

LC-MS/MS を用いた畜水産物中の動物用医薬品一斉分析における 固相抽出及びリン脂質クリーンアップ法の検討

松淵亜希子 松田恵理子

LC-MS/MS による、畜水産物中の動物用医薬品 98 成分の一斉分析法を検討した。分析法には通知法（HPLC による動物用医薬品等の一斉試験法Ⅲ）¹⁾を改良した方法を用い、動物用医薬品の固相抽出や LC-MS/MS の測定妨害成分であるリン脂質のクリーンアップについて検討し、より迅速で実用的な一斉分析法を構築した。

鶏肉、豚肉、牛肉、エビ、サケ、牛乳、鶏卵、鶏レバー、ウナギ蒲焼きの 9 種類の食品について、添加回収試験（添加濃度：0.01 µg/g, n=3）を実施したところ、サケ、鶏レバー、ウナギ蒲焼きを除いて、概ね良好な結果が得られた。添加回収試験結果に問題があったこれらの 3 食品については、マトリックス添加検量線を用いることで結果が改善された。固相抽出カラムの選択に加えて、リン脂質をクリーンアップすることは、多様な食品についての一律基準レベルの分析に対して効果的であり、本法は精度の高いスクリーニング法として有用と考えられる。

1. はじめに

動物用医薬品は畜水産物の安定供給、人獣共通感染症の防止等に貢献している一方、食品への残留による健康被害が懸念されている。

残留規制については、2006 年よりポジティブリスト制が施行し、規制対象品目が大幅に増加した（従来の 33 から約 250 品目）。動物用医薬品の残留基準は、一律基準よりも低い基準や不検出、不含有のものが比較的多い。このため、高精度で、低濃度レベルまで検出可能な一斉分析法が求められている。

近年、動物用医薬品の分析には、高感度・高選択性の特性を持つ LC-MS/MS を用いる方法が主流となっている。同機器による一斉分析法が多数報告²⁻⁶⁾され、煩雑な操作、夾雑物の影響による再現性の低下や低回収率等、様々な問題が指摘されている。

そこで問題解決の一環として、動物用医薬品の固相抽出や測定妨害成分であるリン脂質のクリーンアップについて、数種の固相カラムを比較し、効率的かつ精度の高い一斉分析法を検討したところ、良好な結果が得られたので報告する。

2. 実験方法

2.1 試料

秋田県内で販売されている鶏肉、豚肉、牛肉、

サケ、エビ、鶏卵、牛乳、鶏レバー（以下、レバー）、ウナギ蒲焼きを用いた。

2.2 対象動物用医薬品

表 1 に示した、動物用医薬品 98 成分（抗生物質 23、合成抗菌剤 33、寄生虫駆除剤 14、抗炎症薬 10、ホルモン剤 6、その他医薬品等 12）を対象とした。

2.3 試薬等

標準品は以下のメーカーの製品を用いた。

関東化学、林純薬工業、和光純薬工業、Dr.Ehrenstorfer、LKT Laboratories、MP Bio-medicals、Riedel-de Haen、Sigma Aldrich、AcuuStandard、ALEXIS、川崎三鷹製薬、テバ製薬、武田シェリング・プラウ・アニマルヘルス、インターベット、コーキン化学。

溶媒は関東化学製のアセトニトリル、メタノール、水（いずれも LC-MS 用）、和光純薬工業製のジメチルホルムアミド（特級）、ギ酸（LC-MS 用）を用いた。

試薬は和光純薬工業製のメタリン酸、ギ酸アンモニウム、酢酸アンモニウム（いずれも特級）を用いた。

標準原液及び混合標準溶液は次の方法で調製した。各標準品の溶解性に応じ、メタノール、アセトニトリル、水、ジメチルホルムアミドを

表1 対象動物用医薬品およびイオン化最適条件

成 分	RT ^{*1} (min)	Precursor ion (<i>m/z</i>)	Product ion (<i>m/z</i>)	DP ^{*2} (V)	CE ^{*3} (V)	CXP ^{*4} (V)
Benzylpenicillin	22.5	335.2	217.0	111	21	14
Oxacillin	23.7	402.2	160.1	61	19	10
Nafcillin	24.4	415.3	199.2	81	19	12
Mecillinam	18.0	326.2	167.2	81	33	10
Cloxacillin	23.7	435.9	178.0	126	35	12
Dicloxacillin	24.1	470.2	212.1	61	45	14
Cephalexin	17.1	348.1	158.1	61	15	10
Cephapirin	15.1	424.2	292.2	76	21	8
Ceftiofur	21.0	524.2	241.1	76	25	16
Nalidixic acid	22.4	233.2	215.2	46	23	14
Piromidic acid	23.9	289.2	243.2	61	43	16
Oxolinic acid	20.9	262.2	216.1	61	41	14
Flumequine	22.7	262.2	202.2	61	45	12
Sarafloxacin	17.7	386.1	342.2	86	27	10
Orbifloxacin	17.4	396.1	352.2	91	27	10
Trimethoprim	16.0	291.1	230.1	86	33	16
Ormetoprim	16.8	275.1	259.1	86	37	18
Pyrimethamine	19.1	249.1	233.0	111	39	16
Kitasamy cin	21.3	772.4	109.3	111	61	6
Tylosin	21.2	916.6	174.1	116	53	12
Oleandomycin	20.4	688.4	544.4	76	23	18
Mirosamicin	19.9	728.4	116.1	101	67	10
Josamy cin	22.1	828.6	174.0	131	47	12
Erythromycin	21.3	734.5	158.2	96	43	10
Sulfadoxine	18.9	311.2	155.9	71	27	10
Sulfadimethoxine	20.3	311.2	156.1	76	31	10
Sulfabenzamide	19.4	277.1	156.0	71	19	10
Sulfadiazine	14.6	251.1	155.9	66	23	10
Sulfamonomethoxine	18.7	281.2	156.0	66	25	10
Sulfamethoxy pyridazine	17.8	281.2	155.9	61	25	10
Sulfacetamide	12.3	215.0	156.0	61	15	10
Sulfisozole	16.6	240.0	156.0	66	21	10
Sulfathiazole	15.3	256.1	155.9	56	23	10
Sulfisoxazole	18.8	268.1	113.1	61	23	8
Sulfatroxazole	18.5	268.1	108.2	76	37	6
Sulfaquinoxaline	20.6	301.2	156.0	71	25	10
Sulfamerazine	16.4	265.1	155.9	66	25	10
Sulfadimidine	17.6	279.1	186.0	71	25	14
Sulfisomidine	14.6	279.1	124.0	56	31	8
Sulfapyridine	15.8	250.1	156.1	56	23	10
Sulfamethoxazole	18.4	254.1	156.0	61	23	10
Sulfamethizole	17.4	271.1	156.0	51	21	10
Sulfantran	22.3	336.2	156.1	76	19	10
Sulfachloropyridazine	18.3	285.1	155.9	61	23	10
Sulfabromomethazine	22.4	359.0	92.1	76	49	6
Fenbendazole	24.8	300.1	268.1	81	31	18
Oxfendazole	21.5	316.1	159.0	86	47	10
Oxfendazole sulfone	21.8	332.1	300.1	91	31	20
Praziquantel	24.5	313.2	203.1	91	25	14
Morantel	17.5	221.1	123.0	66	47	8

*1 RT; Retention time *2 Declustering potential *3 Collision Energy *4 Collision cell exit potential

表1 対象動物用医薬品およびイオン化最適条件, 続き

成 分	RT ^{*1} (min)	Precursor ion (<i>m/z</i>)	Product ion (<i>m/z</i>)	DP ^{*2} (V)	CE ^{*3} (V)	CXP ^{*4} (V)
Flubendazole	23.5	314.1	282.1	86	31	20
Oxibendazole	20.8	250.1	218.1	86	27	16
Triclabendazole	26.7	358.9	344.0	101	37	10
Triclabendazole Oxon	25.7	329.0	167.9	101	43	12
Thiabendazole	17.4	202.1	175.1	91	37	12
5-Hydroxy thiabendazole	15.9	218.0	191.0	46	37	12
Mebendazole	23.2	296.1	264.1	81	31	18
Lebamisole	14.4	205.1	178.0	91	31	12
Metronidazole	13.7	172.1	128.0	61	21	10
Dimetridazole	15.1	142.0	96.1	61	23	6
Ronidazole	14.1	201.1	140.0	51	17	10
Diaveridine	15.6	261.1	123.1	86	33	8
Clopidol	16.8	192.0	101.0	86	39	6
Benzocaine	21.4	166.0	138.0	61	21	10
Azaperone	17.7	328.1	165.0	81	31	10
Brotizolam	23.7	392.9	314.0	101	33	8
Mafoprazine	18.8	402.2	193.1	86	41	14
Xylazine	17.5	221.1	90.1	66	33	6
Tolfenamic Acid	27.4	262.1	209.1	46	39	14
Meloxicam	24.3	352.0	115.0	71	27	8
Ketoprofen	24.0	255.2	209.1	76	19	14
Carprofen	25.5	274.1	228.0	61	21	16
Flunixin	25.9	297.1	264.0	86	47	18
Hydrocortisone	23.0	363.4	121.2	81	35	8
Methylprednisolone	23.8	375.3	253.2	56	27	18
Prednisolone	22.9	361.3	147.1	66	31	10
Betamethasone	23.5	393.2	373.1	71	13	10
Dexamethasone	23.6	393.2	373.2	71	13	10
Altrenogest	25.5	311.2	227.2	96	35	16
Norgestomet	25.2	373.2	313.2	86	19	8
Chlormadinone	25.7	405.2	345.1	81	19	10
α -Trenbolone	24.2	271.2	253.2	101	29	18
β -Trenbolone	24.1	271.2	115.0	91	93	8
Clostebol	25.5	323.2	143.0	81	35	10
Melengestrol acetate	25.9	397.2	337.3	76	21	10
Virginiamycin	23.5	526.3	337.1	101	31	10
Novobiocin	26.6	613.3	189.0	76	39	12
Tiamulin Fumarate	20.9	494.4	192.1	81	29	14
Lincomycin	15.8	407.2	126.0	81	37	8
Clenbuterol	17.6	277.1	203.0	61	25	14
Menbutone	23.9	259.1	159.0	51	15	10
Tripeleminamine	18.6	256.2	211.2	46	21	14
Famphur	23.3	326.0	93.0	76	43	6
Prifinium	20.4	306.2	86.1	56	37	4
Ethopabate	21.8	238.1	206.0	46	17	14
Tetracycline	17.2	445.3	410.2	76	27	12
Doxycycline	20.2	445.3	428.2	71	25	14
Oxytetracycline	17.5	461.2	426.2	71	29	14
Chlortetracycline	19.0	479.2	444.1	71	31	14

*1 RT: Retention time *2 Declustering potential *3 Collision Energy *4 Collision cell exit potential

用いて溶解し 500 µg/mL の標準原液を調製した。これらの各標準原液を混合し 1 µg/mL となるようにアセトニトリルで調製し、混合標準液とした。

検討で用いた固相抽出カラムとリン脂質のクリーンアップカラム、各溶出条件を表 2, 3 に示す。以下 EVOLUTE ABN+ を EVOLUTE, InertSep RP-1 を RP-1, ISOLUTE SLE+ を ISOLUTE, Captiva ND Lipids を Captiva, Hybrid SPE Phospholipid を Hybrid SPE, InertSep RP-C18 を RP-C18, InertSep PSA を PSA と略称で示す。また, Hybrid SPE, MonoSpin TiO, PSA は 2 種類の溶出用溶媒を用いて検討した。各溶媒を番号で示す。

表2 固相抽出カラムと溶出条件

品名 (メーカー)	溶出条件
OasisHLB: 60 mg/3 cc (Waters)	メタノール 5 mL
EVOLUTE ABN+ : 50 µm, 100 mg (Biotage)	
InertSep RP-1: 60 mg/3 mL (GL Sciences)	
ISOLUTE SLE+ : 10 mL (Biotage)	酢酸エチル 20 mL×3回

表3 リン脂質のクリーンアップカラムと溶出条件

品名 (メーカー)	溶出条件
Captiva ND ^{Lipids} (Agilent Technologies)	70%メタノール
Hybrid SPE-Phospholipid: 30 mg/1 mL (Sigma-Aldrich)	① 1% [*] 酸/メタノール ② 1% [*] 酸アンモニウム/メタノール
MonoSpin TiO (GL Sciences)	
C18 ^{*1} : 30 mg (AISTI SCIENCE)	アセトニトリル 1 mL
InertSep RP-C18 ^{*2} : 30 mg/1 mL (GL Science)	
InertSep PSA: 50 mg/1 mL (GL Sciences)	③ 1% [*] 酸溶液: メタノール (4:1, v/v) ④ 0.05 M [*] 酸アンモニウム溶液: メタノール (4:1, v/v)

*1 シリカゲルベース *2 ポリマーベース

2.4 装置

高速液体クロマトグラフは Agilent Technologies 社製 Agilent1100, 質量分析装置は AB Sciex 社製 API4000, ハンドホモジナイザーは DREMEL 社製 MH-1000, 遠心分離機は Sigma 社製 Sigma 1-15K, 久保田製作所製 KUBOTA8850, 日立工機製 himacCR20GⅢを用いた。

2.5 LC 及び MS 条件

分析カラムは, L-column (2.1 mm i.d × 150 mm, 粒子径 3 µm, 化学物質評価研究機構製) を使用した。

移動相は A 液 0.05% ギ酸水溶液, B 液 0.05% ギ酸/メタノールを用い, グラジエント条件を 0 min (B : 5%) → 2 min (B : 20%) → 6 min (B : 20%) → 22 min (B : 95%) → 30 min (B : 95%) → 30.1 min (B : 5%) → 40 min (B : 5%) とした。カラム温度は 40 °C, 流速は 0.2 mL/min, 注入量は 10 µL とした。

イオン化法はエレクトロスプレーイオン化法 ポジティブモード (ESI Positive), 分析モードは Scheduled Multiple Reaction Monitoring (Scheduled MRM) とした。イオンスプレー電圧は 5.5 kV, イオン源温度は 500°C とした。

MRM 条件は, 50~100 ng/mL の範囲で調製した各動物用医薬品の標準溶液をシリンジポンプを用いて直接 MS/MS に注入し, 自動最適化より決定した。自動最適化の結果, 感度が最も良好であったイオンを選択し, 定量用イオンに用いた (表 1)。

α-トレンボロンと β-トレンボロンは配座異性体であり, 今回のグラジエント条件では, ピークが近接しているため, まとめて定量した。

2.6 検量線の作成

検量線は, 固相抽出カラム及びリン脂質のクリーンアップカラムの検討の際は絶対検量線を用い, 添加回収試験の際は絶対検量線に加えてマトリックス添加検量線も用いた。

絶対検量線は, 0, 0.05, 0.1, 1, 10, 20 ng/mL の濃度で作成し, 全ての成分について 0.05 または 0.1~20 ng/mL の範囲で良好な直線性 (r = 0.999 以上) が得られた。

マトリックス添加検量線は, 各試料 9 食品のブランク試験液を用いて, 0, 0.05, 0.1, 1, 10,

20 ng/mL の濃度で調製した。全ての成分について 0.05 または 0.1~20 ng/mL の範囲で良好な直線性 ($r = 0.999$ 以上) が得られた。

2.7 検出限界

検出限界は、標準液 (0.01, 0.05, 0.1, 1 ng/mL) を測定し、ピークの S/N 比が 3 以上の濃度を採用した。全成分において、0.01, 0.05, 0.1 ng/mL のいずれかであり、基準値レベルの分析に対して十分な検出感度を有していた。また、各試料 9 食品のブランク試験溶液で標準液 (0.01, 0.05, 0.1, 1 ng/mL) を調製し測定したところ、全成分で 0.05, 0.1, 1 ng/mL のいずれかであった。

2.8 試験液の調製

2.8.1 検討用の試料抽出液の調製

検討用の試料には鶏肉を用い、また通知法¹⁾を改良した方法で試料からの抽出を行った。図 1 に概略を示す。

試料 5.0 g にアセトニトリル、メタノールおよび 0.2%メタリン酸溶液 (1:1:3) 混液 75 mL を加えてホモジナイズし、遠心分離 (3000 rpm, 10 min, 0℃) を行い、上清を 100 mL メスフラスコに移した。残留物に先の混液 15 mL を加えてかき混ぜた後、上記と同様に操作して、ろ液を合わせ、100 mL に定容した。これを、高速遠心分離 (12000 rpm, 30 min, 0℃)、上清を 40℃ で約 20 mL 以下に濃縮した。

この濃縮液に試料あたり 0.01 μ g/g となるように混合標準液を添加して正確に 20 mL としたものを、固相抽出カラム検討用試験液 (以下、A 液) とし、動物用医薬品の抽出効果の検討に使用した。

2.8.2 固相抽出カラムの検討

4 種類の固相カラム、Oasis HLB, EVOLUTE, RP-1, ISOLUTE を選び、試料抽出液からの動物用医薬品の抽出効果を比較した。

(1) Oasis HLB, EVOLUTE, RP-1 による抽出

各カラムに、メタノール 5 mL, 水 5 mL を順次注入し、コンディショニングを行った後、A 液 8 mL (試料 2.0 g 相当) を負荷し、流出液を捨てた。次に水 10 mL を注入してカラムを洗浄後、メタノール 5 mL を注入し、ろ液を採取した。

次にメタノールを濃縮乾固し、20%メタノール溶液 2 mL を正確に加えて溶解し、これを試験液とした。

(2) ISOLUTE による抽出

カラムに A 液 8 mL (試料 2.0 g 相当) を負荷し、10 分間静置した。次に酢酸エチル 20 mL による溶出を 3 回繰り返し、ろ液を合わせた。ろ液を濃縮乾固後、20%メタノール溶液 2 mL を正確に加えて溶かし、これを試験液とした。

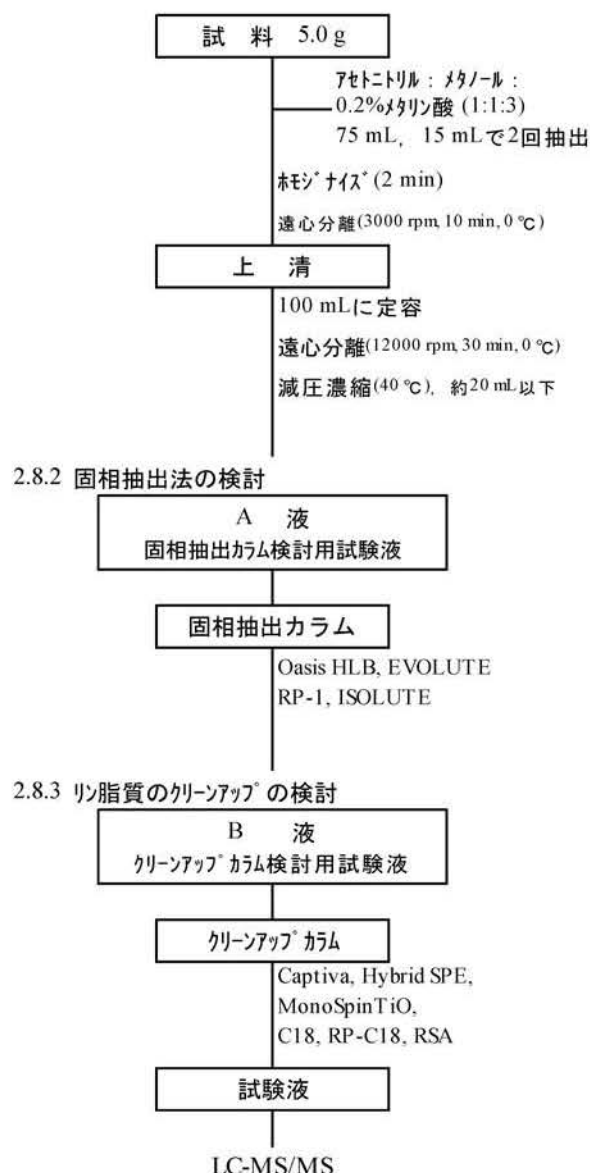


図1 検討用試験液の調製フロー

2.8.3 リン脂質のクリーンアップの検討

固相抽出で得られた試験液をさらにクリーンアップすることにした。対象はリン脂質とし、

6種類のカラム (Captiva, Hybrid SPE, MonoSpin-TiO, C18, RP-C18, PSA) について検討した。

図1に示したフローに従い、固相抽出 (Oasis-HLB) 後の溶出液をメタノールで5 mLに定容し、これに試料あたり0.01 µg/gとなるように混合標準液を添加し、クリーンアップカラム検討用試験液 (以下、B液) とした。次に各カラムによる調製法を示す。

(1) Captiva による調製

B液2 mL (試料2.0 g相当量) を分取し、濃縮乾固後、70%メタノール溶液1 mLに溶かした。この200 µL (試料0.40 g相当) をCaptivaに注入した。得られた溶出液を水で2倍に希釈したものを試験液とした。

(2) Hybrid SPE による調製

溶出には、表3に示した2種類の溶媒を検討した。B液2 mL (試料2.0 g相当量) を分取し、濃縮乾固後、各溶媒1 mLに溶解した。各溶媒でコンデショニングしたカラムに、各液250 µL (試料0.50 g相当) を負荷し、さらに各溶媒1 mLで溶出し、ろ液を合わせた。これを濃縮乾固し、20%メタノール溶液500 µLを正確に加えて溶解したものを試験液とした。

(3) MonoSpin TiO による調製

溶出には、表3に示した2種類の溶媒を検討した。B液2 mL (試料2.0 g相当量) を分取し、濃縮乾固後、各溶媒500 µLに溶解した。各溶媒でコンデショニングしたカラムに、各液50 µL (試料0.20 g相当) を負荷し、遠心分離 (5000 rpm, 2 min) を行った。得られた溶出液に水150 µLを加え、これを試験液とした。

(4) C18, RP-C18 による調製

B液2 mL (試料2.0 g相当量) を分取し、濃縮乾固後、アセトニトリル1 mLに溶かした。アセトニトリルでコンデショニングしたカラムに、250 µL (試料0.50 g相当) を負荷し、さらにアセトニトリル1 mLで溶出した。これを濃縮乾固し20%メタノール液500 µL正確に加えて溶解したものを試験液とした。

(5) PSA による調製

溶出には、表3に示した2種類の溶媒を検討した。B液2 mL (試料2.0 g相当量) を分取し、濃縮乾固後、各溶媒1 mLに溶解した。各溶媒でコンデショニングしたカラムに、各液250 µL (試料0.50 g相当) を負荷し、得られた溶出液を水で2倍に希釈し、試験液とした。

2.8.4 9食品の添加回収試験

選択した固相抽出カラムとリン脂質クリーンアップカラムを用いて、2.1で示した9食品について添加回収試験 (添加濃度: 試料あたり0.01 µg/g, n=3) を実施した。概略を図2に示す。

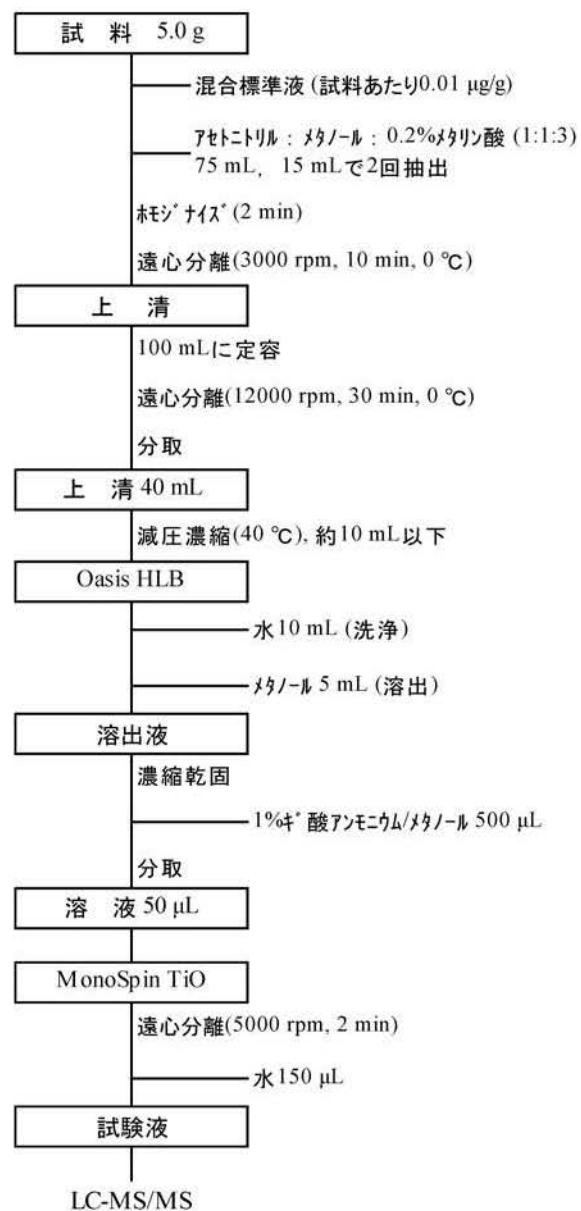


図2 添加回収試験のフロー

3 結果および考察

3.1 固相抽出カラムの検討

試料抽出液からの動物用医薬品の抽出効果を、固相カラム（Oasis HLB, EVOLUTE, RP-1, ISOLUTE）を用いて比較した。実験方法 2.8.1, 2.8.2 に従って試験液を調製し、添加回収試験（添加濃度：0.01 µg/g, n=1）を行った。その結果を図 3 に示す。Oasis HLB で約 8 割が、その他についても、約 6～7 割の成分が回収率 50～120% の範囲内にあった。特に回収率 70～120% 内の成分については、Oasis HLB で 98 成分中 62 成分と最も多く、次いで ISOLUTE であった。ISOLUTE では、吸着により回収できない成分が 9 成分みられた。これらの結果から、Oasis HLB を選択することにした。

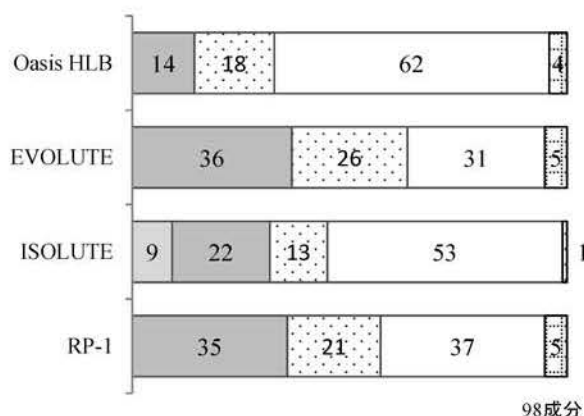


図3 固相抽出カラムの回収率(%)分布

□ No data ■ < 50% ▨ 50% ≤ - < 70%
 □ 70% ≤ - ≤ 120% ▩ > 120%

3.2 リン脂質のクリーンアップの検討

回収率の一層の改善や夾雑物の影響を減らして、より確かな分析法とするために、固相抽出後の試験液に、さらにクリーンアップを施すことにした。クリーンアップは、より高い効果と省力化を考慮して Oasis HLB 後に追加して行い、対象は畜水産物に比較的多量に含有し、イオンサプレッション等の原因となるリン脂質に絞った。

クリーンアップカラムは、リン脂質のリン酸基に特異的な親和性を持つもの 3 種（Captiva, Hybrid SPE, Mono SpinTiO）、リン脂質の疎水性部分やリン酸基のアニオン部分と親和性があり、他の脂質類の除去も期待できるもの 3 種（C18, RP-C18, PSA）の計 6 種を検討することにした。

実験方法 2.8.3 に従って、各試験液を調製し、添加回収試験（添加濃度：0.01 µg/g, n=1）により、クリーンアップ効果を比較した。その結果を図 4 に示す。

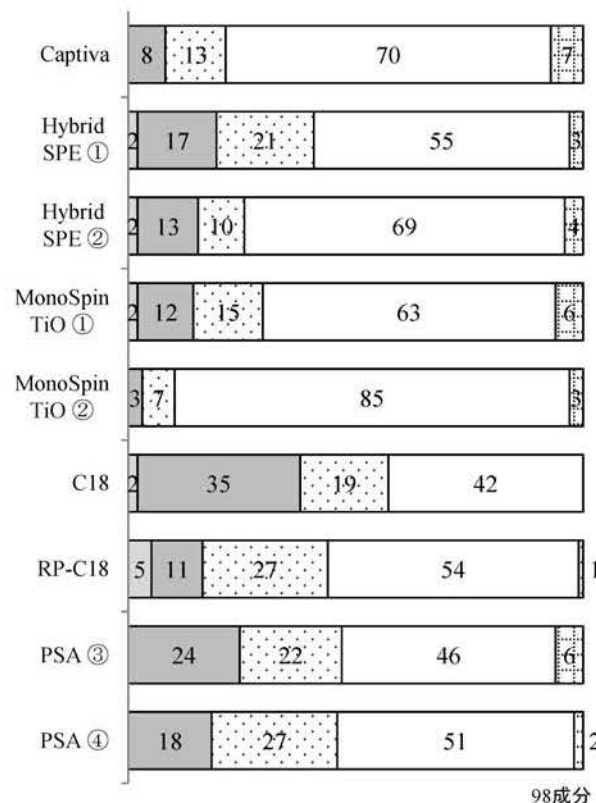


図4 クリーンアップカラムの回収率(%)分布

□ No data ■ < 50% ▨ 50% ≤ - < 70%
 □ 70% ≤ - ≤ 120% ▩ > 120%

最も良好な結果が得られたのは、MonoSpin TiO を用い、1%ギ酸アンモニウム/メタノールで溶出した場合であり、92 成分が回収率 50～120% を満たした。全体的にみると、リン脂質以外の脂質に対しても効果を期待した C18, RP-C18, PSA に比べ、Captiva, Hybrid SPE, MonoSpin TiO の効果が高かった。Hybrid SPE と MonoSpin TiO については、2 種類の溶媒で溶出を行ったが、いずれも塩を加えた 1%ギ酸アンモニウム/メタノールで溶出した方が良好な結果であった。

MonoSpin TiO は、モノリス型シリカゲルにコーティングされた二酸化チタンがリン酸基を選択的に捕捉するため、構造中にリン酸基を含む除草剤の抽出等に用いられている⁷⁻⁸⁾。また形状がスピンカラムであり、従来のカートリッジタイプの固相カラムと比較して操作が簡単で、必要な試料量も極少量で済み、迅速な多検体の処理が可能である等の利点がある。Hybrid SPE も、

MonoSpin TiO と同様に、シリカゲルにコーティングされたジルコニアがリン酸基を捕捉するため、リン酸化ペプチドの精製や血中のリン脂質の除去等に用いられている⁹⁻¹⁰⁾。本研究では、これらのカラムを畜水産物中のリン脂質の除去に応用したが、結果は概ね良好であり、効果的なクリーンアップ法であると考えられた。

図5に Oasis HLB 単独と MonoSpin TiO を併用した時の回収率の分布を示す。MonoSpin TiO を用いることによって、回収率の分布が 70~120% に収束した。また、試験液の Q3 スキャンのクロマトグラムを図6に示す。クリーンアップを追加することにより、15~24分に溶出するリン脂質等の妨害ピークの低減が確認できた。

以上の結果から、Oasis HLB の後に MonoSpin-TiO (溶出液: 1%ギ酸アンモニウム/メタノール) を用いることにし、他の食品についても検討した。

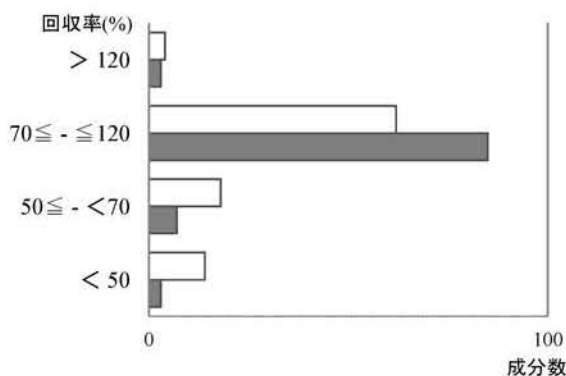


図5 MonoSpin TiO併用時の回収率分布の変化
□ Oasis HLB単独
■ MonoSpin TiO併用 (1%ギ酸アンモニウム/メタノール)

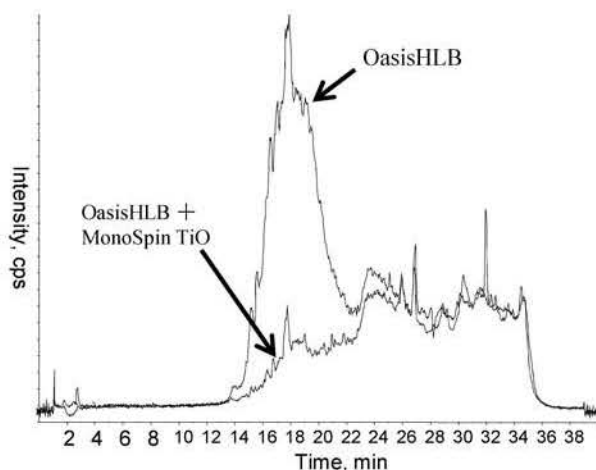


図6 Q3スキャンクロマトグラフ
(ポジティブモード, m/z : 100-1000)

3.3 添加回収試験

2.1 に示した 9 食品について、実験方法 2.8.4 に従って、添加回収試験 (添加濃度: $0.01\mu\text{g/g}$, $n=3$) を行った。回収率は絶対検量線とマトリックス添加検量線を用いて求めた。各食品の回収率の分布を図7に、添加回収試験結果を表4に示す。絶対検量線で定量した場合、鶏肉、豚肉、牛肉、エビ、牛乳、鶏卵において、回収率 50~120% 内の成分が約 8 割を超え、良好な結果であった。サケ、レバー、ウナギ蒲焼きについては、マトリックス添加検量線を用いることで回収率を改善することができた。

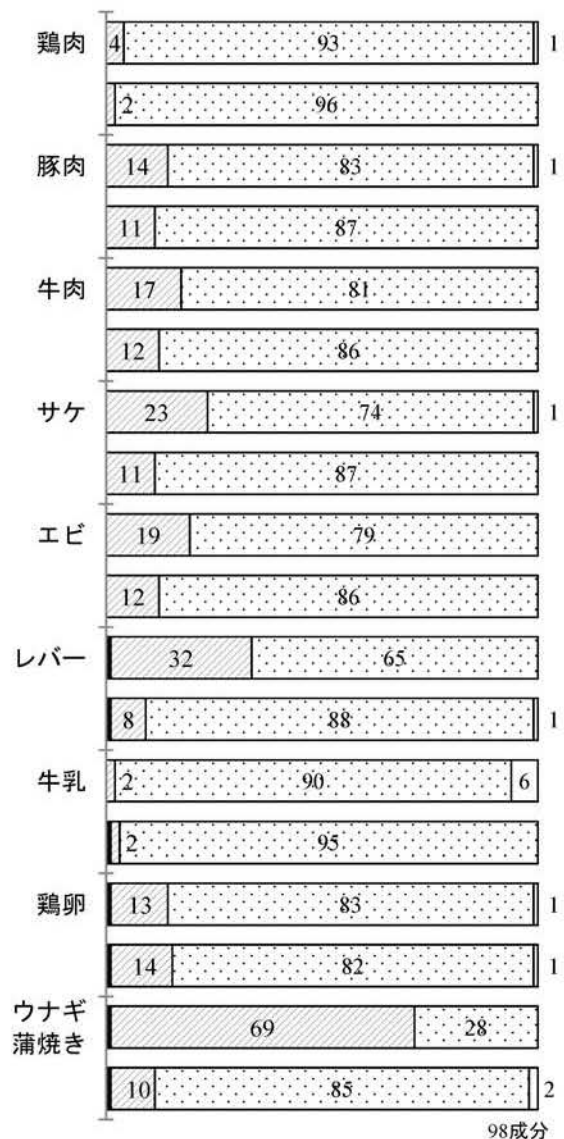


図7 添加回収率試験の回収率 (%) 分布

■ No data □ <50%
▒ 50% ≤ - ≤120% □ >120%

表4 9食品の添加回収試験結果（鶏肉、牛乳、エビ、サケ、豚肉）

成 分	鶏肉		牛乳		エビ		サケ		豚肉	
	平均(%) / RSD(%)		平均(%) / RSD(%)		平均(%) / RSD(%)		平均(%) / RSD(%)		平均(%) / RSD(%)	
	絶対	マトリックス	絶対	マトリックス	絶対	マトリックス	絶対	マトリックス	絶対	マトリックス
Benzylpenicillin	88.9 / 2.2	60.4 / 2.1	78.4 / 12.1	56.3 / 11.1	79.6 / 2.3	81.3 / 3.4	73.3 / 3.9	59.0 / 3.5	68.4 / 2.6	67.7 / 4.8
Oxacillin	93.7 / 7.8	89.7 / 7.1	85.6 / 11.9	76.5 / 11.3	104.0 / 2.4	100.9 / 0.9	78.5 / 1.9	94.4 / 2.0	103.5 / 4.1	93.6 / 6.4
Nafcillin	97.4 / 2.9	74.5 / 2.2	56.6 / 19.7	40.7 / 18.5	113.0 / 1.4	99.0 / 2.5	74.1 / 3.2	86.6 / 1.1	101.8 / 2.3	92.0 / 2.3
Mecillinam	80.3 / 7.3	89.8 / 7.0	90.2 / 4.3	85.9 / 3.9	66.8 / 6.2	71.3 / 5.4	77.0 / 1.9	85.9 / 1.9	72.4 / 6.0	69.9 / 5.7
Cloxacillin	90.3 / 7.0	74.8 / 6.9	76.0 / 9.3	68.4 / 7.8	92.6 / 1.1	87.6 / 1.2	79.2 / 3.6	79.6 / 0.9	96.3 / 3.5	77.7 / 2.8
Dicloxacin	85.1 / 5.8	80.2 / 5.5	71.2 / 10.7	64.1 / 5.6	83.9 / 5.5	104.1 / 5.4	62.0 / 0.7	80.0 / 1.2	77.7 / 4.8	80.9 / 3.2
Cephalexin	74.0 / 10.6	82.5 / 8.4	88.8 / 7.3	110.2 / 7.3	73.4 / 8.9	71.8 / 14.1	58.6 / 2.3	59.8 / 2.1	64.7 / 7.5	61.1 / 7.4
Cephapirin	66.2 / 14.8	73.1 / 12.4	84.3 / 4.9	92.0 / 4.3	84.0 / 4.3	96.8 / 4.6	86.8 / 4.2	95.9 / 3.9	78.3 / 6.6	91.4 / 6.2
Ceftiofur	82.8 / 10.1	88.2 / 9.9	91.7 / 4.0	88.4 / 2.8	94.3 / 2.6	90.3 / 2.5	83.2 / 2.2	83.6 / 4.5	84.2 / 4.2	85.6 / 4.0
Nalidixic acid	63.4 / 6.7	56.8 / 9.6	64.6 / 9.3	54.8 / 9.6	44.1 / 10.2	49.5 / 11.4	41.5 / 4.6	42.4 / 4.5	21.6 / 31.5	24.3 / 34.8
Piromidic acid	61.2 / 11.3	51.6 / 11.4	57.6 / 10.9	49.7 / 9.4	39.8 / 12.6	42.7 / 12.0	35.7 / 7.1	40.1 / 7.1	19.2 / 26.9	20.6 / 35.0
Oxolinic acid	69.9 / 6.9	57.8 / 8.5	76.6 / 6.9	63.8 / 3.8	37.6 / 11.6	51.8 / 8.3	36.1 / 3.1	55.5 / 2.8	27.5 / 27.6	37.6 / 33.0
Flumequine	77.2 / 2.3	64.0 / 7.9	76.3 / 13.3	63.3 / 6.4	44.6 / 11.2	53.2 / 11.4	36.7 / 3.3	50.6 / 2.0	26.1 / 26.2	30.8 / 31.6
Sarafloxacin	93.7 / 6.8	53.9 / 10.3	142.7 / 4.9	56.9 / 3.6	62.1 / 13.5	40.5 / 17.7	84.7 / 4.8	35.7 / 6.0	50.5 / 30.1	16.2 / 40.8
Orbifloxacin	62.3 / 6.9	66.9 / 7.9	77.2 / 16.0	63.8 / 16.8	44.0 / 11.1	65.3 / 10.8	53.1 / 3.9	64.3 / 4.4	40.7 / 20.1	44.3 / 24.0
Trimethoprim	85.7 / 5.1	87.8 / 5.3	100.5 / 5.3	84.8 / 5.7	69.3 / 5.1	86.8 / 4.6	82.2 / 4.2	88.6 / 4.2	86.4 / 4.9	93.3 / 4.8
Ormetoprim	75.0 / 4.9	83.2 / 5.2	92.4 / 7.6	84.9 / 7.8	58.9 / 5.7	83.5 / 5.7	75.6 / 2.4	86.3 / 2.4	81.9 / 5.1	90.1 / 5.1
Pyrimethamine	70.1 / 4.9	83.3 / 6.1	97.9 / 0.9	84.9 / 1.0	38.7 / 2.9	60.0 / 2.7	55.6 / 5.4	68.3 / 5.2	76.8 / 2.9	81.4 / 2.9
Kitasamycin	70.0 / 4.3	75.4 / 6.3	69.5 / 10.4	80.4 / 4.9	47.9 / 5.3	47.8 / 6.4	56.9 / 4.6	72.5 / 3.2	63.3 / 2.9	69.8 / 2.2
Tylosin	72.6 / 4.1	63.4 / 4.9	68.7 / 14.8	66.5 / 13.6	46.5 / 5.3	45.1 / 4.2	46.8 / 3.8	49.3 / 3.8	51.5 / 3.8	51.2 / 3.9
Oleandomycin	83.6 / 5.2	87.1 / 5.1	97.3 / 4.5	91.5 / 4.1	87.9 / 2.5	113.7 / 2.3	84.1 / 4.5	89.4 / 6.0	83.1 / 4.6	102.7 / 4.6
Mirosamicin	63.9 / 9.3	81.2 / 9.8	94.7 / 4.4	89.3 / 4.4	64.5 / 2.7	85.9 / 2.7	69.8 / 0.9	88.2 / 0.9	81.5 / 5.8	83.4 / 5.7
Josamycin	77.4 / 3.0	85.8 / 3.0	81.9 / 6.0	75.7 / 6.0	54.2 / 6.5	58.4 / 6.1	57.4 / 2.0	80.7 / 1.9	55.3 / 2.0	72.6 / 1.9
Erythromycin	25.2 / 21.4	27.4 / 24.6	5.0 / 2.1	- / -	66.8 / 6.7	79.6 / 6.5	45.9 / 9.9	94.5 / 5.3	22.7 / 22.1	46.6 / 21.9
Sulfadoxine	99.3 / 3.0	81.5 / 3.3	94.8 / 3.6	71.0 / 4.0	83.2 / 5.4	96.1 / 5.9	70.3 / 2.6	77.1 / 2.6	85.1 / 5.0	86.6 / 4.5
Sulfadimethoxine	86.2 / 4.7	78.7 / 5.3	95.8 / 4.1	80.9 / 3.3	75.5 / 5.9	81.0 / 5.7	70.5 / 9.1	78.4 / 9.0	98.8 / 4.0	92.1 / 3.9
Sulfabenzamide	71.8 / 3.3	89.5 / 3.7	87.5 / 3.6	79.1 / 3.8	47.8 / 7.5	94.2 / 4.6	43.2 / 0.4	61.1 / 0.4	73.0 / 2.7	82.4 / 2.7
Sulfadiazine	88.1 / 6.7	85.7 / 8.1	85.0 / 2.4	75.9 / 1.9	80.9 / 11.9	98.0 / 11.7	72.6 / 6.2	87.9 / 6.1	76.4 / 4.3	88.2 / 4.3
Sulfamonomethoxine	104.1 / 6.6	80.5 / 6.6	106.3 / 1.8	69.4 / 1.6	74.8 / 5.3	94.2 / 4.5	63.3 / 3.7	72.6 / 3.6	83.3 / 5.3	85.0 / 5.3
Sulfamethoxypyridazine	92.6 / 4.5	78.0 / 5.2	81.7 / 3.4	72.3 / 3.4	65.9 / 6.0	87.1 / 5.8	57.6 / 4.2	70.3 / 4.2	73.4 / 5.9	80.0 / 5.8
Sulfacetamide	52.0 / 1.9	88.2 / 5.6	86.7 / 4.2	79.1 / 5.9	70.9 / 5.4	86.8 / 5.3	68.5 / 2.4	79.9 / 2.2	85.3 / 3.3	94.5 / 3.2
Sulfisoxazole	80.5 / 2.5	84.4 / 2.9	83.8 / 1.6	76.9 / 3.2	52.7 / 10.1	94.3 / 6.5	58.2 / 2.5	77.9 / 2.5	74.5 / 4.8	89.0 / 4.8
Sulfathiazole	84.0 / 5.5	84.6 / 5.1	75.8 / 2.2	72.0 / 2.3	74.1 / 7.1	97.3 / 6.9	66.8 / 6.0	72.9 / 5.2	82.4 / 4.5	88.9 / 4.3
Sulfisoxazole	83.4 / 3.1	103.3 / 3.2	88.1 / 3.8	75.0 / 3.8	68.6 / 7.5	100.0 / 7.3	61.8 / 1.0	76.6 / 1.0	85.3 / 3.7	89.9 / 1.6
Sulfatroxazole	78.1 / 3.7	90.7 / 3.2	88.0 / 7.2	79.6 / 7.2	56.7 / 10.4	90.2 / 8.0	59.7 / 2.5	78.3 / 2.5	81.9 / 5.7	91.6 / 1.8
Sulfaquinoxaline	93.1 / 4.3	74.6 / 4.6	87.8 / 4.2	71.6 / 4.2	73.4 / 6.0	86.3 / 5.9	55.3 / 2.0	63.4 / 2.1	83.0 / 4.7	82.0 / 4.7
Sulfamerazine	100.8 / 6.6	78.8 / 6.7	75.5 / 7.8	79.6 / 7.9	71.9 / 5.7	92.8 / 5.0	66.4 / 3.4	78.3 / 3.4	75.9 / 5.0	88.3 / 5.0
Sulfadimidine	92.1 / 6.5	73.7 / 7.1	90.0 / 4.6	73.0 / 4.6	77.9 / 5.7	90.6 / 5.6	66.2 / 3.6	74.7 / 3.7	79.0 / 4.2	80.4 / 4.3
Sulfisomidine	77.9 / 6.3	82.9 / 6.8	82.8 / 2.6	80.6 / 2.7	66.0 / 7.6	92.9 / 7.3	61.8 / 4.5	81.5 / 4.5	73.8 / 5.4	90.8 / 5.4
Sulfapyridine	85.2 / 5.9	75.0 / 7.8	76.2 / 6.7	76.1 / 6.7	78.6 / 4.3	99.8 / 4.3	66.1 / 3.0	78.8 / 3.4	78.5 / 2.0	94.1 / 2.0
Sulfamethoxazole	82.5 / 4.5	88.9 / 4.6	91.5 / 3.7	79.0 / 3.7	59.8 / 11.5	87.7 / 11.0	63.2 / 2.1	75.2 / 2.1	84.2 / 6.1	90.5 / 6.0
Sulfamethizole	71.7 / 5.4	74.1 / 5.9	79.7 / 5.2	70.6 / 5.2	63.5 / 4.9	90.4 / 4.7	48.6 / 4.5	56.4 / 4.5	74.8 / 3.7	79.4 / 3.7
Sulfanitrin	75.4 / 4.4	92.7 / 4.8	89.2 / 2.4	83.4 / 2.6	42.5 / 17.0	82.9 / 15.6	47.1 / 1.5	57.9 / 0.9	76.4 / 1.9	88.2 / 1.9
Sulfachloropyridazine	87.4 / 3.5	77.2 / 3.8	91.0 / 6.4	67.9 / 6.4	55.0 / 6.4	85.4 / 6.4	57.6 / 2.2	67.4 / 2.1	74.6 / 5.3	79.1 / 5.2
Sulfabromomethazine	90.5 / 4.7	77.8 / 5.1	90.2 / 5.2	75.0 / 5.2	68.3 / 4.9	80.3 / 5.5	51.6 / 7.1	60.7 / 4.4	78.9 / 3.1	87.0 / 3.1
Fenbendazole	60.6 / 5.0	62.5 / 5.0	93.1 / 4.2	88.5 / 4.2	13.3 / 9.4	17.5 / 8.5	36.5 / 20.5	44.6 / 16.1	70.8 / 3.3	81.3 / 2.6
Oxfendazole	95.7 / 4.9	82.3 / 6.7	86.7 / 10.7	94.1 / 11.1	82.3 / 4.5	86.4 / 4.2	82.6 / 3.2	91.9 / 3.2	88.5 / 4.8	91.8 / 4.2
Oxfendazole sulfone	96.0 / 5.3	93.6 / 6.4	99.3 / 4.2	85.1 / 4.1	63.0 / 12.3	73.0 / 9.0	71.1 / 3.5	80.8 / 3.5	82.7 / 5.1	86.1 / 5.1
Praziquantel	99.0 / 1.5	86.1 / 1.8	102.5 / 5.4	87.6 / 5.3	77.5 / 3.0	86.7 / 3.1	61.0 / 1.5	72.7 / 1.1	85.7 / 4.5	94.4 / 4.3

添加濃度: 0.01 µg/g, n=3

- : 不検出

表4 9食品の添加回収試験結果（鶏肉、牛乳、エビ、サケ、豚肉），続き

成 分	鶏肉		牛乳		エビ		サケ		豚肉	
	平均(%) / RSD(%)		平均(%) / RSD(%)		平均(%) / RSD(%)		平均(%) / RSD(%)		平均(%) / RSD(%)	
	絶対	マトリックス	絶対	マトリックス	絶対	マトリックス	絶対	マトリックス	絶対	マトリックス
Morantel	91.8 / 4.7	82.1 / 7.0	95.3 / 3.1	82.1 / 2.0	78.4 / 2.4	87.2 / 2.8	86.6 / 1.9	92.0 / 1.2	83.8 / 4.9	87.0 / 5.6
Flubendazole	86.7 / 4.1	73.6 / 4.6	98.6 / 6.6	81.7 / 6.2	61.9 / 3.3	62.4 / 3.1	64.6 / 8.0	69.6 / 7.9	86.7 / 3.9	89.3 / 3.3
Oxibendazole	79.5 / 5.6	87.2 / 5.5	92.3 / 5.7	88.4 / 5.7	55.2 / 6.6	67.8 / 6.4	61.4 / 5.8	82.0 / 5.6	78.6 / 4.3	88.3 / 4.2
Triclabendazole	40.3 / 5.3	32.8 / 15.3	64.4 / 7.9	54.4 / 7.9	5.3 / 14.1	9.4 / 10.3	24.9 / 24.7	42.8 / 25.1	39.7 / 2.6	67.6 / 2.7
Triclabendazole Oxon	47.5 / 7.9	65.1 / 7.9	74.4 / 6.7	75.7 / 6.7	5.8 / 7.4	9.3 / 13.5	18.1 / 18.9	26.4 / 21.2	37.9 / 8.4	68.1 / 7.2
Thiabendazole	80.6 / 2.6	86.9 / 2.8	89.1 / 10.4	83.4 / 10.5	97.0 / 6.8	51.7 / 6.8	101.7 / 1.2	99.7 / 1.1	115.0 / 3.8	102.7 / 3.9
5-Hydroxythiabendazole	69.8 / 4.1	85.6 / 4.4	79.0 / 6.9	74.1 / 6.9	80.7 / 6.7	92.5 / 4.0	82.2 / 3.6	82.9 / 3.5	106.3 / 4.5	97.0 / 4.5
Mebendazole	93.4 / 3.4	80.0 / 4.0	99.9 / 5.2	85.4 / 5.1	65.9 / 3.9	71.7 / 3.9	66.7 / 8.0	78.8 / 7.8	85.3 / 5.1	90.4 / 5.4
Lebamisole	92.2 / 4.6	84.4 / 6.5	104.6 / 3.9	88.8 / 3.7	81.2 / 4.3	85.5 / 4.2	82.8 / 3.9	91.5 / 3.8	84.4 / 4.7	90.2 / 4.7
Metronidazole	89.0 / 4.7	80.3 / 5.4	94.9 / 4.9	85.5 / 5.3	69.0 / 3.8	86.4 / 3.7	75.9 / 4.0	91.4 / 4.0	75.2 / 2.3	88.6 / 2.3
Dimetridazole	53.7 / 3.4	77.0 / 3.8	55.0 / 13.3	57.4 / 13.3	51.3 / 5.1	101.0 / 5.3	43.9 / 1.4	77.0 / 2.1	41.9 / 10.0	63.7 / 9.1
Ronidazole	98.2 / 6.2	79.8 / 6.8	102.1 / 3.0	86.3 / 2.9	79.0 / 7.5	101.7 / 7.3	80.5 / 3.6	89.5 / 3.5	83.1 / 3.6	111.3 / 3.3
Diaveridine	72.6 / 4.0	77.6 / 4.4	90.7 / 7.5	94.8 / 7.6	64.1 / 5.3	84.5 / 5.2	78.4 / 4.6	89.7 / 4.6	82.2 / 4.6	92.6 / 4.5
Clopidol	81.7 / 1.3	92.3 / 1.5	97.6 / 4.6	95.3 / 4.3	62.6 / 3.0	99.6 / 2.7	69.7 / 5.2	92.9 / 5.1	73.9 / 1.7	92.0 / 1.6
Benzocaine	69.0 / 6.3	71.8 / 6.5	54.2 / 2.4	70.3 / 1.7	72.6 / 2.5	114.3 / 1.8	54.9 / 4.3	80.8 / 4.6	72.6 / 3.3	86.1 / 0.6
Azaperone	113.3 / 3.4	79.4 / 3.0	122.0 / 7.4	74.5 / 4.4	79.8 / 2.1	73.7 / 2.4	101.0 / 5.3	79.7 / 6.3	119.3 / 4.2	84.3 / 4.0
Brotizolam	94.7 / 1.0	79.2 / 1.2	91.4 / 7.6	74.4 / 9.2	75.8 / 4.5	83.0 / 4.3	67.7 / 3.8	77.6 / 3.2	83.7 / 3.7	88.6 / 3.7
Mafoprazine	79.1 / 2.0	88.2 / 2.1	95.0 / 3.0	86.9 / 3.1	65.0 / 3.7	85.0 / 3.7	77.3 / 2.8	85.9 / 2.7	87.6 / 4.1	87.2 / 2.5
Xylazine	84.3 / 6.3	81.6 / 6.3	93.1 / 5.3	88.1 / 5.2	81.3 / 2.8	87.3 / 2.7	83.2 / 4.9	86.1 / 4.6	89.8 / 3.8	91.5 / 3.7
Tolfenamic Acid	20.7 / 31.9	54.4 / 30.3	33.5 / 17.3	58.0 / 11.7	12.6 / 39.2	52.1 / 33.1	3.17 / 8.9	33.9 / 9.4	14.0 / 17.7	51.9 / 16.9
Meloxicam	85.1 / 3.0	83.5 / 6.5	90.5 / 3.5	80.8 / 4.1	85.1 / 3.7	86.6 / 5.9	70.1 / 1.0	88.5 / 0.3	84.3 / 1.2	89.3 / 0.5
Ketoprofen	90.9 / 3.2	87.7 / 0.5	101.8 / 4.3	85.9 / 4.2	71.3 / 0.5	93.9 / 2.2	46.0 / 5.8	66.5 / 4.5	77.2 / 6.5	90.7 / 1.3
Carprofen	51.2 / 7.8	100.6 / 5.1	67.3 / 1.6	80.7 / 1.6	18.7 / 10.7	68.7 / 8.6	16.2 / 8.0	29.1 / 10.3	22.2 / 8.7	85.0 / 5.8
Flunixin	75.3 / 3.1	89.9 / 3.1	89.0 / 5.0	83.4 / 5.0	72.0 / 3.7	92.0 / 3.5	57.2 / 8.5	74.4 / 6.7	69.2 / 3.3	81.9 / 3.2
Hydrocortisone	92.5 / 3.2	92.9 / 3.7	107.3 / 5.2	88.7 / 5.4	64.6 / 7.1	85.0 / 5.9	132.3 / 5.7	55.2 / 4.1	162.0 / 5.1	91.8 / 4.4
Methylprednisolone	98.1 / 1.8	98.0 / 2.7	105.0 / 4.0	85.5 / 3.1	75.7 / 5.8	90.1 / 5.7	63.7 / 4.3	82.0 / 4.3	84.0 / 4.0	86.1 / 2.5
Prednisolone	98.8 / 4.6	89.3 / 4.7	108.0 / 3.3	87.9 / 3.2	67.9 / 7.0	89.7 / 4.3	55.9 / 1.1	72.6 / 1.7	80.7 / 2.2	90.5 / 2.1
Betamethasone	94.9 / 2.9	93.0 / 3.0	104.0 / 3.4	89.9 / 3.4	75.9 / 3.1	93.9 / 3.0	56.5 / 0.5	74.1 / 0.3	82.4 / 3.0	93.3 / 2.9
Dexamethasone	96.8 / 3.4	96.3 / 4.2	104.3 / 4.6	89.2 / 4.5	76.5 / 3.4	96.3 / 3.6	57.6 / 1.1	70.8 / 1.0	83.8 / 4.7	92.5 / 2.5
Altrenogest	61.7 / 2.4	88.3 / 3.0	71.5 / 1.8	66.8 / 3.2	49.1 / 2.4	65.2 / 2.2	39.2 / 5.2	58.8 / 3.3	54.5 / 1.8	74.6 / 1.4
Norgestomet	74.5 / 1.7	99.3 / 1.6	87.8 / 3.5	88.6 / 3.6	57.1 / 5.4	76.5 / 5.2	46.7 / 1.8	70.5 / 1.7	70.1 / 3.8	95.4 / 3.3
Chlormadinone	67.8 / 3.2	83.8 / 3.7	86.2 / 2.3	83.3 / 3.3	38.4 / 10.3	56.4 / 10.1	33.9 / 12.2	56.5 / 8.4	61.0 / 4.9	82.5 / 4.9
α, β-Trenbolone	76.1 / 1.9	83.2 / 1.8	83.1 / 3.7	82.3 / 3.7	62.8 / 4.8	89.6 / 4.7	45.5 / 4.0	73.9 / 4.0	64.4 / 2.5	89.1 / 2.4
Clostebol	74.3 / 4.2	96.7 / 4.6	91.6 / 0.4	89.7 / 0.7	48.6 / 1.6	68.8 / 0.9	46.8 / 4.0	67.5 / 2.6	67.0 / 2.5	93.8 / 2.5
Melengestrol acetate	73.9 / 2.2	79.8 / 2.2	90.2 / 4.2	87.5 / 3.8	43.9 / 9.5	52.3 / 7.6	38.5 / 6.4	57.6 / 5.7	70.1 / 2.3	91.6 / 4.0
Virginiamycin	94.6 / 6.6	73.5 / 6.6	122.0 / 11.4	93.9 / 8.1	101.0 / 1.6	91.3 / 1.6	57.3 / 4.1	69.7 / 3.5	84.6 / 1.1	77.3 / 1.7
Novobiocin	82.9 / 4.5	89.1 / 6.0	70.1 / 5.3	61.8 / 5.0	62.5 / 3.9	82.4 / 3.6	52.8 / 7.6	75.7 / 5.0	73.3 / 7.3	95.9 / 6.7
Tiamulin Fumarate	88.1 / 4.2	98.2 / 4.9	100.0 / 5.3	86.0 / 5.3	74.2 / 2.5	78.0 / 2.4	83.0 / 4.1	98.6 / 4.3	90.6 / 5.6	95.7 / 5.7
Lincomycin	77.4 / 5.3	83.6 / 3.4	84.5 / 7.6	78.0 / 8.3	68.3 / 3.4	86.6 / 3.3	72.0 / 3.8	96.5 / 3.9	71.8 / 2.8	86.7 / 2.8
Clenbuterol	81.8 / 2.6	80.8 / 2.5	98.2 / 4.9	86.9 / 4.9	67.6 / 4.6	91.6 / 4.5	74.4 / 4.9	95.4 / 5.0	82.5 / 9.4	97.8 / 9.5
Menbutone	88.0 / 3.5	91.8 / 5.4	97.1 / 4.2	87.3 / 4.1	71.5 / 3.1	85.8 / 1.2	45.8 / 1.9	68.1 / 0.4	77.1 / 1.7	88.5 / 1.9
Tripeleminamine	98.3 / 1.6	81.5 / 2.1	105.3 / 2.7	74.0 / 2.8	74.0 / 5.1	81.3 / 5.1	93.0 / 3.2	84.4 / 3.2	96.6 / 4.9	78.9 / 3.8
Famphur	92.7 / 1.6	90.6 / 1.4	94.7 / 5.4	88.6 / 5.7	72.0 / 4.2	99.0 / 3.7	53.7 / 4.2	79.0 / 4.0	81.0 / 3.2	91.5 / 4.6
Prifinium	94.4 / 5.3	85.0 / 5.8	102.6 / 4.8	85.5 / 4.9	70.9 / 2.8	82.8 / 2.6	80.5 / 5.3	87.4 / 5.3	87.2 / 1.9	95.4 / 2.0
Ethopabate	90.6 / 2.4	103.6 / 3.3	94.0 / 4.4	97.1 / 4.4	61.9 / 9.4	95.1 / 5.5	63.3 / 1.1	87.1 / 1.0	82.1 / 3.8	96.5 / 3.6
Tetracycline	84.5 / 12.9	70.6 / 12.6	106.2 / 8.4	84.4 / 7.6	60.3 / 6.3	30.7 / 13.1	73.4 / 1.9	37.7 / 1.5	45.8 / 11.9	21.3 / 36.3
Doxycycline	134.3 / 11.6	80.9 / 4.1	137.0 / 9.2	86.1 / 9.9	77.2 / 2.7	46.6 / 9.8	82.0 / 4.7	55.7 / 5.0	58.9 / 3.7	35.9 / 28.5
Oxytetracycline	103.7 / 8.7	83.8 / 9.8	125.7 / 9.4	81.3 / 10.8	71.5 / 5.1	41.3 / 15.2	71.8 / 1.5	60.4 / 2.1	43.4 / 5.6	26.6 / 33.5
Chlortetracycline	104.0 / 13.0	65.8 / 5.3	126.0 / 7.6	70.2 / 9.4	51.4 / 6.2	25.2 / 8.4	50.8 / 1.3	39.2 / 6.4	36.2 / 5.0	18.2 / 37.8

添加濃度: 0.01 µg/g, n=3

- : 不検出

表4 9食品の添加回収試験結果（牛肉，鶏卵，レバー，ウナギ蒲焼き）

成分	牛肉		鶏卵		レバー		ウナギ蒲焼き	
	平均(%) / RSD(%)		平均(%) / RSD(%)		平均(%) / RSD(%)		平均(%) / RSD(%)	
	絶対	マトリックス	絶対	マトリックス	絶対	マトリックス	絶対	マトリックス
Benzylpenicillin	76.1 / 2.9	73.5 / 4.5	73.0 / 7.1	41.9 / 6.1	81.1 / 7.1	77.5 / 7.2	53.5 / 6.5	46.9 / 6.6
Oxacillin	95.4 / 2.0	87.7 / 2.4	85.8 / 1.6	135.0 / 1.4	66.8 / 2.3	99.5 / 2.2	50.7 / 4.0	75.5 / 4.0
Nafcillin	86.3 / 2.7	80.2 / 4.3	70.4 / 8.2	113.0 / 5.4	39.0 / 7.1	66.3 / 3.2	62.2 / 3.2	85.7 / 3.2
Mecillinam	69.0 / 4.9	76.9 / 3.0	68.9 / 1.2	90.1 / 1.0	65.3 / 5.0	77.7 / 4.5	13.3 / 9.0	20.2 / 7.2
Cloxacillin	84.4 / 3.1	75.9 / 4.2	81.7 / 12.3	89.2 / 10.3	81.0 / 4.0	89.6 / 3.8	63.4 / 2.4	77.6 / 2.4
Dicloxacillin	65.5 / 0.9	74.3 / 3.7	69.2 / 0.9	96.3 / 6.3	54.9 / 3.1	82.2 / 1.7	38.3 / 7.4	75.7 / 7.4
Cephalexin	58.4 / 5.7	55.3 / 5.5	65.6 / 8.8	67.4 / 6.9	63.8 / 15.5	64.5 / 14.3	10.1 / 1.2	14.1 / 1.5
Cephapirin	87.1 / 3.0	98.5 / 2.5	84.4 / 2.4	92.8 / 2.0	64.0 / 1.6	77.6 / 1.5	62.4 / 5.5	88.1 / 5.2
Ceftiofur	84.4 / 5.9	87.6 / 5.8	79.8 / 3.0	77.3 / 2.5	88.6 / 2.2	91.7 / 2.3	60.1 / 1.8	79.3 / 1.7
Nalidixic acid	33.7 / 6.7	33.2 / 7.3	27.3 / 2.7	32.6 / 3.1	61.9 / 8.0	68.8 / 7.6	44.9 / 6.3	61.8 / 6.5
Piromidic acid	27.6 / 7.2	27.7 / 8.2	32.2 / 10.5	33.0 / 9.5	75.2 / 4.6	61.9 / 1.6	63.7 / 6.3	64.4 / 11.9
Oxolinic acid	28.9 / 2.7	39.3 / 10.1	43.6 / 4.3	46.8 / 6.7	60.7 / 5.1	84.9 / 5.8	38.8 / 10.9	68.9 / 7.2
Flumequine	30.3 / 1.6	40.2 / 5.7	37.8 / 2.7	40.0 / 9.9	59.5 / 12.7	66.4 / 12.7	83.9 / 5.9	95.7 / 2.8
Sarafloxacin	58.9 / 4.8	32.1 / 13.6	38.0 / 15.9	25.2 / 6.9	55.0 / 10.2	45.1 / 9.7	45.9 / 9.5	40.8 / 9.9
Orbifloxacin	42.2 / 4.3	54.1 / 4.0	61.3 / 5.7	53.7 / 4.9	49.5 / 3.3	72.5 / 3.2	40.0 / 3.1	73.8 / 3.1
Trimethoprim	79.6 / 3.2	97.0 / 2.7	78.3 / 4.3	82.2 / 3.8	59.4 / 1.2	80.4 / 1.1	42.0 / 2.7	74.2 / 2.6
Ormetoprim	71.7 / 1.4	89.5 / 1.4	77.7 / 1.0	85.5 / 0.8	50.0 / 2.6	79.9 / 2.5	38.9 / 4.1	75.6 / 3.9
Pyrimethamine	65.9 / 5.7	82.6 / 5.2	73.6 / 2.6	81.6 / 2.2	34.8 / 1.5	64.4 / 1.5	35.6 / 4.5	72.9 / 4.2
Kitasamycin	57.8 / 1.8	57.5 / 4.2	69.3 / 4.2	67.1 / 3.7	45.0 / 7.3	51.3 / 6.6	46.7 / 8.1	61.7 / 7.2
Tylosin	46.6 / 3.5	40.7 / 5.1	62.4 / 1.9	49.4 / 1.7	43.0 / 5.6	44.0 / 5.1	46.5 / 9.0	50.7 / 8.2
Oleandomycin	77.5 / 9.0	100.8 / 8.0	86.4 / 2.2	80.7 / 1.9	72.9 / 3.7	87.3 / 3.6	63.3 / 4.0	81.2 / 3.8
Mirosamicin	73.9 / 2.2	87.0 / 2.1	85.2 / 1.6	80.9 / 1.4	55.6 / 2.9	84.6 / 2.8	50.0 / 5.1	81.7 / 4.7
Josamycin	61.8 / 4.7	65.2 / 3.8	81.1 / 3.0	86.4 / 2.6	58.1 / 2.1	67.3 / 1.9	58.2 / 4.8	75.0 / 4.5
Erythromycin	28.9 / 48.3	47.2 / 46.9	15.1 / 8.7	34.6 / 7.1	1.3 / 8.1	63.0 / 9.4	37.9 / 13.1	55.2 / 12.3
Sulfadoxine	73.6 / 1.1	78.5 / 1.3	89.2 / 1.6	87.4 / 1.4	72.2 / 3.9	91.7 / 3.7	45.2 / 2.5	80.1 / 2.4
Sulfadimethoxine	82.1 / 9.7	85.1 / 9.0	70.8 / 1.9	86.4 / 1.6	54.4 / 3.0	85.3 / 2.8	40.1 / 4.2	78.8 / 3.9
Sulfabenzamide	52.8 / 2.9	75.4 / 7.5	75.4 / 2.2	90.7 / 1.9	29.6 / 9.1	886 / 8.7	15.7 / 4.3	69.2 / 4.0
Sulfadiazine	76.3 / 4.4	83.8 / 5.4	72.9 / 2.9	76.4 / 2.5	62.4 / 2.4	82.9 / 2.4	37.4 / 4.7	81.6 / 4.6
Sulfamonomethoxine	76.0 / 3.6	82.8 / 3.3	76.7 / 3.5	80.8 / 3.1	53.1 / 8.9	89.1 / 8.6	35.8 / 4.7	76.7 / 4.6
Sulfamethoxypyridazine	55.5 / 2.8	72.9 / 2.9	64.0 / 4.0	72.2 / 3.5	48.7 / 5.3	88.1 / 5.1	32.9 / 2.2	78.4 / 2.0
Sulfacetamide	78.8 / 6.7	97.4 / 6.7	87.2 / 1.9	96.0 / 1.6	49.8 / 17.0	110.2 / 10.4	23.4 / 3.0	91.4 / 2.8
Sulfisozole	57.8 / 4.4	94.7 / 3.6	75.4 / 2.2	88.1 / 1.9	38.6 / 3.7	80.9 / 3.5	19.6 / 12.3	78.3 / 11.6
Sulfathiazole	69.1 / 6.1	81.5 / 5.6	74.6 / 4.7	79.3 / 4.2	48.1 / 2.3	78.2 / 2.3	34.5 / 6.8	77.0 / 6.5
Sulfisoxazole	69.0 / 3.5	90.6 / 3.0	87.2 / 2.8	87.8 / 2.3	48.1 / 8.6	89.6 / 7.8	28.9 / 4.0	79.1 / 3.6
Sulfatroxazole	60.5 / 4.3	87.7 / 3.7	78.5 / 1.6	89.0 / 1.4	35.9 / 9.5	79.1 / 9.1	27.4 / 2.1	78.5 / 2.0
Sulfaquinoxaline	66.9 / 3.2	67.1 / 4.1	72.0 / 10.2	76.1 / 8.7	53.8 / 1.4	77.6 / 1.4	38.0 / 1.2	64.3 / 4.9
Sulfamerazine	74.4 / 4.2	86.2 / 1.2	72.7 / 2.3	86.5 / 2.0	57.0 / 2.4	85.7 / 2.3	34.0 / 3.6	78.2 / 3.4
Sulfadimidine	70.3 / 2.2	83.6 / 2.4	73.3 / 1.8	77.6 / 1.5	54.9 / 2.1	86.1 / 2.0	33.2 / 7.2	82.8 / 7.0
Sulfisomidine	66.0 / 4.7	85.0 / 5.2	74.1 / 1.4	88.2 / 1.2	52.3 / 3.0	77.1 / 3.1	36.7 / 4.4	83.1 / 4.3
Sulfapyridine	65.5 / 4.1	82.6 / 4.8	72.6 / 2.6	76.1 / 2.2	63.0 / 3.3	85.0 / 3.2	37.5 / 6.5	79.3 / 6.1
Sulfamethoxazole	66.6 / 3.7	88.6 / 3.6	73.4 / 1.1	82.1 / 0.9	38.2 / 5.9	73.8 / 5.6	29.1 / 3.7	77.9 / 3.5
Sulfamethizole	56.9 / 3.7	70.8 / 4.6	69.5 / 1.8	78.1 / 1.5	41.6 / 3.7	79.3 / 3.6	27.7 / 9.9	82.0 / 9.5
Sulfantran	55.6 / 2.1	77.7 / 3.8	76.1 / 4.1	85.3 / 3.6	47.5 / 8.5	103.8 / 8.5	20.3 / 7.4	66.8 / 7.5
Sulfachloropyridazine	60.2 / 4.4	81.7 / 4.3	59.5 / 3.7	69.6 / 3.1	37.4 / 6.0	78.6 / 5.8	27.5 / 2.1	76.3 / 1.9
Sulfabromomethazine	66.2 / 3.6	73.4 / 3.6	74.4 / 2.5	75.4 / 2.1	63.6 / 5.2	83.2 / 5.0	37.4 / 4.4	80.0 / 4.2
Fenbendazole	49.9 / 6.2	84.0 / 4.1	55.1 / 7.0	87.6 / 6.1	20.9 / 11.0	37.2 / 10.0	26.7 / 5.4	37.6 / 5.5
Oxfendazole	89.9 / 1.6	91.5 / 2.4	83.8 / 1.2	87.5 / 1.0	70.2 / 0.5	93.5 / 0.5	52.4 / 3.4	82.6 / 3.2
Oxfendazole sulfone	80.7 / 2.6	86.3 / 3.4	80.8 / 1.3	84.5 / 1.1	68.5 / 2.1	89.1 / 2.0	50.8 / 3.1	82.1 / 3.0
Praziquantel	71.2 / 3.4	82.6 / 3.4	84.8 / 1.2	92.2 / 1.0	66.9 / 3.6	81.9 / 3.4	50.4 / 3.2	83.3 / 3.1

添加濃度: 0.01μg/g, n=3

- : 不検出

表4 9食品の添加回収試験結果（牛肉，鶏卵，レバー，ウナギ蒲焼き），続き

成 分	牛肉		鶏卵		レバー		ウナギ蒲焼き	
	平均(%) / RSD(%)		平均(%) / RSD(%)		平均(%) / RSD(%)		平均(%) / RSD(%)	
	絶対	マトリックス	絶対	マトリックス	絶対	マトリックス	絶対	マトリックス
Morantel	82.5 / 1.5	90.5 / 1.7	94.1 / 1.1	79.5 / 1.6	80.9 / 2.0	81.7 / 1.9	65.9 / 5.9	77.4 / 4.7
Flubendazole	79.3 / 2.0	86.9 / 3.4	76.5 / 6.0	79.0 / 5.2	61.5 / 1.7	90.9 / 1.7	57.6 / 3.6	77.8 / 3.4
Oxibendazole	73.4 / 1.6	86.4 / 1.4	68.5 / 7.4	73.1 / 6.3	52.8 / 3.9	82.2 / 3.7	45.6 / 1.6	85.2 / 1.5
Triclabendazole	20.6 / 19.5	56.2 / 18.4	19.4 / 5.7	23.7 / 4.9	8.1 / 35.0	14.0 / 28.6	14.4 / 5.7	27.4 / 4.9
Triclabendazole Oxon	27.4 / 17.0	69.5 / 14.7	28.1 / 8.2	46.83 / 7.3	6.7 / 26.4	17.5 / 21.8	23.8 / 21.8	51.4 / 19.6
Thiabendazole	108.0 / 2.3	106.3 / 2.3	89.5 / 1.0	95.0 / 0.9	50.7 / 2.9	76.2 / 2.7	41.0 / 4.6	81.0 / 4.4
5-Hydroxythiabendazole	73.2 / 2.8	78.7 / 2.8	87.9 / 2.5	93.1 / 2.2	57.9 / 0.9	86.3 / 0.8	38.5 / 2.5	77.9 / 2.3
Mebendazole	77.3 / 3.8	89.8 / 4.1	76.6 / 3.2	79.4 / 2.8	60.9 / 4.0	89.6 / 3.9	45.9 / 2.4	73.3 / 2.3
Lebamisole	83.2 / 2.1	93.1 / 4.3	86.8 / 0.5	80.8 / 0.4	80.7 / 1.6	87.5 / 1.5	50.0 / 10.5	62.6 / 9.9
Metronidazole	75.5 / 5.1	92.3 / 5.5	74.1 / 3.8	87.1 / 3.3	53.9 / 2.2	86.1 / 2.2	30.1 / 1.3	55.4 / 1.2
Dimetridazole	47.9 / 4.3	83.0 / 4.3	54.8 / 3.5	90.8 / 3.2	51.8 / 1.7	115.3 / 0.8	41.4 / 7.0	148.0 / 7.0
Ronidazole	81.7 / 3.4	98.3 / 3.4	79.8 / 5.3	85.8 / 4.6	61.5 / 4.0	80.5 / 4.0	46.0 / 5.3	85.0 / 5.1
Diaveridine	73.5 / 4.8	92.4 / 4.3	80.9 / 3.7	83.3 / 3.2	49.7 / 6.1	86.8 / 5.9	39.4 / 4.5	73.6 / 4.2
Clopidol	61.5 / 1.6	102.0 / 1.6	82.7 / 0.3	94.9 / 0.3	42.8 / 5.4	82.3 / 5.1	25.6 / 7.7	73.5 / 7.2
Benzocaine	62.6 / 6.1	75.1 / 3.9	70.0 / 2.6	106.7 / 2.1	56.3 / 1.1	117.0 / 1.8	33.6 / 2.0	136.7 / 1.9
Azaperone	112.7 / 2.9	102.0 / 2.1	112.3 / 3.3	75.1 / 2.8	25.2 / 26.0	22.1 / 11.0	65.2 / 3.9	82.9 / 3.8
Brotizolam	75.3 / 4.0	82.2 / 7.0	85.1 / 6.1	87.0 / 5.3	70.5 / 4.1	85.8 / 3.9	60.6 / 6.5	82.0 / 6.4
Mafopezine	78.9 / 4.0	90.7 / 4.0	84.0 / 1.1	83.7 / 0.9	57.1 / 3.7	86.6 / 3.5	47.4 / 3.6	79.7 / 3.4
Xylazine	89.4 / 1.9	94.9 / 2.0	88.3 / 1.1	86.3 / 0.9	76.7 / 4.7	80.8 / 4.5	67.2 / 4.4	81.2 / 4.1
Tolfenamic Acid	8.8 / 31.5	33.9 / 32.1	16.8 / 32.8	34.9 / 27.8	11.2 / 16.1	33.0 / 16.3	5.9 / 22.0	33.2 / 20.0
Meloxicam	72.8 / 5.1	84.1 / 3.9	75.1 / 0.7	82.9 / 0.67	77.3 / 3.3	96.4 / 3.5	56.5 / 3.8	82.8 / 3.6
Ketoprofen	56.9 / 0.8	75.9 / 1.3	74.5 / 8.7	78.6 / 5.6	42.2 / 29	77.1 / 4.7	32.8 / 9.8	69.7 / 9.7
Carprofen	18.0 / 11.2	53.9 / 12.1	30.7 / 13.1	60.0 / 11.3	14.6 / 6.0	47.0 / 5.4	15.5 / 23.5	42.7 / 23.2
Flunixin	57.0 / 7.4	77.3 / 8.5	62.1 / 1.6	68.3 / 1.3	61.6 / 3.5	84.2 / 3.3	49.1 / 4.9	79.7 / 4.7
Hydrocortisone	111.0 / 3.2	97.8 / 3.9	78.5 / 2.8	85.2 / 2.4	53.3 / 9.3	99.9 / 8.0	35.7 / 6.0	82.0 / 6.0
Methylprednisolone	68.3 / 1.1	85.2 / 2.9	77.2 / 4.3	81.2 / 3.7	55.9 / 4.0	86.0 / 4.0	41.7 / 7.0	66.1 / 7.0
Prednisolone	66.8 / 1.5	83.7 / 1.5	79.8 / 1.4	85.2 / 1.2	55.2 / 5.3	96.9 / 5.2	34.7 / 3.0	72.4 / 3.0
Betamethasone	66.6 / 0.4	82.5 / 0.5	79.2 / 8.1	87.7 / 6.9	50.4 / 1.1	92.2 / 1.1	44.1 / 4.4	70.6 / 4.3
Dexamethasone	67.8 / 0.2	83.5 / 1.0	79.7 / 7.5	87.5 / 6.4	50.9 / 3.4	92.5 / 3.3	45.0 / 5.0	71.7 / 4.8
Altrenogest	43.4 / 2.9	65.1 / 3.2	51.8 / 10.5	63.9 / 8.4	46.5 / 4.3	64.9 / 5.8	44.8 / 10.4	73.5 / 7.8
Norgestomet	59.1 / 4.0	81.3 / 4.0	65.0 / 8.7	99.6 / 7.5	46.6 / 3.8	86.8 / 3.8	38.0 / 2.3	65.5 / 2.3
Chlormadinone	47.6 / 3.2	73.1 / 3.2	56.6 / 8.1	80.6 / 7.2	39.3 / 5.3	74.2 / 5.2	26.1 / 6.5	46.3 / 6.6
α, β-Trenbolone	49.0 / 2.5	73.5 / 3.2	68.2 / 8.0	82.7 / 7.0	60.2 / 7.4	74.4 / 7.3	48.4 / 7.4	89.7 / 8.3
Clostebol	51.9 / 3.1	74.2 / 5.1	66.8 / 4.8	96.2 / 4.5	42.1 / 2.0	78.9 / 2.0	35.5 / 8.2	70.9 / 7.6
Melengestrol acetate	51.3 / 4.2	72.1 / 4.4	64.9 / 1.9	81.5 / 1.6	44.2 / 3.3	80.4 / 3.2	31.1 / 10.9	55.4 / 10.3
Virginiamycin	75.3 / 3.6	75.2 / 3.0	98.1 / 8.7	88.3 / 7.1	103.1 / 11.1	76.7 / 11.1	82.6 / 9.3	94.4 / 9.2
Novobiocin	57.2 / 9.7	78.0 / 9.0	62.8 / 4.9	75.1 / 3.9	52.7 / 5.8	74.8 / 5.1	53.9 / 3.8	76.2 / 3.8
Tiamulin Fumarate	87.2 / 2.2	92.8 / 3.6	99.4 / 5.2	65.2 / 4.4	98.3 / 1.9	86.4 / 1.7	78.4 / 4.9	89.5 / 4.7
Lincomycin	64.1 / 4.4	88.8 / 2.6	74.5 / 2.7	81.7 / 2.3	61.2 / 0.8	82.6 / 0.7	15.1 / 21.5	28.3 / 18.4
Clenbuterol	74.5 / 1.8	98.3 / 3.4	74.0 / 5.6	77.2 / 4.9	53.3 / 3.5	83.3 / 3.4	40.3 / 3.2	85.3 / 3.2
Menbutone	61.3 / 0.8	78.8 / 1.4	72.8 / 2.8	76.8 / 2.4	41.9 / 4.1	67.4 / 4.1	36.0 / 3.2	66.9 / 3.1
Tripelethamine	93.1 / 4.0	92.2 / 4.3	103.4 / 6.3	66.0 / 5.4	83.2 / 5.6	76.7 / 5.3	72.5 / 4.9	75.1 / 4.6
Famphur	61.9 / 1.2	82.5 / 1.1	77.9 / 3.1	83.2 / 2.7	57.3 / 6.0	102.4 / 5.9	29.7 / 1.5	79.2 / 1.5
Prifinium	84.1 / 5.5	100.2 / 6.4	122.3 / 1.7	77.4 / 1.5	102.4 / 4.8	83.9 / 4.7	88.9 / 3.6	78.0 / 3.5
Ethopabate	70.4 / 0.4	88.3 / 0.6	85.4 / 1.1	96.2 / 1.0	56.4 / 2.3	101.4 / 2.3	30.9 / 3.2	85.4 / 3.1
Tetracycline	59.0 / 3.5	32.6 / 4.9	33.4 / 6.2	28.3 / 8.2	80.3 / 3.0	92.4 / 74.0	76.9 / 2.2	55.7 / 3.6
Doxycycline	59.6 / 2.7	45.4 / 4.7	- / -	- / -	- / -	- / -	- / -	- / -
Oxytetracycline	60.0 / 2.0	34.1 / 8.3	47.5 / 2.7	29.8 / 3.8	83.0 / 6.8	60.6 / 1.4	114.0 / 7.4	91.0 / 0.2
Chlortetracycline	42.2 / 3.2	28.5 / 12.8	35.5 / 5.4	28.0 / 6.5	81.5 / 2.7	186.2 / 96.8	70.1 / 10.7	50.2 / 2.9

添加濃度: 0.01μg/g, n=3

- : 不検出

まとめ

動物用医薬品の固相抽出やリン脂質のクリーンアップについて、数種の固相カラムを用いて比較検討を行ったところ、Oasis HLB と MonoSpinTiO を併用した場合に最も良好な結果が得られた。

9 食品の添加回収試験（添加濃度：0.01 µg/g）では、鶏肉、豚肉、牛肉、エビ、鶏卵、牛乳で良好な結果が得られた。サケ、レバー、ウナギ蒲焼きは、マトリックス添加検量線を用いることで回収率を改善することができた。

リン脂質の除去は、畜水産物中の多様な動物用医薬品の一斉分析において効果的であり、一律基準レベルの分析を可能とした。本法は簡便で十分な感度と精度が得られることからスクリーニング法として実用性が高いと考えられる。

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（平成 17 年 1 月 24 日食安発第 0124001 号），「HPLC による動物用医薬品等の一斉試験法Ⅲ（畜水産物）」。
- 2) 甲斐茂美他：高速液体クロマトグラフィー/タンデム質量分析法による畜水産物中動物用医薬品スクリーニング分析法，分析化学，**56**，12，2007，1105-1113。
- 3) 野口昭一郎他：LC-MS/MS を用いた畜水産物中の残留動物用医薬品の一斉分析法，食品衛生学雑誌，**49**，3，2008，177-188。
- 4) 梶田弘子他：LC-MS/MS による畜水産食品中の動物用医薬品一斉分析，食品衛生学雑誌，**49**，6，2008，381-389。
- 5) 吉田絵美子他：乳および乳製品中のテトラサイクリン系抗生物質を含めた動物用医薬品一斉分析の検討，食品衛生学雑誌，**50**，5，2009，216-222。
- 6) 吉田絵美子他：加工食品中の動物用医薬品迅速一斉試験法の検討，食品衛生学雑誌，**52**，1，2011，59-65。
- 7) 太田彦人他：含リンアミノ酸系除草剤の分析前処理用 TiO₂ コーティングモノリススピンカラムの開発，日本法科学技術学会，第 14 回学術集会講演要旨集，2008。
- 8) Takeshi Saito, et al. : Mix-mode TiO-C18 Monolith Spin Column Extraction and GC-MS for the Simultaneous Assay of Organophosphorus Compounds and Glufosinate, and Glyphosate in Human Serum and Urine, ALYTICAL SCIENCES, **27**，10，2011，999-1005。
- 9) 渡辺大助他：ジルコニアカートリッジを用いた生体試料中含リンアミノ酸類の濃縮固相抽出法の開発，日本法科学技術学会，第 15 回学術集会講演要旨集，2009。
- 10) 前田尚之他：LC-MS/MS を用いたラット臓器中ステロイドホルモンおよびそのグルクロン酸抱合体の同時分析，日本質量分析学会，第 58 回質量分析総合討論会要旨集，2010。