

## LC/MS/MSによる動物用医薬品の簡易一斉分析法検討

林 由美、橋口 祥子、衛藤 加奈子、森崎 澄江、岡本 盛義、長谷川 昭生

### Study on rapid simultaneous analysis of Veterinary drugs by LC/MS/MS

Yumi Hayashi, Syoko Hashiguchi, Kanako Eto, Sumie Morisaki, Moriyoshi Okamoto and Akio Hasegawa

Key word : 動物用医薬品 Veterinary drugs, 一斉分析 simultaneous analysis,  
LC/MS/MS (高速液体クロマトグラフ / タンデム四重極型質量分析法)

#### 要 旨

当センターで測定している動物用医薬品の成分について、簡易に一斉分析する方法をLC/MS/MSにより検討した。

抽出には、QuEChERS法で用いられるバッチ精製<sup>1)</sup>を応用し、至適な抽出条件を検討することで、試験工程の短縮を試みた。

牛肉、豚肉、鶏肉、およびエビで添加回収試験(添加濃度: 0.02 $\mu$ g/g)を実施したところ、114成分中、測定可能であったものは約80成分と良好な結果を得た。よって、本分析法は広範囲の物性を持つ残留動物用医薬品を迅速かつ簡易にスクリーニングする方法として有用であると考えられた。

#### はじめに

近年、畜水産物に対する病気の予防や治療の目的で様々な動物用医薬品が使用されているが、人体への影響が危惧されていることから、食品中での基準が定められている。当センターでは、厚生労働省通知の畜水産物を対象とした動物用医薬品一斉試験法<sup>2)</sup>のうち、「HPLCによる動物用医薬品等の一斉試験法Ⅰ(畜水産物)」(以下、公定法Ⅰ)を用いて収去検査等を実施している。しかし、使用頻度の高いテトラサイクリン系抗生物質(以下、TC系)や $\beta$ -ラクタム系抗生物質の一部は公定法Ⅰの測定対象項目に入っておらず、それらには個別試験法が示されているが多大な時間を要するものがほとんどである。また、公定法Ⅰは90物質が分析対象になっているが、これら全ての化合物の一斉分析を保障したのではなく、公定法Ⅰに示される方法では、測定不能なものが多い。

そこで、公定法Ⅰでは分析対象とされていないが使用頻度の高い薬剤や、公定法Ⅰに分析対象として挙げられているが測定できていない項目を含めて、LC/MS/MSによる迅速一斉スクリーニング法を検討した。

#### 材料および方法

##### 1 試料および試薬

試料は、牛、豚、鶏、エビ、ブリの5種類を用いた。標準品、標準原液は、食品分析用、残留物質試験用または生化学用の純度表記のあるものを用いた。標準原液は、それぞれの溶解性に応じた溶媒を用いて100 $\mu$ g/mLの標準原液を調製した。混合標準原液の調製は、アセトニトリルを使用し1 $\mu$ g/mLを調整後、検量線用標準溶液にはアセトニトリルと超純水(2:8)の混液を用いて希釈した。作成した混合標準溶液には114成分を含む。(Table1, 2参照)

抽出溶媒は、アセトニトリル、メタノール及び0.25%ギ酸(5:3:1, v/v)混液を用時調製して用いた。

また、有機溶媒は残農用、ギ酸はLC/MS用、その他の試薬については特級品を用いた。

##### 2 方法

###### 2.1 装置と測定条件

測定機器はAgilent Technologies社製1200 series及び6460のタンデム型質量分析計付高速液体クロマトグラフ(LC-MS/MS)を用いた。

測定条件において、カラムはL-column HB (2.1mm

i.d. × 150mm, 5 $\mu$ m, 化学物質評価研究機構製) を用い、カラム温度は40°Cで測定した。移動相の溶離液はA液に0.05%ギ酸、B液にアセトニトリルを用い、流速は0.2mL/min、試料注入量は10  $\mu$  L、イオン化法はESI+、ESI-、キャピラリー-電圧はそれぞれ4000V (+)、3500V (-) とした。

超純水はMilli-RX 45により製造したものを使用した。

また、精製に使用したSep-Pac Plus PS2 カートリッジはWaters社製、フィルター DISMIC-13HPはMillipore社製を使用した。

## 2.2 検量線の作成

検量線用標準溶液は、最終濃度0.001、0.002、0.005、0.01、0.02、0.03 $\mu$ g/mLとなるよう調製した。HPLC注入プログラムにより、対象動物用医薬品を含有していないことを確認済みの試料を、各濃度の標準溶液に等量混合する方法で、マトリックス検量

線を作成した。

## 2.3 試料溶液の調製

NAKAJIMAら<sup>3)</sup>の方法を参考に、フードプロセッサーにより細切、均一化した試料5.0gを50mL遠沈管に量り、抽出溶媒20mLを添加し、2分間ホモジナイズした後、硫酸マグネシウム4.0g、クエン酸二ナトリウムセスキ水和物0.5g、クエン酸三ナトリウム二水和物1.0g、塩化ナトリウム1.0gを加え、1分間激しく振とうし、3000rpm、5分で遠心分離した。上清を分取し、超純水で20mLに定容希釈した後、0.2 $\mu$ mフィルター (PTFE) によりろ過を行い、試験溶液とした。(Fig.1参照)

また、定量用の試験法として上記の試験法に加え、定容後に固相カートリッジを使用し、濃縮後2.5mLのアセトニトリル：超純水 (2：8) に溶解したものを試験溶液とした。(Fig.2参照)

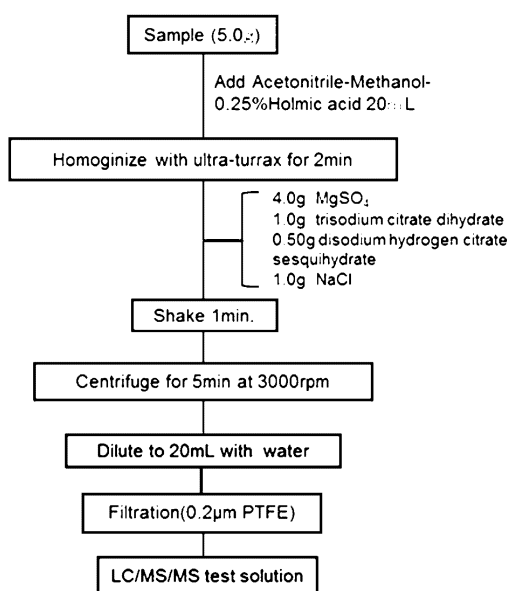


Fig.1 extraction procedure schematical

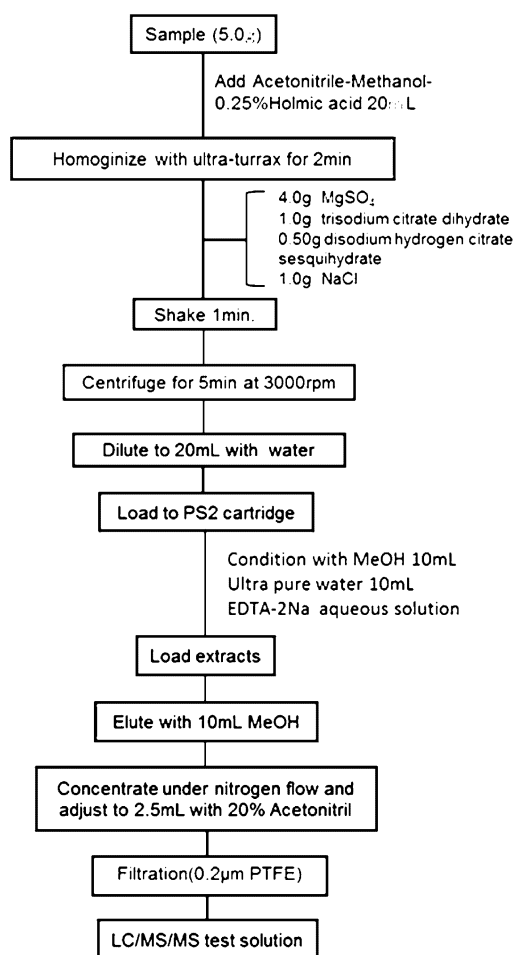


Fig.2 extraction procedure schematical

## 結果と考察

## 1 結果

## 1.1 抽出溶媒の検討

TC系薬剤やニューキノロン剤の回収率向上の目的で抽出溶媒に着目し、0.25%ギ酸含有アセトニトリルと水、メタノールを加えて抽出を行った。3種それぞれの溶媒の比を変えて抽出を試みたところ、3つの溶媒の比を5:3:1にすると回収率はTC系及び他の薬剤共に良好であった。以後、この抽出溶媒を用いることとした。

## 1.2 LC/MS/MS条件の検討

動物用医薬品114成分それぞれについてMS2スキャン測定により、プリカーサーイオンの決定およびフラグメンター電圧の検討を行った。移動相Aは水系溶媒としてギ酸、酢酸、ギ酸アンモニウム、酢酸アンモニウムを、移動相Bは有機溶媒としてアセトニトリル、メタノールを用いて検討し、流速は0.2mLのグラジエント分析とした。移動相に0.05~0.1%ギ酸とアセトニトリルを用いると多くの物質で最も強いイオン強度が得られたことから、以後は水系移動相に0.05%ギ酸水溶液を用いた場合のMS条件を使用することとした。

## 1.3 検量線及び定量下限値

マトリックス検量線は、0.001ppm~0.03ppmの範囲で、対象114成分について決定係数は0.990以上であった。また、定量下限値として一律基準である0.01ppm<sup>4)</sup>を目標値とし、各項目の標準溶液のクロマトグラムがS/N $\geq$ 10となる濃度を確認した。その結果、定量下限値は0.004~0.008ppmの範囲にあり、今回対象とした試料における分析は可能であった。

## 1.4 添加回収試験

対象成分を含有していないことを確認したそれぞれの試料に対し、試料中の最終濃度が0.02 $\mu$ g/gとなるように標準液を添加し、Fig.1に示した方法で添加回収試験を行った。その結果、測定可能であったのは、114成分中、牛肉77成分、豚肉85成分、鶏肉81成分、えび72成分であった。

## 1.5 固相カートリッジの使用

試験溶液の更なるクリーンアップを目指し、定容後の試験液（鶏肉）をSep Pac PS2カートリッジに通水し、メタノールで溶出した液を濃縮・乾固した後、20%アセトニトリルで溶解したところ、62成分に適応可能であった。(Fig.2、Table1参照)

Table 1. Recoveries of veterinary drugs

(n=5)

Analyte	Bovine muscle		Swine muscle		Shrimp		Chicken muscle		
	Rec. (%)	Repeat-ability (%)	Rec. (%)	Repeat-ability (%)	Rec. (%)	Repeat-ability (%)	Rec. (%)	Repeat-ability (%)	Scheme of Fig2 Rec. (%)
2-Quinoxalinecarboxylicacid	125.0	26.9	74.0	12.0	122.0	58.2	78.0	25.1	0.0
5-Hydroxy-thiabendazole	62.0	6.0	52.8	5.7	58.5	7.6	51.2	5.2	65.8
Albendazole metabolite	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	133
Allethrin	34.8	76.0	65.2	7.1	67.0	15.1	4.0	223.6	0.0
Altrenogest	64.8	10.8	69.6	3.7	72.5	4.1	59.6	7.3	103.3
Ampicillin	60.0	23.2	71.2	7.6	86.3	4.1	66.8	10.1	30.0
Amprolium	75.6	10.3	61.2	34.2	84.5	5.9	71.6	3.6	31.7
Azaperone	76.0	6.2	73.6	2.3	74.0	5.4	66.8	3.4	45.0
Benzylpenicillin	68.8	4.4	49.2	12.4	64.5	11.1	52.0	10.5	63.3
Carbadox	64.8	8.9	62.0	5.6	74.5	7.1	58.4	8.2	50.8
Cefalexin	69.6	11.7	38.8	36.9	52.5	47.7	43.2	19.8	30.8
Cefalonium	56.0	10.4	46.8	7.2	50.0	32.2	48.0	5.9	5.8
Cefapirin	39.6	6.6	38.4	4.4	38.0	6.1	29.6	5.7	12.5
Cefazolin	54.0	13.1	50.8	9.1	51.0	22.8	41.2	43.1	0.0
Chlortetracycline	135.6	5.2	144.4	6.1	94.5	10.8	68.4	3.8	33.3
Ciprofloxacin	124.8	6.9	117.2	3.5	106.0	8.0	86.8	2.6	97.5
Clenbuterol	72.4	4.5	71.6	1.2	73.5	4.6	63.2	3.6	76.7
Clopidol	72.4	6.6	63.6	4.1	67.0	1.7	60.8	2.9	60.0
Cloxacillin	60.4	15.8	47.2	14.9	55.5	15.1	59.2	10.3	22.5
Cyromazine	68.8	19.6	70.0	15.6	82.0	8.7	72.4	26.7	0.0
Danofloxacin	142.4	3.0	145.6	2.6	139.0	2.5	119.6	3.2	130.8
Dexamethasone	71.2	6.5	71.2	11.2	71.0	9.6	57.2	8.8	133.3
Diaveridine	69.2	7.8	61.6	1.5	67.0	1.7	61.6	4.2	0.0
Dicloxacillin	48.8	14.4	48.0	5.1	63.0	3.2	48.8	20.0	0.0
Difloxacin	97.6	6.4	98.0	4.1	85.0	7.3	92.8	7.7	52.5
Difurazon	74.4	7.5	66.4	6.2	60.0	16.3	46.8	7.8	13.3
Emamectin B1a	85.6	7.3	77.6	2.8	85.5	2.9	75.6	3.9	0.0
Enoxacin	127.2	5.8	137.2	2.8	125.0	2.1	101.6	2.6	88.3
Enrofloxacin	98.4	4.4	96.8	3.1	102.5	2.5	96.0	3.3	82.5
Epoxiconazole	65.6	11.3	66.0	2.1	69.5	6.4	56.0	6.7	340.8
Erythromycin A	70.0	5.3	62.8	1.7	75.0	5.6	65.6	5.0	120.0
Ethopabate	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
Ethoxyquin	119.2	2.8	92.4	2.8	120.5	4.4	107.6	2.4	0.0
Famphur	62.4	19.3	61.2	6.8	58.5	7.0	58.4	9.5	100.0
Fenobucarb	70.8	9.3	66.8	6.2	65.5	13.3	61.6	4.8	171.7
Flubendazole	72.8	8.1	60.8	3.8	63.0	9.2	58.4	6.1	196.7

Analyte	Bovine muscle		Swine muscle		Shrimp		Chicken muscle		
	Rec. (%)	Repeat-ability (%)	Rec. (%)	Repeat-ability (%)	Rec. (%)	Repeat-ability (%)	Rec. (%)	Repeat-ability (%)	Scheme of Fig2 Rec. (%)
Flumequine	62.8	7.0	60.0	5.3	66.0	2.5	56.4	6.8	91.7
Furazolidone	70.0	14.7	79.6	3.7	77.0	10.9	66.0	2.1	108.3
Leuco malachite	53.2	8.7	57.2	5.3	48.0	27.4	24.0	45.3	0.0
Levamisole	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	82.5
Lincomysin	57.6	8.3	50.4	3.3	51.0	3.9	50.4	1.8	20.0
Malachite	52.8	5.1	50.4	3.3	50.5	5.0	50.0	2.8	108.3
Marbofloxacin	94.4	6.4	86.8	4.8	90.5	2.8	78.8	4.2	31.7
Melengestrol	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
Meloxicam	59.6	7.3	63.6	1.4	75.5	1.3	54.0	5.2	46.7
Metoclopramide	75.2	5.2	72.0	2.0	76.0	5.7	67.2	3.4	67.5
Metronidazole	60.8	15.9	63.2	16.2	49.5	34.0	65.6	11.9	78.3
Miloxacin	72.8	7.9	68.4	2.4	74.5	1.3	61.6	6.2	49.2
Monsensin	56.4	19.0	71.2	1.5	69.5	14.0	55.6	10.0	0.0
Morantel	95.2	4.4	73.6	3.0	89.5	3.8	76.4	4.3	41.7
Nalidixic acid	60.0	7.8	60.4	2.8	68.0	2.4	49.2	6.8	145.0
Nafcillin	60.8	6.0	50.4	1.8	77.5	6.5	54.4	4.8	45.0
Neospiramycin	83.6	3.5	72.8	4.2	79.5	3.8	53.2	5.7	120.0
Norfloracin	134.0	6.4	137.2	4.3	122.5	3.1	100.0	2.8	108.3
Ofloxacin	100.4	5.5	109.2	3.6	104.0	6.1	102.0	3.9	70.8
Olaquinox	66.4	5.4	74.8	11.7	61.0	3.3	52.0	9.8	26.7
Oleandomycin	76.4	4.3	72.8	3.1	73.0	6.5	66.0	3.0	0.0
Orbifloxacin	72.4	6.3	64.4	4.6	69.0	1.7	58.4	5.6	3.3
Ormetoprim	72.0	9.4	70.4	1.3	73.5	2.6	62.8	6.2	79.2
Oxacillin	68.8	15.3	50.4	1.8	76.0	30.2	56.8	22.8	32.5
Oxolinic acid	62.8	7.3	58.8	6.6	64.0	5.1	56.4	6.3	91.7
Oxybendazole	70.4	4.7	72.0	2.8	70.0	9.3	61.2	5.0	139.2
Oxytetracycline	126.0	10.0	117.2	3.5	91.5	8.4	66.0	4.8	25.0
Piromidic Acid	63.2	7.9	58.8	3.0	65.0	4.0	51.6	5.1	101.7
Prednisolone	72.4	21.3	66.8	11.5	62.5	18.4	52.4	17.4	31.7
Pyrimethamine	70.4	4.7	69.6	2.4	71.0	5.9	61.6	3.6	99.2
Salinomycin	69.2	15.9	70.0	6.7	73.5	9.0	59.2	4.5	0.0
Sarafloxacin	86.0	7.4	84.4	3.1	77.5	5.7	74.0	2.7	75.8
Spiramycin I	76.8	4.7	82.4	2.0	73.5	15.5	81.2	4.8	62.5
Sulfabenzamide	67.2	9.3	60.0	5.3	60.0	10.9	45.6	12.2	79.2
Sulfacetamide	60.4	14.3	38.4	38.5	45.5	47.1	52.8	19.8	0.0
Sulfachlorpyridazine	65.2	8.3	57.2	7.3	67.5	15.7	49.6	3.4	70.0
Sulfadiazine	70.8	5.9	64.8	3.5	57.0	27.9	56.8	5.3	64.2
Sulfadimethoxine	71.6	8.2	63.6	1.4	68.5	6.5	53.2	7.8	84.2
Sulfadimidine	62.4	7.3	62.8	2.8	65.0	10.2	52.8	9.5	77.5
Sulfadoxine	67.2	7.8	64.4	2.6	67.0	11.6	55.6	6.4	75.8
Sulfaguanidine	30.0	13.3	23.6	90.8	22.5	13.3	37.6	13.8	0.0
Sulfamerazine	63.2	6.9	65.2	4.7	75.0	6.3	54.4	8.8	68.3
Sulfamethoxazole	63.6	13.4	59.2	4.5	63.0	22.2	58.4	15.2	85.0
Sulfamethoxypyridazine	62.4	7.3	62.4	5.3	61.5	12.0	49.2	10.2	67.5
Sulfamonomethoxine	64.8	8.6	58.0	2.4	61.0	17.2	56.8	5.3	68.3
Sulfanilamide	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
Sulfapyridine	69.2	6.0	66.4	8.9	71.5	9.5	58.4	2.9	72.5
Sulfathiazole	63.2	13.5	69.2	3.9	66.5	19.4	67.2	10.4	55.0
Sulfisomazine	46.0	10.6	54.0	5.2	53.0	2.2	50.8	5.3	57.5
Sulfisozole	65.2	6.7	72.8	3.1	75.0	13.2	59.6	7.3	74.2
Sulfinoxalin	65.6	12.8	54.4	4.8	66.5	10.2	55.6	10.3	51.7
Triclabendazole	55.2	13.7	60.0	3.3	46.5	16.2	58.4	6.6	384.2
Temphos	57.2	55.5	62.8	11.4	67.0	15.9	66.4	16.7	0.0
Tetracycline	144.4	7.0	144.8	3.9	104.5	6.9	72.8	3.7	30.0
Thiabendazole	0.0	0.0	74.0	10.3	0.0	0.0	0.0	0.0	163.3
Tiamulin	78.0	6.0	73.6	3.0	77.0	3.4	68.8	3.3	10.0
Tilmicosin	130.8	2.8	106.8	4.3	144.5	9.8	120.4	3.2	150.8
Trenbolone (a)	104.3	7.3	73.0	20.1	0.0	0.0	64.0	3.9	116.7
Trenbolone (b)	103.7	6.0	79.5	16.8	0.0	0.0	70.0	6.7	131.7
Trichlorfon	0.0	0.0	46.0	51.5	113.0	8.2	75.2	1.5	83.3
Trimethoprim	66.4	5.4	68.0	2.1	73.0	3.5	65.6	4.5	71.7
Tripeleminamine	77.2	5.7	74.0	1.9	74.5	4.0	68.0	2.9	115.8
Tylosin	68.8	4.4	62.0	4.0	57.0	10.9	49.2	2.2	0.0
Xylazine	87.2	3.1	80.8	1.4	86.5	2.2	68.4	3.8	87.5
2-Acetyl-5-nitro-n	24.4	27.3	-	-	-	-	53.6	29.9	71.8
Cefurox-n	20	2.8	152.0	58.9	182.0	9.9	58.4	33.4	33.0
Clorsulon-n	20.4	4.3	58.7	26.6	92.7	13.0	-	-	98.0
Chloramphenicol-n	22	4.7	95.3	28.0	110.7	14.7	55.6	21.9	0.0
Diclazuril-n	106.8	35.2	-	-	-	-	56.8	25.5	191.0
Florfenicol-n	24	12.0	-	-	187.3	70.8	57.2	16.1	64.5
Nicarbazin-n	25.6	15.3	28.7	25.8	91.3	20.2	66.8	3.4	94.0
Phenoxymethylpenicillin-n	19.6	2.9	80.0	8.7	84.7	34.4	120.4	8.3	75.8
Phenethicillin-n	19.2	2.9	133.3	73.0	-	-	121.2	8.9	70.0
sulfantran-n	29.2	26.7	38.0	16.4	44.7	1.2	80.4	9.2	147.3
Thiabendazole-M-n	24.8	8.2	71.3	12.2	90.0	22.3	75.2	12.8	109.3
Toltrazuril-n	23.6	9.1	14.8	52.0	21.3	37.0	64.0	11.0	206.5
Thiamphenicol-n	20.4	3.3	195.3	9.0	54.0	33.0	92.4	11.7	97.3
Zeranol-n	28.4	5.5	-	-	-	-	74.4	8.4	88.5

### 1.6 妥当性評価

妥当性評価ガイドライン<sup>5)</sup>に従って、Fig.1に示した方法の妥当性評価を豚肉、鶏肉およびブリについて実施した。添加量を一律基準である0.01μg/g、基準値の平均的濃度として0.1μg/gと決定し評価した結果、低濃度における真度70%以上120%以下、RSD（併行精度）25%以下、RSD（室内精度）30%

以下の動物用医薬品は豚肉で46成分、鶏肉で38成分、ぶりで41成分であった。（Table2参照）また、高濃度における真度70%以上120%以下、RSD（併行精度）15%以下、RSD（室内精度）20%以下であった動物用医薬品は豚肉で45成分、鶏肉で47成分、ブリで64成分であった。（Table2参照）。

Table2.Validation results

Analyte	Swine muscle				Chicken muscle				Yellowtail			
	Fortification level ( $\mu\text{g/g}$ )	Accuracy (%)	Repeat ability (%)	Within laboratory reproducibility (%)	Fortification level ( $\mu\text{g/g}$ )	Accuracy (%)	Repeat ability (%)	Within laboratory reproducibility (%)	Fortification level ( $\mu\text{g/g}$ )	Accuracy (%)	Repeat ability (%)	Within laboratory reproducibility (%)
2-Quinoxalinecarboxylic acid	0.01	89.3	24.9	29.4	0.01	96.7	17.1	29.0	0.01	103.3	70.6	68.3
5-Hydroxy-thiabendazole	0.01	94.7	20.8	23.7	0.01	71.3	11.5	18.8	0.01	36.0	2.8	7.9
Albendazole metabolite	0.01	74.0	16.0	25.1	0.01	68.7	4.2	6.1	0.01	82.0	19.6	26.1
Allethrin	0.01	-	-	-	0.01	-	-	-	0.01	-	-	-
Altrenogest	0.01	48.7	11.0	22.6	0.01	39.3	13.3	33.9	0.01	107.3	26.6	24.7
Ampicillin	0.01	92.0	17.3	21.4	0.01	63.3	20.4	32.3	0.01	90.7	22.8	28.2
Amprolium	0.01	61.3	15.9	19.4	0.01	78.0	33.0	42.4	0.01	51.3	26.9	52.3
Azaperone	0.01	82.0	6.1	10.0	0.01	72.7	18.6	25.6	0.01	64.0	5.3	8.3
Benzylpenicillin	0.01	52.7	1.2	2.2	0.01	42.7	10.3	24.1	0.01	70.0	21.9	24.1
Carbadox	0.01	39.3	18.6	47.2	0.01	46.0	9.2	19.9	0.01	83.3	55.5	66.6
Cefalexin	0.01	28.0	14.1	50.5	0.01	62.0	44.7	72.1	0.01	94.0	36.8	39.1
Cefalonium	0.01	69.0	1.4	2.0	0.01	24.0	28.3	117.9	0.01	94.7	80.8	85.3
Cefapirin	0.01	171.0	12.7	7.4	0.01	44.7	6.1	13.7	0.01	158.0	14.1	9.0
Cefazolin	0.01	78.0	21.6	27.7	0.01	102.0	44.0	43.1	0.01	87.3	32.3	37.0
Chlortetracycline	0.01	111.3	24.3	26.0	0.01	134.0	138.6	59.2	0.01	110.0	24.3	29.4
Ciprofloxacin	0.01	119.3	24.5	27.6	0.01	90.0	15.4	21.6	0.01	93.3	8.1	8.7
Clenbuterol	0.01	56.0	7.2	12.9	0.01	74.7	12.2	16.4	0.01	66.7	16.0	24.1
Clopidol	0.01	91.3	16.2	20.6	0.01	71.3	9.2	15.1	0.01	90.7	18.0	23.0
Cloxacillin	0.01	-	-	-	0.01	-	-	-	0.01	-	-	-
Cyromazine	0.01	64.5	74.8	116.0	0.01	61.5	75.4	122.6	0.01	-	-	-
Danofloxacin	0.01	159.3	173.8	109.1	0.01	133.3	121.8	91.4	0.01	106.0	73.0	68.9
Dexamethasone	0.01	66.0	15.1	22.9	0.01	59.3	7.6	12.8	0.01	108.7	41.2	37.9
Diaveridine	0.01	88.0	15.6	17.8	0.01	80.7	7.6	9.4	0.01	72.7	20.2	25.3
Dicloxacillin	0.01	41.3	13.0	31.5	0.01	67.3	7.0	10.4	0.01	60.0	32.9	54.9
Difloxacin	0.01	88.0	17.0	23.4	0.01	79.3	23.9	29.0	0.01	90.7	15.6	21.3
Difurazon	0.01	58.0	17.8	30.6	0.01	44.7	16.0	35.9	0.01	94.0	29.9	31.8
Emamectin B1a	0.01	65.3	4.2	6.4	0.01	72.0	13.9	19.2	0.01	80.7	10.3	12.7
Enoxacin	0.01	170.0	95.3	56.1	0.01	113.3	14.5	12.8	0.01	182.7	88.0	48.2
Enrofloxacin	0.01	97.3	21.8	27.2	0.01	80.0	23.3	26.6	0.01	72.0	21.6	29.0
Epoxiconazole	0.01	45.3	15.1	33.4	0.01	53.3	4.2	7.8	0.01	90.0	19.5	22.7
Erythromycin A	0.01	50.7	17.9	35.4	0.01	64.0	12.5	19.5	0.01	62.7	24.4	39.0
Ethopabate	0.01	74.0	4.0	7.4	0.01	53.3	1.2	2.2	0.01	69.3	20.8	30.0
Ethoxyquin	0.01	59.3	13.0	21.9	0.01	79.3	6.4	8.1	0.01	68.0	2.8	4.2
Famphur	0.01	41.3	1.2	2.8	0.01	61.3	9.9	16.1	0.01	88.0	15.1	21.2
Fenobucarb	0.01	51.3	22.7	44.3	0.01	48.0	5.3	11.0	0.01	99.3	18.1	28.3
Flubendazole	0.01	75.3	6.0	13.6	0.01	73.3	11.7	22.0	0.01	82.0	18.4	24.6
Flumequine	0.01	44.0	5.0	9.1	0.01	55.3	6.4	11.6	0.01	62.0	23.6	38.0
Furazolidone	0.01	79.3	4.2	5.2	0.01	66.7	1.2	1.7	0.01	102.0	24.2	23.8
Leuco malachite	0.01	40.0	10.4	26.0	0.01	46.7	1.2	2.5	0.01	-	-	-
Levamisole	0.01	78.7	16.2	20.5	0.01	71.3	5.0	7.1	0.01	82.0	20.9	25.5
Lincomycin	0.01	109.3	17.5	24.3	0.01	100.7	7.6	7.5	0.01	117.3	50.3	42.9
Malachite	0.01	47.3	6.4	13.6	0.01	53.3	16.7	31.2	0.01	50.0	8.7	17.4
Marbofloxacin	0.01	74.0	6.0	8.1	0.01	90.7	4.2	4.6	0.01	96.7	15.2	26.0
Melengestrol	0.01	-	-	-	0.01	-	-	-	0.01	-	-	-
Meloxicam	0.01	82.7	8.1	15.3	0.01	55.3	6.4	11.6	0.01	34.0	20.3	59.7
Metoclopramide	0.01	58.0	2.0	3.4	0.01	76.0	12.5	16.4	0.01	63.3	7.0	11.1
Metronidazole	0.01	132.0	65.9	50.0	0.01	90.7	15.4	22.2	0.01	151.3	75.6	50.0
Miloxacin	0.01	54.0	9.2	17.0	0.01	53.3	8.1	15.2	0.01	66.0	14.4	21.9
Monensin	0.01	80.7	18.6	23.0	0.01	54.0	3.5	6.4	0.01	17.3	8.1	46.6
Morantel	0.01	57.3	14.0	24.5	0.01	48.7	9.0	18.5	0.01	58.7	2.3	3.9
Nalidixic acid	0.01	51.3	7.0	13.7	0.01	52.7	5.0	9.6	0.01	62.7	20.0	32.0
Nafcillin	0.01	71.3	15.1	21.2	0.01	66.7	11.5	17.3	0.01	61.3	11.5	18.8
Neospiramycin	0.01	70.7	60.2	85.2	0.01	59.3	5.8	9.7	0.01	93.3	19.7	21.8
Norfloxacin	0.01	119.3	16.2	13.5	0.01	97.3	16.3	27.3	0.01	140.7	18.6	13.2
Ofloxacin	0.01	88.7	12.2	13.8	0.01	97.3	13.3	13.7	0.01	110.0	16.2	23.8
Olaquinox	0.01	67.3	23.4	34.7	0.01	40.7	31.1	76.6	0.01	48.7	15.0	30.8
Oleandomycin	0.01	74.0	7.2	9.7	0.01	81.3	6.4	7.9	0.01	76.7	21.0	27.4
Orbifloxacin	0.01	60.7	15.1	25.0	0.01	74.7	28.0	37.5	0.01	65.3	13.3	20.4
Ormetoprim	0.01	50.7	2.3	4.6	0.01	68.0	10.6	15.6	0.01	56.7	10.3	18.1
Oxacillin	0.01	50.7	4.6	9.1	0.01	63.3	20.5	32.4	0.01	76.0	16.9	21.7
Oxolinic acid	0.01	67.3	2.3	3.4	0.01	72.0	15.6	21.7	0.01	62.0	10.0	16.1
Oxybendazole	0.01	74.7	7.6	11.7	0.01	72.0	7.2	10.0	0.01	78.7	23.2	29.5
Oxytetracycline	0.01	117.3	16.0	24.2	0.01	128.7	8.1	3.5	0.01	123.3	609.7	97.8
Piromidic Acid	0.01	52.7	9.5	17.9	0.01	53.3	6.4	12.1	0.01	56.7	19.6	34.6
Prednisolone	0.01	62.0	4.0	6.5	0.01	58.7	18.9	32.2	0.01	69.3	27.2	39.2
Pyrimethamine	0.01	70.0	8.0	11.4	0.01	74.0	9.2	12.4	0.01	78.7	19.2	24.4
Salinomycin	0.01	51.3	1.2	2.2	0.01	53.3	12.1	22.6	0.01	68.7	27.3	39.8
Sarafloxacin	0.01	78.0	23.8	28.9	0.01	75.3	18.1	24.1	0.01	114.0	18.9	22.9
Spiramycin I	0.01	75.3	37.9	76.8	0.01	82.7	41.1	49.7	0.01	95.3	18.9	20.8
Sulfabenzamide	0.01	72.7	21.6	41.0	0.01	42.7	7.6	17.7	0.01	72.0	23.9	26.9
Sulfacetamide	0.01	-	-	-	0.01	-	-	-	0.01	80.0	76.1	95.1
Sulfachlorpyridazine	0.01	77.0	14.0	24.8	0.01	76.0	8.0	14.3	0.01	114.7	53.9	47.0
Sulfadiazine	0.01	81.3	18.6	45.0	0.01	39.3	14.5	36.8	0.01	75.3	42.8	56.8
Sulfadimethoxine	0.01	70.0	12.2	24.3	0.01	74.7	7.0	12.8	0.01	74.7	23.7	25.2
Sulfadimidine	0.01	74.7	7.6	13.9	0.01	85.3	2.3	3.5	0.01	84.0	16.7	23.7
Sulfadoxine	0.01	82.0	8.7	16.8	0.01	74.7	7.0	12.8	0.01	80.7	23.4	29.1
Sulfaguandine	0.01	-	-	-	0.01	-	-	-	0.01	93.3	58.0	62.1
Sulfamerazine	0.01	36.0	17.3	48.1	0.01	60.0	10.6	17.6	0.01	68.0	30.8	45.3
Sulfamethoxazole	0.01	78.0	24.3	28.7	0.01	70.7	6.1	10.1	0.01	102.0	49.2	48.2
Sulfamethoxypyridazine	0.01	76.0	8.7	19.0	0.01	72.7	7.0	11.2	0.01	86.0	44.2	51.4
Sulfamonomethoxine	0.01	78.7	23.1	27.5	0.01	82.7	5.8	9.2	0.01	153.3	121.4	79.2
Sulfanilamide	0.01	-	-	-	0.01	-	-	-	0.01	-	-	-
Sulfapyridine	0.01	40.0	15.6	39.1	0.01	44.0	13.1	29.8	0.01	55.3	28.0	50.6
Sulfathiazole	0.01	37.3	18.5	49.5	0.01	53.3	5.0	9.4	0.01	44.7	20.0	44.9
Sulfisomazine	0.01	112.7	20.8	25.1	0.01	102.0	45.2	44.3	0.01	108.0	52.0	48.1
Sulfisozole	0.01	75.3	13.3	20.4	0.01	74.0	2.0	3.7	0.01	112.0	9.7	13.3
Sulfquinoxalin	0.01	72.7	24.8	28.2	0.01	45.3	7.0	15.5	0.01	63.3	34.4	54.4
Triclabendazole	0.01	33.3	17.2	51.7	0.01	52.0	8.7	16.8	0.01	84.7	8.9	15.9
Templos	0.01	46.7	13.6	29.2	0.01	70.0	10.0	14.3	0.01	126.0	43.3	34.3
Tetracycline	0.01	110.0	24.7	27.3	0.01	142.0	60.1	24.8	0.01	384.7	55.2	14.4
Thiabendazole	0.01	49.3	7.6	15.3	0.01	56.0	22.5	40.2	0.01	56.0	8.0	14.3
Tiamulin	0.01	72.0	3.5	4.8	0.01	89.3	18.1	20.3	0.01	75.3	9.0	12.0
Tilmicosin	0.01	122.7	89.5	73.0	0.01	113.3	19.9	21.7	0.01	120.0	8.6	12.2
Trenbolone (a)	0.01	80.7	7.6	14.9	0.01	58.7	6.4	11.0	0.01	84.0	4.1	10.6
Trenbolone (b)	0.01	74.7	12.9	23.5	0.01	57.3	4.2	7.3	0.01	74.7	7.2	16.5
Trichlorfon	0.01	72.0	29.5	40.9	0.01	-	-	-	0.01	-	-	-

Analyte	Swine muscle				Chicken muscle				Yellowtail			
	Fortification level (μg/g)	Accuracy (%)	Repeat ability (%)	Within laboratory reproducibility (%)	Fortification level (μg/g)	Accuracy (%)	Repeat ability (%)	Within laboratory reproducibility (%)	Fortification level (μg/g)	Accuracy (%)	Repeat ability (%)	Within laboratory reproducibility (%)
Trimethoprim	0.01	58.0	3.5	6.0	0.01	66.7	17.0	25.5	0.01	62.7	11.4	18.1
Tripeleminamine	0.01	78.7	1.2	1.7	0.01	77.3	11.4	14.7	0.01	70.7	4.6	6.5
Tylosin	0.01	85.3	15.0	27.1	0.01	82.7	28.9	35.0	0.01	72.7	15.1	20.8
Xylazine	0.01	74.7	3.1	4.1	0.01	87.3	12.9	14.7	0.01	74.0	15.9	21.5
2-Acetyl-5-nitro-n	0.01	48.7	13.0	26.7	0.01	59.3	10.1	17.0	0.01	58.7	9.9	16.8
Cefurox-n	0.01	82.0	34.6	42.2	0.01	-	-	-	0.01	128.7	13.0	10.1
Clorsulon-n	0.01	57.3	8.3	14.5	0.01	56.7	5.0	8.9	0.01	68.7	11.0	16.0
Chloramphenicol-n	0.01	54.0	5.3	9.8	0.01	67.3	41.2	61.2	0.01	51.3	17.5	34.0
Diclazuril-n	0.01	194.0	77.2	39.8	0.01	244.0	74.8	30.7	0.01	184.7	79.6	43.1
Florfenicol-n	0.01	44.7	5.0	11.3	0.01	57.3	20.8	36.3	0.01	58.7	9.5	16.1
Nicarbazin-n	0.01	55.3	7.6	13.7	0.01	59.3	4.2	7.0	0.01	56.0	7.2	12.9
Phenoxyethylpenicillin-n	0.01	34.7	6.4	18.5	0.01	50.0	16.4	32.7	0.01	18.0	11.1	61.9
Phenethicillin-n	0.01	35.3	7.0	19.9	0.01	42.0	15.1	36.0	0.01	14.7	11.4	77.5
sulfantran-n	0.01	58.0	12.5	21.5	0.01	64.7	16.8	25.9	0.01	64.7	12.2	18.9
Thiabendazole-M-n	0.01	40.7	15.0	36.9	0.01	44.0	23.1	52.4	0.01	65.3	6.4	9.8
Toltrazuril-n	0.01	72.7	11.0	15.2	0.01	65.3	38.9	59.5	0.01	68.7	25.2	36.6
Thiamphenicol-n	0.01	50.7	13.3	26.3	0.01	40.0	19.1	47.7	0.01	80.7	15.9	24.4
Zeranol-n	0.01	57.3	7.0	12.3	0.01	58.7	8.1	13.8	0.01	79.3	12.2	15.4
2-Quinoxalinecarboxylicacid	0.1	91.3	5.6	9.0	0.1	81.7	9.5	16.1	0.1	114.7	12.0	15.3
5-Hydroxy-thiabendazole	0.1	99.3	8.2	8.5	0.1	79.9	8.7	13.3	0.1	32.9	48.9	148.6
Albendazole metabolite	0.1	81.7	8.8	13.0	0.1	59.6	3.9	6.6	0.1	89.0	5.1	18.2
Allethrin	0.1	-	-	-	0.1	-	-	-	0.1	-	-	-
Altrenogest	0.1	60.8	4.0	6.6	0.1	61.9	5.6	9.1	0.1	82.5	15.1	18.4
Ampicillin	0.1	95.9	7.1	8.7	0.1	75.9	5.6	13.7	0.1	94.6	47.8	50.5
Amprolium	0.1	60.5	8.5	14.1	0.1	67.3	16.7	24.9	0.1	46.5	22.5	48.5
Azapiperone	0.1	71.5	4.1	5.7	0.1	73.6	8.1	10.9	0.1	82.3	10.6	12.9
Benzylpenicillin	0.1	58.9	8.2	14.0	0.1	71.5	10.4	18.5	0.1	78.9	8.0	15.5
Carbadox	0.1	59.0	0.3	0.6	0.1	65.5	5.0	7.7	0.1	106.6	15.1	42.3
Cefalexin	0.1	57.6	12.6	21.8	0.1	62.0	16.5	26.7	0.1	66.9	15.1	22.5
Cefalonium	0.1	69.5	27.9	40.1	0.1	82.1	5.5	13.3	0.1	102.0	5.4	10.3
Cefapirin	0.1	113.4	5.2	4.9	0.1	49.9	5.5	10.9	0.1	124.7	58.5	46.9
Cefazolin	0.1	71.3	6.5	13.2	0.1	109.6	5.1	7.6	0.1	82.8	5.4	10.7
Chlortetracycline	0.1	111.9	10.5	13.4	0.1	116.5	9.8	18.2	0.1	106.1	7.0	11.7
Ciprofloxacin	0.1	102.9	6.9	9.2	0.1	81.2	5.1	10.9	0.1	111.2	6.2	12.6
Clenbuterol	0.1	69.7	5.0	7.2	0.1	73.0	11.5	15.7	0.1	83.5	5.5	18.5
Clopidol	0.1	91.1	4.7	7.1	0.1	88.3	11.2	15.3	0.1	99.5	11.3	11.4
Cloxacillin	0.1	-	-	-	0.1	-	-	-	0.1	-	-	-
Cyromazine	0.1	29.3	33.8	115.7	0.1	64.2	81.0	126.2	0.1	-	-	-
Danofloxacin	0.1	148.4	145.4	97.9	0.1	105.7	10.9	17.7	0.1	153.1	129.7	84.7
Dexamethasone	0.1	70.3	7.2	10.3	0.1	73.4	14.0	19.1	0.1	124.5	53.7	43.1
Diaveridine	0.1	73.9	5.8	7.9	0.1	48.5	13.0	26.8	0.1	100.8	13.3	13.0
Dicloxacillin	0.1	58.5	10.1	17.3	0.1	67.6	13.0	19.2	0.1	59.3	13.2	22.3
Difloxacin	0.1	77.7	7.8	10.0	0.1	78.7	4.3	5.5	0.1	102.2	7.3	16.9
Difurazon	0.1	58.9	9.0	15.3	0.1	53.5	10.7	19.9	0.1	81.5	13.5	18.9
Emamectin B1a	0.1	74.3	3.8	5.1	0.1	64.5	4.6	7.1	0.1	92.6	10.4	12.0
Enoxacin	0.1	156.9	72.7	46.4	0.1	104.7	6.0	14.4	0.1	177.5	77.8	43.8
Enrofloxacin	0.1	71.1	8.3	15.8	0.1	74.3	6.1	8.2	0.1	81.5	9.8	12.0
Epoxiconazole	0.1	65.3	3.1	4.7	0.1	67.6	9.5	14.1	0.1	88.0	8.7	11.2
Erythromycin A	0.1	53.1	20.5	38.5	0.1	59.7	29.4	49.3	0.1	71.7	7.3	8.1
Ethopabate	0.1	74.9	4.8	6.4	0.1	63.4	6.1	9.6	0.1	87.3	10.6	13.6
Ethoxyquin	0.1	51.7	3.5	6.8	0.1	55.7	6.7	11.9	0.1	32.5	48.3	148.3
Famphur	0.1	69.7	3.8	5.4	0.1	69.6	9.0	12.9	0.1	99.2	10.0	13.3
Fenobucarb	0.1	69.5	3.2	4.7	0.1	64.6	6.8	10.5	0.1	101.1	14.3	13.9
Flubendazole	0.1	74.2	5.7	7.6	0.1	73.2	9.9	13.5	0.1	101.6	13.6	13.2
Flumequine	0.1	65.3	4.6	7.1	0.1	66.2	9.6	14.5	0.1	83.1	8.1	11.8
Furazolidone	0.1	78.5	5.7	7.2	0.1	85.3	8.8	12.0	0.1	122.8	36.4	29.7
Leuco malachite	0.1	53.7	7.7	14.4	0.1	50.9	2.2	4.4	0.1	69.4	115.4	166.3
Levamisole	0.1	70.1	5.7	8.2	0.1	66.5	7.0	10.5	0.1	83.5	11.1	19.2
Lincomysin	0.1	105.7	7.6	15.6	0.1	96.1	12.4	13.7	0.1	126.1	54.4	43.1
Malachite	0.1	46.0	2.5	5.4	0.1	43.9	1.7	4.0	0.1	49.8	3.3	6.6
Marbofloxacin	0.1	88.5	10.1	11.4	0.1	77.9	11.8	15.2	0.1	102.9	13.7	18.0
Melengestrol	0.1	-	-	-	0.1	-	-	-	0.1	-	-	-
Meloxicam	0.1	70.6	2.6	4.3	0.1	71.4	5.2	7.3	0.1	38.7	10.5	27.2
Metoclopramide	0.1	67.2	2.8	4.2	0.1	71.9	8.2	11.4	0.1	74.6	7.5	10.0
Metronidazole	0.1	137.7	65.4	47.5	0.1	115.1	7.6	11.4	0.1	143.7	74.0	51.5
Miloxacin	0.1	63.5	3.1	4.9	0.1	62.0	10.6	17.2	0.1	79.3	14.5	18.3
Monensin	0.1	62.6	10.5	16.8	0.1	58.1	13.0	22.4	0.1	33.8	12.4	36.6
Morantel	0.1	55.9	3.8	6.8	0.1	55.6	12.2	22.0	0.1	68.3	9.8	14.4
Nalidixic acid	0.1	65.3	4.5	6.8	0.1	58.3	8.8	15.1	0.1	78.5	13.5	17.2
Nafcillin	0.1	58.1	13.7	23.6	0.1	70.7	13.7	18.6	0.1	57.1	13.0	22.8
Neospiramycin	0.1	53.9	18.3	33.9	0.1	63.8	0.5	0.8	0.1	104.6	11.5	15.7
Norfloxacin	0.1	144.3	58.6	40.6	0.1	113.5	5.9	12.9	0.1	168.3	55.1	32.7
Ofoxacin	0.1	69.7	19.9	28.6	0.1	84.9	3.4	4.0	0.1	79.9	9.1	11.4
Olaquinox	0.1	66.2	21.7	32.8	0.1	49.3	14.4	29.3	0.1	54.0	13.8	25.5
Oleandomycin	0.1	76.8	12.2	15.8	0.1	80.0	7.8	12.2	0.1	98.1	12.3	16.7
Orbifloxacin	0.1	64.1	2.8	4.3	0.1	65.8	7.0	10.6	0.1	80.7	14.4	17.8
Ormetoprim	0.1	62.8	3.8	6.1	0.1	67.1	7.1	10.6	0.1	69.7	7.9	11.4
Oxacillin	0.1	65.3	12.8	19.6	0.1	78.0	7.9	13.0	0.1	70.5	14.5	16.6
Oxolinic acid	0.1	65.8	5.2	7.9	0.1	63.6	11.8	18.6	0.1	84.9	10.8	14.5
Oxybendazole	0.1	75.3	7.2	9.6	0.1	76.3	5.8	10.6	0.1	97.9	6.5	7.1
Oxytetracycline	0.1	99.7	15.4	17.9	0.1	116.3	10.9	14.6	0.1	119.9	12.4	19.3
Piromidic Acid	0.1	66.3	7.4	11.2	0.1	65.5	9.1	13.9	0.1	80.9	9.2	13.7
Prednisolone	0.1	70.7	3.5	5.0	0.1	62.3	7.0	11.3	0.1	95.9	32.5	33.9
Pyrimethamine	0.1	72.5	7.3	10.1	0.1	74.5	14.9	19.1	0.1	89.2	9.3	11.7
Salinomycin	0.1	50.8	6.2	12.2	0.1	15.7	1.0	6.4	0.1	50.7	17.8	35.1
Sarafloxacin	0.1	76.5	12.8	16.7	0.1	74.4	3.0	4.1	0.1	105.0	7.5	7.1
Spiramycin I	0.1	52.1	7.4	14.2	0.1	61.8	7.6	12.3	0.1	95.6	2.7	2.9
Sulfabenzamide	0.1	69.8	4.4	6.3	0.1	67.1	7.7	11.5	0.1	98.0	13.7	14.3
Sulfacetamide	0.1	103.3	36.4	35.3	0.1	-	-	-	0.1	102.4	7.2	16.1
Sulfachlorpyridazine	0.1	78.0	7.5	9.7	0.1	71.1	4.9	11.0	0.1	131.5	68.4	52.0
Sulfadiazine	0.1	51.4	13.0	25.2	0.1	43.0	15.6	36.2	0.1	63.5	5.6	8.8
Sulfadimethoxine	0.1	72.7	4.5	6.2	0.1	68.7	11.5	16.8	0.1	94.7	11.4	13.2
Sulfadimidine	0.1	68.8	5.2	7.5	0.1	74.7	14.2	19.1	0.1	96.5	12.2	13.3
Sulfadoxine	0.1	72.3	5.0	6.9	0.1	71.0	9.5	13.3	0.1	96.5	8.9	19.9
Sulfaguandine	0.1	102.1	38.4	37.6	0.1	-	-	-	0.1	91.3	13.6	19.7
Sulfamerazine	0.1	65.0	1.3	2.0	0.1	70.1	7.6	10.8	0.1	89.5	7.5	10.7
Sulfamethoxazole	0.1	73.3	4.9	6.7	0.1	73.1	14.2	19.4	0.1	116.0	10.0	14.5

Analyte	Swine muscle				Chicken muscle				Yellowtail			
	Fortification level ( $\mu\text{g/g}$ )	Accuracy (%)	Repeat-ability (%)	Within laboratory reproducibility (%)	Fortification level ( $\mu\text{g/g}$ )	Accuracy (%)	Repeat-ability (%)	Within laboratory reproducibility (%)	Fortification level ( $\mu\text{g/g}$ )	Accuracy (%)	Repeat-ability (%)	Within laboratory reproducibility (%)
Sulfamethoxypyridazine	0.1	69.7	4.4	6.4	0.1	78.1	13.5	17.3	0.1	99.9	5.9	15.9
Sulfamonomethoxine	0.1	77.3	9.3	12.1	0.1	78.0	7.4	12.3	0.1	129.9	62.7	48.3
Sulfanilamide	0.1	-	-	-	0.1	-	-	-	0.1	-	-	-
Sulfapyridine	0.1	58.7	0.3	0.5	0.1	64.5	5.2	8.0	0.1	76.5	14.4	19.9
Sulfathiazole	0.1	48.3	8.0	16.6	0.1	46.6	8.5	18.3	0.1	58.9	8.6	14.5
Sulfisomizine	0.1	119.5	8.2	10.4	0.1	120.7	51.8	42.9	0.1	125.2	60.3	48.1
Sulfisozole	0.1	70.3	3.5	5.0	0.1	76.0	5.3	10.1	0.1	133.8	63.8	47.7
Sulfquinosalin	0.1	70.9	4.4	6.2	0.1	64.5	7.8	12.1	0.1	89.7	9.3	12.6
Triclabendazole	0.1	56.7	3.6	6.4	0.1	54.3	7.4	13.6	0.1	93.3	7.8	19.8
Temphos	0.1	54.2	8.4	15.5	0.1	51.6	6.8	13.2	0.1	384.4	480.5	125.0
Tetracycline	0.1	73.5	10.8	12.2	0.1	150.9	34.7	23.0	0.1	100.2	8.8	2.4
Thiabendazole	0.1	56.5	2.2	3.8	0.1	54.3	5.1	9.4	0.1	67.1	6.9	10.3
Tiamulin	0.1	75.1	8.2	11.0	0.1	72.7	5.4	11.2	0.1	84.4	13.2	15.7
Tilmicosin	0.1	108.8	10.3	16.2	0.1	105.7	6.6	15.7	0.1	133.1	38.8	29.2
Trenbolone (a)	0.1	70.5	5.7	8.1	0.1	63.1	6.6	10.4	0.1	96.6	11.7	12.8
Trenbolone (b)	0.1	76.3	2.8	4.2	0.1	64.4	8.0	12.4	0.1	109.2	13.9	19.4
Trichlorfon	0.1	66.1	11.0	16.7	0.1	-	-	-	0.1	42.1	8.7	20.7
Trimethoprim	0.1	60.9	1.4	2.3	0.1	60.9	2.0	3.3	0.1	66.1	6.5	9.8
Tripeleminamine	0.1	72.3	3.5	4.8	0.1	75.8	10.7	14.2	0.1	80.9	9.2	11.4
Tylosin	0.1	53.1	10.1	19.0	0.1	63.3	15.7	24.8	0.1	86.7	14.9	18.4
Xylazine	0.1	70.7	4.6	6.5	0.1	71.9	9.7	13.5	0.1	72.9	14.8	19.3
2-Acetyl-5-nitro-n	0.1	66.2	3.0	4.5	0.1	69.3	8.6	12.5	0.1	79.6	9.4	11.8
Cefurox-n	0.1	72.8	14.7	20.2	0.1	-	-	-	0.1	80.8	15.2	18.8
Clorsulon-n	0.1	65.6	1.8	2.8	0.1	64.0	2.9	4.6	0.1	69.3	3.3	4.7
Chloramphenicol-n	0.1	62.1	5.0	8.1	0.1	67.7	8.6	12.7	0.1	65.7	8.5	12.9
Diclazuril-n	0.1	133.0	65.1	48.9	0.1	154.2	71.7	46.5	0.1	147.1	86.8	59.0
Florfenicol-n	0.1	67.3	0.6	0.9	0.1	71.8	8.1	11.3	0.1	72.3	4.6	6.4
Nicarbazin-n	0.1	63.1	2.1	3.3	0.1	65.3	5.7	8.7	0.1	77.1	4.4	5.7
Phenoxymethylpenicillin-n	0.1	50.3	2.1	4.1	0.1	60.1	3.8	6.3	0.1	32.4	6.5	20.1
Phenethicillin-n	0.1	53.8	0.3	0.6	0.1	62.9	3.3	5.2	0.1	26.9	12.8	47.5
sulfantran-n	0.1	64.5	6.3	9.7	0.1	79.1	9.7	12.2	0.1	70.7	6.4	9.1
Thiabendazole-M-n	0.1	60.3	1.8	3.0	0.1	71.8	8.3	11.5	0.1	86.1	12.4	14.4
Toltrazuril-n	0.1	68.1	14.5	21.3	0.1	99.7	21.1	21.2	0.1	81.1	21.6	26.7
Thiamphenicol-n	0.1	60.7	2.6	4.2	0.1	69.9	2.7	3.9	0.1	68.2	4.0	5.9
Zeranol-n	0.1	64.1	2.6	4.1	0.1	57.6	2.6	4.5	0.1	91.4	14.2	15.5

2 まとめ

合成抗菌剤や抗生物質及び寄生虫駆除剤等の動物用医薬品114種について牛肉、豚肉、鶏肉、エビおよびブリを用いて簡易で迅速な試験法を検討したところ、アセトニトリル、メタノール、ギ酸水溶液（5:3:1、v/v）の混合液を抽出溶媒として使用することにより、検討した5種の検体は、多くの項目において回収率が50～150%の範囲に入り、良好な結果であった。また、この試験法における妥当性評価（添加濃度：0.1 $\mu\text{g/g}$ 、0.01 $\mu\text{g/g}$ ）を豚肉、鶏肉およびブリで行ったところ、いずれの食品群についても約45成分程度において妥当性評価ガイドラインの条件を満たしていた。

おわりに

畜水産物に残留する動物用医薬品の一斉分析法について検討した結果、抽出・精製操作は公定法Iの1/3の時間で終了し、分析の迅速、簡便化を図ることができた。また、違反事例のある薬剤や、TC系薬剤を始めとした使用頻度が高いが公定法Iにおいても適応可能であったため、今回検討した試験法は畜水産食品中に含まれる幅広い動物用医薬品のスクリーニング法として有用であると考えられた。

添加回収試験の結果、多くの項目において回収率が50～150%の範囲であったため、緊急時のスクリーニング法としては適用可能であると考えられる。しかし、定量する場合は目的物質に合わせた固相カートリッジを選定し、処理時間とコストは増大するが、Fig.2に示すような更なるクリーンアップを行うことが望ましいと考えられた。

参考文献

- 1) S.J.Lehotay, K. Mastovska, A.R.Lifhtfield, J. AOAC88 (2005) 615-629
- 2) 厚生労働省食安監発第0214001号 “畜水産食品の残留物質対策について” 平成19年2月14日
- 3) T. Nakajima, I.Takano, Food Hyg.Saf.Sci. Vol.53, No.5 (2012) 243-253
- 4) 平成17年厚生労働省告示第497号、498号、499号。 2005.
- 5) 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の一部改正について」（平成22年12月24日付け食安発1224第2号）