

# 試験精度向上に向けた農薬、動物用医薬品標準原液の安定性評価

【化学衛生室】

湯谷 亜衣<sup>\*</sup>、米澤 友紀子、田邊 奈都子、坪内 一晃

## 1 はじめに

食品に残留する農薬、動物用医薬品の行政検査では、市販の混合標準液を用いるほか、標準品から高濃度の標準液(以下、標準原液)を調製し、これらを混合および希釈して機器分析や添加回収試験用の標準溶液としている。しかしながら、標準原液について安定性の確認は行っておらず、一般論として「6ヶ月程度保存(+5℃以下)しても問題ない<sup>1)</sup>」ということを根拠に、冷凍保存(-20℃以下)して6ヶ月毎に再調製している。

当所で調製した標準原液について根拠をもって保存期間を設定することは、検査結果の信頼性を向上させるために重要である。また、長期間の保存が可能であれば、業務の効率化も期待できる。そこで今回、標準原液の安定性について検討したので報告する。

## 2 方法

調製直後、約6ヶ月前、約12ヶ月前、約18ヶ月前、約24ヶ月前の標準原液を希釈混合し、それぞれ試験溶液を調製した。これをGC/MS/MSまたはLC/MS/MSで分析する安定性評価試験を実施した。

1回目の安定性評価試験(以下、1回目-①)を実施した数日後に、調製者を変えて同様に試験溶液を調製し、確認試験(以下、1回目-②)とした。さらに、新たな標準原液を調製する6ヶ月後に2回目の安定性評価試験(以下、2回目)を実施した(図1)。

## 2.1 対象化合物

当所で実施する農薬、動物用医薬品試験に基づき、農薬27物質、動物用医薬品21物質の計48物質を対象とし、試験品の種類および測定機器で1~4に分類した(表1)。

## 2.2 試薬

標準原液の調製および希釈には、和光純薬工業(株)製のアセトン(残留農薬試験用)、ヘキサン(残留農薬試験用)、メタノール(LC/MS用)およびアセトニトリル(LC/MS用)を用いた。水は、メルク(株)製の超純水製造装置により精製したものをを用いた。

## 2.3 標準品

ポジティブリスト制度に係る試験法の標準品として、和光純薬工業(株)、林純薬工業(株)、関東化学(株)、Dr Ehrenstorfer社およびSigma-Aldrich社から市販されているものをを用いた。

## 2.4 器具

標準原液の調製には、農薬、動物用医薬品ともにガラス製のメスフラスコを使用した。標準原液の希釈は、農薬ではガラス製のメスフラスコおよびホールピペットを、動物用医薬品ではポリプロピレン(PP)製のメスフラスコとガラス製のホールピペットを使用した。なお、ガラス製器具はアセトンおよびヘキサンのPP製器具はメタノールで使用前に洗浄し、乾燥させてから用いた。

		調製直後	6ヶ月前	12ヶ月前	18ヶ月前	24ヶ月前
2016年4月 実施	1回目-①	2016年4月調製	2015年10月調製	2015年4月調製	2014年10月調製	2014年4月調製
	↓ 数日後					
2016年4月 実施	1回目-②	2016年4月調製	2015年10月調製	2015年4月調製	2014年10月調製	2014年4月調製
	↓ 6ヶ月後					
2016年10月 実施	2回目	2016年10月調製	2016年4月調製	2015年10月調製	2015年4月調製	2014年10月調製

図1 安定性評価試験の流れ(一例)

<sup>\*</sup> 現・鳥取県東部生活環境事務所生活安全課

表1 対象化合物および分類

分類	1	2	3	4
区分	農薬	農薬	動物用医薬品	動物用医薬品
試験品の種類	野菜、果実等	野菜、果実等	鶏肉、鶏卵	豚肉、牛肉
測定機器	GC/MS/MS	LC/MS/MS	LC/MS/MS	LC/MS/MS
対象化合物	BHC( $\alpha$ ) BHC( $\beta$ ) BHC( $\gamma$ ) Dimethylvinphos(E) Disulfoton Disulfoton sulfone Endosulfan( $\alpha$ ) Endosulfan( $\beta$ ) Fludioxonil Formothion Metalaxyl Metominostrobin(E) Propaphos Resmethrin	Acetamiprid Azimsulfuron Ethoxysulfuron Florasulam Flusulfamide Imazaquinm Ioxynil Lufenuron MCPB Mecoprop Mepanipyrim代謝物 Silaflofen Triclopyr	Ciprofloxacin Enrofloxacin Lincomycin Ofloxacin Ormetprim Sulfamonomethoxine	Ampicillin Benzylpenicillin Cefuroxime Cephapirin Cephazolin Chlortetracycline Dexamethasone Flubendazole Ivermectin B1a Marbofloxacin Metoclopramide Oxytetracycline Tetracycline Thiamphenicol Tylosine

測定用のバイアルは、農薬ではガラス製の褐色バイアル(容量2mL、不活性化処理済)を、動物用医薬品ではPP製の透明バイアル(容量250 $\mu$ L)を使用した。

標準原液の保存にはガラス製のねじ口ヘッドスペースバイアル(容量20mL)を用い、農薬では透明のものを、動物用医薬品では褐色のものをを使用した。

## 2.5 標準原液及び試験溶液の調製

標準原液及び試験溶液は、分類1~4について以下のとおり調製した。冷凍保存(-20 $^{\circ}$ C以下)していた過去の標準原液については、室温に戻して転倒混和(再結晶しているものは超音波処理)し、同様に調製した。

### 2.5.1 分類1

標準品をそれぞれアセトンに溶解し、1000 $\mu$ g/mLの標準原液を調製した。標準原液を等量ずつ混合したのち、アセトン:ヘキサン(1:1)混液で適宜希釈し、各成分2 $\mu$ g/mLの試験溶液を調製した。また、内部標準としてりん酸トリフェニル(以下、TPP)も2 $\mu$ g/mLとなるように混合した。

### 2.5.2 分類2

標準品をそれぞれメタノールに溶解し、1000 $\mu$ g/mL(Azimsulfuronは200 $\mu$ g/mL)の標準原液を調製した。標準原液を等量ずつ混合したのち、メタノールで適宜希釈し、各成分0.004 $\mu$ g/mLの試験溶液を調製した。

### 2.5.3 分類3および4

標準品をそれぞれメタノールに溶解し、1000 $\mu$ g/mL(Flubendazoleは、少量のN,N-ジメチルホルムアミドを加えて100 $\mu$ g/mL)の標準原液を調製した。標準原液を等量ずつ混合したのち、アセトニトリル:水(4:6)溶液で適宜希釈し、各成分0.004 $\mu$ g/mLの試験溶液を調製した。調製操作は、なるべく光が当たらない場所で行った。

### 2.6 分析条件

試験溶液をバイアルに入れ、GC/MS/MSまたはLC/MS/MSで5回繰返し測定した。

#### 2.6.1 装置

##### 【GC/MS/MS】

GC部:Agilent社製 6890Plus

MS部:Waters社製 Quattro micro

##### 【LC/MS/MS】

LC部:島津(株)製 Nexera

MS部:AB SCIEX社製 QTRAP5500

#### 2.6.2 分類1の測定条件

##### 【GC部】

カラム:Agilent J&W DB-5MS+DG(10m + 30 m  $\times$  0.25mm、膜厚0.25 $\mu$ m)

ライナー:不活化処理済スプリットレスライナー、容量900 $\mu$ L、ガラスウールなし

キャリアガス:ヘリウム

ガス流量:1ml/min

カラム温度: 50°C(1min)-(15°C/min)-125°C  
 -(5°C/min)-250°C-(10°C/min)-300°C(1min)  
 ポストラン310°C(3min)  
 注入量: 2μL(スプリットレス)

【MS部】

インターフェース温度: 280°C  
 イオン源温度: 250°C  
 イオン化電圧: 70eV(EI)  
 モニターイオン: 表2のとおり

2.6.3 分類2の測定条件

【LC部】

カラム: XBridge C18 (2.1mm×150mm、3.5μm)  
 カラム温度: 40°C  
 移動相: A液 5mM酢酸アンモニウム水溶液  
           B液 5mM酢酸アンモニウムメタノール溶液  
 流速: 0.2mL/min  
 グラジエント: B液 15%-(1min)-40%(2.5min)-(2.5min)  
 -50%-(2min)-55%-(9.5min)-95%(10min)-15%(7.5min)  
 注入量: 5μL

【MS部】

イオン化法: ESI(+)/ESI(-)  
 イオンスプレー電圧(IS): 5500V(+)/-4500 V(-)  
 脱溶媒温度(TEM): 350°C  
 カーテンガス圧(CUR): 30psi  
 コリジョンガス(CAD): 8  
 ネブライザーガス圧(GAS1): 70psi  
 ターボガス圧(GAS2): 50psi  
 モニターイオン: 表2のとおり

2.6.4 分類3の測定条件

【LC部】

カラム: L-column 2 ODS(2.1mm×150mm、3μm)  
 カラム温度: 40°C  
 移動相:  
 A液 0.1mMギ酸アンモニウム、0.1%ギ酸水溶液  
 B液 0.1mMギ酸アンモニウム、0.1%ギ酸アセトニトリ  
       ル溶液  
 流速: 0.2mL/min  
 グラジエント: B液 5%(1min)-(12min)-40%-(2min)  
 -98%(10min)-(0.1min)-5%(9.9min)  
 注入量: 3μL

表2 モニターイオン一覧

分類	化合物	プレカーサー イオン (m/z)	プロダクト イオン (m/z)	分類	化合物	プレカーサー イオン (m/z)	プロダクト イオン (m/z)
1	BHC (α)	219	183	3	Ciprofloxacin	332.1	288.2
	BHC (β)	219	183		Enrofloxacin	360.1	316.1
	BHC (γ)	219	183		Lincomycin	407.2	126.0
	Dimethylvinphos (E)	295	109		Ofloxacin	362.2	318.2
	Disulfoton	88	60		Ormetprim	275.2	259.2
	Disulfoton sulfone	213	153		Sulfamonomethoxine	281.1	156.1
	Endosulfan (α)	205	170	4	Ampicillin	-348.0	-207.0
	Endosulfan (β)	205	170		Benzylpenicillin	-333.0	-191.7
	Fludioxonil	248	127		Cefuroxime	-423.0	-317.9
	Metalaxyl	234	146		Cephapirin	424.0	292.0
	Metominostrobin (E)	191	160		Cephazolin	455.0	323.0
	Propaphos	220	140		Chlortetracycline	479.0	444.0
	Resmethrin	171	128		Dexamethasone	393.2	373.2
	Formothion	170	93		Flubendazole	314.1	282.2
TPP (内部標準)	326	233	Ivermectin B1a		892.5	569.2	
2	Acetamidiprid	223.0	126.1		Marbofloxacin	363.2	72.1
	Azimsulfuron	425.2	182.2		Metoclopramide	300.0	227.2
	Ethoxysulfuron	399.0	261.2		Oxytetracycline	461.0	426.0
	Florasulam	360.0	129.1		Tetracycline	445.0	410.0
	Flusulfamide	-413.1	-171.0		Thiamphenicol	-354.0	-185.0
	Imazaquin	312.2	199.2	Tylosine	916.5	174.3	
	Ioxynil	-369.9	-126.9				
	Lufenuron	-509.0	-326.0				
	MCPB	-227.0	-141.0				
	Mecoprop	-213.0	-141.0				
	Mepanipyrim metabolite	244.1	199.9				
	Silafluofen	426.2	287.2				
	Triclopyr	-253.9	-196.0				

## 【MS部】

イオン化法:ESI(+)  
イオンスプレー電圧(IS):5500V(+)  
脱溶媒温度(TEM):400(°C)  
カーテンガス圧(CUR):30psi  
コリジョンガス(CAD):8  
ネブライザーガス圧(GAS1):70psi  
ターボガス圧(GAS2):80psi  
モニターイオン:表2のとおり

### 2.6.5 分類4の測定条件

## 【LC部】

カラム、カラム温度、移動相、流速:2.6.4と同じ  
グラジエント:B液 5%(1min)-(9min)-40%(3min)  
-(2min)-98%(10min)-(0.1min)-5%(9.9min)  
注入量:3μL

## 【MS部】

イオン化法:ESI(+)/ESI(-)  
イオンスプレー電圧(IS):5500V(+)/-4500V(-)  
脱溶媒温度(TEM):500(°C)  
CUR、CAD、GAS1、GAS2:2. 6. 4と同じ  
モニターイオン:表2のとおり

### 2.7 評価手順および評価基準

調製直後の標準原液のピーク面積(平均値)を100%として、保存後の標準原液の濃度変化の割合を算出した。分類1については、TPPに対するピーク面積比(平均値)で濃度変化の割合を算出した。

$$\text{濃度変化(\%)} = \frac{\text{保存後のピーク面積(面積比)}}{\text{調製直後のピーク面積(面積比)}}$$

算出した濃度変化(%)が、±10%以内<sup>2)</sup>(90%~110%)であれば評価基準適合とした。

## 3 結果および考察

分類毎の各物質の標準原液の濃度変化を表3に示す。48物質のうち3回の測定すべてで評価基準を満たした化合物は、調製後1年までで38物質、調製後2年までで34物質であった。

### 3.1 分類1

調製後1年までの標準原液では、14物質すべてで評価基準を満たした(表3-1)。

Endosulfan(α, β)についてはデータが少ないが、顕著な濃度変化は見られなかった。

### 3.2 分類2

調製後1年までの標準原液では、13物質中12物質で評価基準を満たした(表3-2)。

Azimsulfuronについては、標準原液の容器ねじ口部分に欠けが見つかったため、保存中に溶媒が揮発して濃度が高くなったものと考えられる。しかし、より古い標準原液はいずれも評価基準内であることから、Azimsulfuronの標準原液は少なくとも調製後1年までは安定と考えられる。

### 3.3 分類3

調製後1年までの標準原液では、6物質中3物質で評価基準を満たした(表3-3)。

Ciprofloxacin、Ofloxacin、Ormetprimについては、一部の測定結果で評価基準を外れたが、同じ標準原液を別の日に測定したデータや、より古い標準原液の測定データでは評価基準を満たしているため、試験溶液調製時の不手際によるものと推測した。また、Ciprofloxacin、Ofloxacinについて、10μg/mLのアセトニトリル溶液を1年間冷凍保存(-20°C以下)した残存率は95%以上であったとの報告<sup>3)</sup>もある。よってCiprofloxacin、Ofloxacin、Ormetprimについても、少なくとも調製後1年までは安定と考えられる。

### 3.4 分類4

調製後1年までの標準原液では、15物質中10物質で評価基準を満たした(表3-4)。

Marbofloxacinについては、一部の測定結果で評価基準を外れたが、同じ標準原液を別の日に測定したデータや、より古い標準原液の測定データでは評価基準を満たしているため、試験溶液調製時の不手際によるものと推測した。よってMarbofloxacinについても、少なくとも調製後1年までは安定と考えられる。

濃度変化の大きかったAmpicillin、Benzylpenicillin、Cefuroxime、Cephapirin、Cephazolinは、いずれもβ-ラクタム系抗菌剤であり、顕著な減少傾向が見られた(図2)。しかし、Ampicillin、Cefuroxime、Cephapirinについては、1回目-①と1回目-②では6ヶ月前に調製した標準原液は評価基準を満たしている。これらの標準原液は、調製後行政検査等での使用がなく、一度も解凍していなかったため6ヶ月間安定していたと推測される。

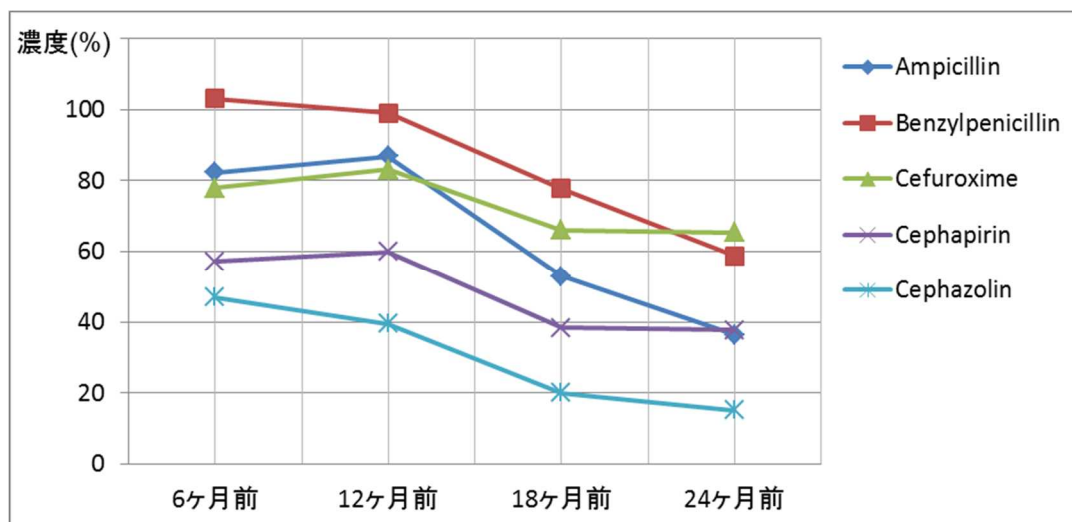


図2 β-ラクタム系抗菌剤の濃度変化(2回目をグラフ化)

#### 4 まとめ

48物質の農薬、動物用医薬品の標準原液について、安定性評価試験を実施した。一部の測定データに不備はあったものの、β-ラクタム系抗菌剤以外の43物質については、調製後1年間は安定であった。β-ラクタム系抗菌剤については、保存期間が長くなり解凍回数が増加すると顕著に減少した。

これらの結果を踏まえ、当所における標準原液の管理方法について、以下の3点の規定を定めることとした。

- ①1年間の安定性が確認できた物質については、標準原液の有効期限を1年間とする。
- ②β-ラクタム系抗菌剤については、使用する毎に標準品から用時調製することとする。
- ③これまでは洗浄して再利用していた標準原液の保存容器について、今後は新品を使用して再利用はしないこととし、容器の損傷等による濃度変化を予防する。

#### 5 参考文献

- 1) 残留農薬分析知っておきたい問答あれこれ 改訂3版2012 日本農薬学会
- 2) SANCO/12571/2013 : Method Validation & Quality Control Procedures for Pesticide Residues Analysis in Food & Feed (EU Reference Laboratories for Residues of Pesticides)
- 3) 内田耕太郎, 柿本健作, 山口貴弘, 永吉晴奈, 起橋雅浩, 小西良昌, 梶村計志: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, 21-26, 2014

表3-1 標準原液の濃度変化(%)-分類1

		6ヶ月前	12ヶ月前	18ヶ月前	24ヶ月前
BHC ( $\alpha$ )	1回目-①	98.6	107.4	106.6	113.0
	1回目-②	105.4	106.7	108.6	115.7
	2回目	100.2	101.3	108.5	104.9
BHC ( $\beta$ )	1回目-①	97.4	100.7	99.6	105.4
	1回目-②	104.3	100.1	102.6	104.1
	2回目	100.9	102.4	103.4	99.8
BHC ( $\gamma$ )	1回目-①	98.4	102.7	100.0	106.7
	1回目-②	105.5	101.0	101.8	107.1
	2回目	100.9	102.3	104.6	100.7
Dimethylvinphos (E)	1回目-①	99.5	97.4	101.3	97.7
	1回目-②	103.5	99.3	103.5	98.8
	2回目	104.8	104.9	106.4	106.9
Disulfoton	1回目-①	97.7	97.2	83.0	97.1
	1回目-②	103.3	97.2	86.0	98.0
	2回目	105.6	109.6	108.8	93.8
Disulfoton sulfone	1回目-①	97.1	91.7	88.1	76.0
	1回目-②	100.3	94.0	91.3	77.2
	2回目	105.5	107.1	102.9	
Endosulfan ( $\alpha$ )	1回目-①	98.1	—	—	—
	1回目-②	105.1	—	—	—
	2回目	100.7	101.8	—	—
Endosulfan ( $\beta$ )	1回目-①	99.0	—	—	—
	1回目-②	104.5	—	—	—
	2回目	99.9	99.4	—	—
Fludioxonil	1回目-①	101.0	99.3	97.5	100.8
	1回目-②	102.3	101.1	101.5	102.9
	2回目	98.4	101.4	98.6	98.6
Metalaxyl	1回目-①	95.2	96.7	96.2	97.1
	1回目-②	105.0	98.6	100.9	99.3
	2回目	98.3	101.5	102.6	99.9
Metominostrobin (E)	1回目-①	98.7	100.9	100.2	104.1
	1回目-②	104.0	97.9	100.2	101.7
	2回目	100.9	105.9	104.0	104.8
Propaphos	1回目-①	97.1	96.9	93.4	100.3
	1回目-②	101.7	95.7	94.8	98.3
	2回目	103.2	104.4	103.5	99.7
Resmethrin	1回目-①	99.6	102.7	101.0	104.1
	1回目-②	103.3	97.4	100.3	100.2
	2回目	101.9	103.5	102.0	104.0
Formothion	1回目-①	96.0	94.1	96.9	98.8
	1回目-②	99.1	94.8	97.2	98.2
	2回目	104.6	107.0	107.4	105.5

※調製直後を100%とした割合

表3-2 標準原液の濃度変化(%)-分類2

		6ヶ月前	12ヶ月前	18ヶ月前	24ヶ月前
Acetamiprid	1回目-①	102.9	105.8	104.2	103.7
	1回目-②	101.1	102.6	101.0	101.8
	2回目	99.7	98.9	103.1	101.2
Azimsulfuron	1回目-①	101.9	131.6	109.1	101.6
	1回目-②	99.6	128.4	106.9	102.0
	2回目	99.2	100.8	110.1	104.2
Ethoxysulfuron	1回目-①	102.9	103.0	97.4	99.3
	1回目-②	98.2	97.0	92.8	95.3
	2回目	97.6	97.1	96.4	90.2
Florasulam	1回目-①	103.2	102.1	98.9	99.9
	1回目-②	101.8	101.1	100.1	102.2
	2回目	99.3	100.7	97.9	95.1
Flusulfamide	1回目-①	106.8	106.2	105.3	103.9
	1回目-②	105.2	103.9	105.1	105.3
	2回目	94.8	98.6	96.8	95.9
Imazaquin	1回目-①	100.9	105.2	103.3	103.9
	1回目-②	99.9	100.8	101.2	101.9
	2回目	98.4	97.3	96.7	95.6
Ioxynil	1回目-①	101.3	100.9	100.1	100.7
	1回目-②	101.7	100.6	101.6	99.4
	2回目	96.7	97.8	95.6	96.0
Lufenuron	1回目-①	103.7	103.7	104.0	104.8
	1回目-②	102.4	102.6	103.0	105.3
	2回目	97.1	98.0	97.1	96.3
MCPB	1回目-①	101.2	103.2	103.6	103.5
	1回目-②	98.6	100.3	100.3	100.9
	2回目	99.9	99.7	99.5	97.5
Mecoprop	1回目-①	99.7	103.5	104.5	104.0
	1回目-②	98.9	100.6	101.0	98.6
	2回目	96.5	97.5	96.5	96.3
Mepanipyrim metabololite	1回目-①	102.9	100.7	96.4	101.7
	1回目-②	100.1	97.9	93.9	100.2
	2回目	101.4	102.4	97.6	93.3
Silaflofen	1回目-①	103.1	101.2	100.7	102.0
	1回目-②	101.5	99.5	101.4	100.9
	2回目	101.2	102.3	99.1	99.2
Triclopyr	1回目-①	102.2	102.6	105.2	102.9
	1回目-②	102.9	100.7	100.3	102.0
	2回目	97.8	99.2	96.5	96.1

※調製直後を100%とした割合

表3-3 標準原液の濃度変化(%)-分類3

		6ヶ月前	12ヶ月前	18ヶ月前	24ヶ月前
Ciprofloxacin	1回目-①	94.8	96.7	96.8	—
	1回目-②	95.5	86.5	101.0	—
	2回目	100.0	87.2	100.0	99.7
Enrofloxacin	1回目-①	98.4	96.9	97.9	—
	1回目-②	97.4	94.5	104.4	—
	2回目	99.6	92.1	102.2	98.5
Lincomycin	1回目-①	99.9	100.4	100.3	—
	1回目-②	100.2	98.3	99.8	—
	2回目	98.2	97.1	95.3	97.1
Ofloxacin	1回目-①	94.9	96.8	99.1	—
	1回目-②	99.4	94.2	106.4	—
	2回目	96.0	87.7	99.3	98.9
Ormetprim	1回目-①	104.0	90.0	74.8	—
	1回目-②	111.4	98.1	84.3	—
	2回目	96.0	105.9	97.6	70.5
Sulfamonomethoxine	1回目-①	99.4	101.0	100.6	—
	1回目-②	99.4	97.4	100.9	—
	2回目	99.7	98.1	98.5	99.6

※調製直後を100%とした割合



表3-4 標準原液の濃度変化(%)-分類4

		6ヶ月前	12ヶ月前	18ヶ月前	24ヶ月前
Ampicillin	1回目-①	97.9	70.2	44.4	—
	1回目-②	94.5	65.0	44.1	—
	2回目	82.3	86.8	52.9	36.3
Benzylpenicillin	1回目-①	99.9	89.2	71.4	—
	1回目-②	96.7	80.6	66.7	—
	2回目	103.1	99.0	77.7	58.7
Gefuroxime	1回目-①	109.2	88.6	80.5	—
	1回目-②	101.8	82.0	82.9	—
	2回目	77.9	83.1	66.1	65.4
Gephapirin	1回目-①	106.0	70.2	59.5	—
	1回目-②	91.8	61.4	60.1	—
	2回目	57.2	59.9	38.3	37.6
Gephazolin	1回目-①	76.4	37.4	24.8	—
	1回目-②	61.8	30.7	23.2	—
	2回目	47.0	39.5	20.0	15.1
Chlortetracycline	1回目-①	106.4	104.5	104.1	—
	1回目-②	98.2	102.2	98.1	—
	2回目	104.5	103.1	105.3	102.7
Dexamethasone	1回目-①	101.6	105.0	96.4	—
	1回目-②	96.8	97.1	98.3	—
	2回目	104.0	101.0	103.0	100.4
Flubendazole	1回目-①	97.4	104.7	96.2	—
	1回目-②	94.0	98.2	96.1	—
	2回目	97.3	95.4	104.1	97.2
Ivermectin B1a	1回目-①	102.6	106.9	99.9	—
	1回目-②	98.6	99.9	101.3	—
	2回目	104.2	102.7	103.1	102.2
Marbofloxacin	1回目-①	105.9	112.0	105.4	—
	1回目-②	98.4	100.5	102.3	—
	2回目	99.2	100.7	98.3	99.2
Metoclopramide	1回目-①	101.7	105.1	98.6	—
	1回目-②	101.3	102.1	104.0	—
	2回目	104.0	103.5	106.4	105.4
Oxytetracycline	1回目-①	105.8	97.5	99.4	—
	1回目-②	107.1	107.2	109.3	—
	2回目	106.5	101.5	104.0	101.1
Tetracycline	1回目-①	103.5	103.6	95.3	—
	1回目-②	98.4	102.3	97.5	—
	2回目	104.1	102.6	104.5	96.7
Thiamphenicol	1回目-①	101.4	102.4	97.2	—
	1回目-②	99.6	98.3	101.1	—
	2回目	105.9	102.6	102.3	104.4
Tylosine	1回目-①	102.0	107.5	87.2	—
	1回目-②	99.0	101.3	89.9	—
	2回目	102.3	101.3	103.7	90.1

※調製直後を100%とした割合