92.1(29.4)
ナイカルバジン	15.2(14.3)	29.3(4.3)	—	—	—	14.9(13.9)	58.4(26.7)	24.1(16.0)
ナリジスク酸	71.1(16.0)	91.0(8.1)	83.6(12.2)	78.7(10.9)	78.0(7.8)	63.0(11.8)	73.9(10.8)	74.7(9.2)
ピリメタミン	79.6(12.0)	77.9(7.3)	82.6(12.2)	71.0(3.0)	77.4(7.0)	76.2(6.4)	70.3(6.9)	72.7(4.6)
ピロミド酸	73.8(13.4)	98.3(8.5)	90.9(4.7)	96.9(8.1)	67.6(6.1)	83.4(13.3)	95.4(8.7)	92.1(8.4)
ファミフル	44.4(7.4)	40.0(14.8)	36.3(21.7)	55.1(14.6)	23.7(24.2)	—	20.7(15.6)	43.9(16.8)
フェノブカルブ	48.3(8.1)	36.3(17.8)	40.9(6.8)	55.9(5.2)	10.8(13.7)	—	30.0(11.2)	63.0(9.6)
フルベンダゾール	73.0(5.2)	81.9(3.5)	86.9(2.7)	85.7(4.8)	77.2(9.5)	74.2(6.3)	83.6(6.4)	97.8(2.6)
ABZ-Met*2	84.1(9.2)	99.4(4.4)	97.3(2.3)	89.3(15.9)	104.5(3.3)	104.6(3.3)	103.9(3.8)	107.9(2.7)
モランテル	70.0(15.7)	85.0(5.4)	88.6(6.0)	81.6(8.6)	76.8(5.2)	79.7(8.0)	75.0(7.2)	75.3(9.6)
リファキシミン	77.6(8.8)	102(10.8)	83.6(13.0)	85.2(16.9)	78.6(8.8)	80.8(12.1)	76.0(17.8)	102.6(5.6)
リンコマイシン	89.2(12.5)	108.2(3.4)	97.0(1.8)	82.1(8.1)	100.9(2.0)	102.2(4.1)	100.9(3.9)	104.0(2.4)
レバミゾール	89.2(8.1)	89.3(7.9)	82.1(2.3)	89.0(11.4)	98.0(4.5)	88.8(8.1)	90.8(10.4)	75.8(7.6)
回収率: 70~120%	38	43	42	41	40	39	42	44
かつRSD:20%以内								

*1: 2-アセチルアミノ-5-ニトロチアゾール

*2: 5-プロピルスルホニル-1H-ベンズイミダゾール-2-アミン

*3: 「—」は、ピークの消失により定性・定量できなかったもの

平均回収率が70~120%, RSDが20%以内のものを良好とした。アレスリンとテメホスにおいては、今回確認した鶏卵、ウナギ及びウナギ蒲焼きについても、他の食品と同様にほとんど回収できず、第I報²⁾と同じ傾向であった。ジクラズリルにおいては、マダイ、エビで、今回は良好な結果となった。ナカルバジン、ファミフル及びフェノブカルブにおいては、第I報²⁾と同様に、検体の種類によって回収率にばらつきがあり、試料中由来のマトリクス（共存成分や溶媒などの種類）によるイオン化抑制等の影響が考えられた。

平均回収率及びRSDが良好な結果であった薬剤は、鶏卵で38種、ウナギで43種、ウナギ蒲焼きで42種、牛肉で41種、ブリで40種、カンパチで39種、マダイで42種、エビで44種であった（表2）。

今回多成分一斉分析に追加したシプロフロキサシンについては、すべての食品において、平均回収率及びRSDが良好な結果であった。

3. 3. 2 ピロミド酸の精度

一斉法Iの検査対象薬剤でないピロミド酸については、ブリ以外の食品について、第I報と同様に良好な結果であり、今回確認した鶏卵、ウナギ、ウナギ蒲焼きについても、平均回収率が70~120%と結果は良好であった。得られたデータから、2007年11月に厚生労働省より通知された妥当性評価ガイドライン³⁾を参考に、真度（回収率）、併行精度及び室内精度を求めてみると、いずれも目標値を満足する結果であった（表3）。

表3 本法におけるピロミド酸の真度と精度

	真度(回収率) (%)	併行精度 (RSD%)	室内精度 (RSD%)
鶏卵	81.6	14.3	25.2
ウナギ	94.9	8.5	8.9
牛肉	95.4	6.6	6.9
カンパチ	82.4	10.1	11.0
マダイ	93.3	6.8	6.9
エビ	91.6	6.4	7.0
目標値*	70~120	25>	30>

*：妥当性評価ガイドラインによる

3. 4 選択性

ブランク試料において操作を行い、定量に支障をきたす夾雑ピークがないか分析したが、いずれの薬剤についても定量を妨害するピークは確認されなかった。

4 まとめ

- 1) 一斉法Iに基づき、58種の薬剤について、LC/MS/MSで測定検討したところ、50種について本条件で分離・確認が可能であった。
- 2) 分離・確認が可能であった50種の薬剤について、検量線は良好な直線性であった。S/N=10となる定量限界は一斉法Iで示された定量限界より低く、基準値が定量下限値を下回っていた薬剤も定量が可能である。
- 3) 新たに追加されたシプロフロキサシンについては、平均回収率及びRSDが、すべての検体において良好な結果であり、本法において同時分析することができた。
- 4) 鶏卵、ウナギ及びウナギ蒲焼きにおいても、平均回収率及びRSDが概ね良好であり、本法の適用が可能であった。
- 5) 一斉法Iの検査対象薬剤でないピロミド酸については、妥当性評価ガイドライン³⁾を参考にして得られた真度、精度とも目標値を満足する結果であった。妥当性評価ガイドライン³⁾は、通知法以外の方法によって試験を実施しようとする場合を対象としており、抗菌性物質については、個別に残留基準値を設定している食品に関するものに限定されているが、試験法の妥当性を評価する標準的方法として参考にした。今回の結果からは、妥当性があると評価できたが、さらに対象食品をひろげて確認していきたい。
- 6) 今後は本法における測定可能薬剤を増やすとともに、個々の測定可能薬剤においても、妥当性の確認を実施することは望ましいと考えられるので、妥当性評価ガイドライン³⁾を踏まえた検証ができるようにしていきたい。

参考文献

- 1) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知；食品に残留する農薬、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（食安発第1129002号），平成17年11月29日
- 2) 西村修一，小原健二，他；LC/MS/MSによる残留動物用医薬品等の一斉試験法（畜水産物）の適合性調査（第I報），本誌，8，119~124（2008）
- 3) 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について（食安発第15001号），平成19年11月15日