

### 測定条件

注入量：10  $\mu$ L、カラム：Acquity BEH C18 (100 mm $\times$ 2.1 mm、粒径 1.7  $\mu$ m、Waters 社製)、カラム温度：40 $^{\circ}$ C、移動相：A 0.1%ギ酸 B メタノール A : B (95 : 5) (1 min)  $\rightarrow$ 直線グラジエント (5 min)  $\rightarrow$ A : B (5 : 95) (10 min)、流速：0.25 mL/min、測定波長：210 nm

### ⑩検体 10、13 及び 16

アセトン 10 mL に検体 100  $\mu$ L を加えたのち GC-FID で測定した。別にシリコンオイル 10~100  $\mu$ g/mL の標準溶液を用いて検量線を作成し、絶対検量線法で検体中のシリコンオイルを定量した。

### 測定条件

カラム：DB-5MS (0.25 mm i.d.  $\times$  30 m、膜厚 0.25  $\mu$ m、Agilent Technologies 社製)、カラム温度：100 $^{\circ}$ C-20 $^{\circ}$ C/min-320 $^{\circ}$ C (10 min)、注入口温度：250 $^{\circ}$ C、キャリアーガス：He 1.4 mL/min (定流量)、注入モード：スプリットレス、ヒーター温度：280 $^{\circ}$ C、水素流量：30 mL/min、空気流量：400 mL/min、メイクアップガス流量：N<sub>2</sub> 25.6 mL/min

### ⑪検体 11、14 及び 17

ヘプタン 10 mL を 50 mL のねじロガラス遠沈管にとり、検体 100  $\mu$ L を加え、さらに、内標準としてトリヘプタデカノイン溶液 25  $\mu$ L 及び 7.6%ナトリウムメトキシドメタノール溶液 2.5 mL を加え、室温で 15 分間振とうした。水 5 mL 及び酢酸 0.5 mL を加え、室温で 5 分間振とうした。この上澄みを採取し、GC/MS でヘキサデカン酸メチルを測定した。別にエポキシ化大豆油 1~10 mg/mL を検体として同様の操作を行って得られた標準溶液を用いて検量線を作成し、内標準法で定量した。

### 測定条件

カラム：DB-WAX (0.25 mm i.d.  $\times$  30 m、膜厚 0.5  $\mu$ m、Agilent Technologies 社製)、カラム温度：100 $^{\circ}$ C (2 min)-20 $^{\circ}$ C/min-250 $^{\circ}$ C (5 min)、注入口温度：250 $^{\circ}$ C、トランスファーライン温度：280 $^{\circ}$ C、キャリアーガス：He 1.0 mL/min

(定流量)、注入量：1  $\mu$ L、注入モード：スプリット (20 : 1)、イオン化電圧：70 eV、測定モード：SIM、測定イオン： $m/z$  270 及び 284 (内標)

### ⑫検体 12、15 及び 18

アセトン 10 mL に検体 100  $\mu$ L を加え、さらに、内標準として ATEC 溶液 (10 mg/mL、アセトン溶液) を 50  $\mu$ L 加えたのち、GC/MS で ATBC を測定した。別に 10~100  $\mu$ g/mL の標準溶液を用いて検量線を作成し、内標準法で定量した。

### 測定条件

カラム：DB-5MS (0.25 mm i.d.  $\times$  30 m、膜厚 0.25  $\mu$ m、Agilent Technologies 社製)、カラム温度：100 $^{\circ}$ C-20 $^{\circ}$ C/min-320 $^{\circ}$ C (10 min)、注入口温度：280 $^{\circ}$ C、トランスファーライン温度：280 $^{\circ}$ C、キャリアーガス：He 1 mL/min (定流量)、注入量：1  $\mu$ L、注入モード：スプリットレス、イオン化電圧：70 eV、測定モード：SIM、測定イオン： $m/z$  259 及び 203 (内標)

## 4) 検体の均質性及び安定性の確認

国立医薬品食品衛生研究所において配付直後とその2ヶ月後に各10検体を2併行測定し、検体の成分または成分の一部を定量した。この定量値を使って検体の均質性及び安定性を確認した。

均質性については一元配置の分散分析によるF検定で判定し、安定性については定量値(総平均)の変化量が $\pm 5\%$ 以内であるか否かで判断した。

## 4. 各試験機関における重量測定の精度

各試験機関において蒸発残留物試験を行う際に用いる容器と同じものを用意し、105 $^{\circ}$ Cで2時間乾燥させ、デシケーター内で放冷した。これを重量測定精度確認用容器(空容器)として、その重量を5日間1日2回測定した。得られた結果を用い一元配置の分散分析により、各試験機関における重量測定の併行精度

( $RSD_f$  %) 及び室間再現精度 ( $RSD_R$  %) を求めた。

## 5. 試験

試験は(別添)「平成27年度 試験室間共同試験 計画書」に従って、各検体につき2回の試験を行い、蒸発残留物量を測定した。ただし、試験実施者が適切な状態で測定または定量が行われていないと判断でき、かつ、その原因が明らかな場合は再測定を認めた。

試薬、試液、装置及び試験操作は、各試験機関における通常の試験業務と同様とした。ただし、試験には蒸発残留物として10 µg/mL以上が定量可能な天秤を使用することとした。また、95%エタノール及びイソオクタン(検体13~18)はヘプタンと同様の操作で試験を行うこととした。

試験溶液は、各試験機関において、検体を指定の溶媒を用いて100倍希釈して調製した。この試験溶液について蒸発残留物試験を行った。食品衛生法に準じて試験を行った場合は「公定法」、食品衛生法で規定されている方法とは異なる方法を用いた場合は「公定法変法」とした。ただし、食品衛生法では蒸発皿を用いて蒸発乾固を行うこととされているが、ビーカーなどの他の容器を用いた場合も「公定法」として扱うこととした。

### 公定法変法

食品衛生法で規定されている方法とは異なる方法を用いた場合は「公定法変法」とした。公定法からの主な変更点は以下の2点であった。

①水浴上ではなくホットプレート上で蒸発乾固を行った。

②ヘプタン(95%エタノール及びイソオク

タン)の検体を試験する際に、減圧濃縮を行わず、試験溶液すべてを水浴上またはホットプレート上で蒸発乾固した。

## 6. 定量値の解析及び性能の検証

各試験機関から収集した定量値について、ISO 5725-2<sup>5)</sup>及びJIS Z 8402-2<sup>6)</sup>に基づいてCochran検定(併行)、Grubbs検定(試験室間)を行った。これらの検定の結果、外れ値とされたものを精度の外れ値とした。また、各試験機関の定量結果(同検体2測定の平均値)が試験溶液の濃度(試験濃度)の80~110%の範囲から外れたものを真度の外れ値とした。

真度、併行精度( $RSD_f$  %)及び室間再現精度( $RSD_R$  %)の性能パラメーターの値は、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<sup>7,8)</sup>に従って、一元配置の分散分析により求めた。各性能パラメーターの目標値はこのガイドラインを参考に、真度は80~110%、 $RSD_f$ は10%以下、 $RSD_R$ は25%以下とした。

ただし、試験溶液中の成分によっては蒸発残留物試験により得られる残留物量と試験濃度が一致しないことがある。そのため、予備試験の結果から、残留率(%)〔=蒸発残留物量/試験濃度×100〕を求め、この残留率が約100%(95~105%の範囲内)であった蒸発残留物量と試験濃度がほぼ一致した検体をAグループ、それ以外の蒸発残留物量と試験濃度が一致しなかった検体及び正確な試験濃度が不明であった検体をBグループに分類した(表1)。Bグループの検体については真度の算出及び真度の外れ値の検定を行わなかった。

## C. 研究結果及び考察

### 1. 均質性及び安定性確認

各検体の均質性及び安定性を確認するため、検体の配付直後及びその2ヶ月後（測定期限後）にそれぞれの検体に添加した物質の濃度を、各10検体2併行で測定し、各物質の定量値（総平均）、分散比（F値、検体間分散／併行分散）、濃度比を求めた。ただし、検体1、4、5及び6はNa、ZnまたはCaの濃度を測定した。CMC-Na（検体2）、ナイロン抽出液（検体9）、シリコンオイル（検体10、13及び16）、エポキシ化大豆油（検体12、14及び17）及びラップフィルム抽出液（検体12、15及び18）は複数の化合物の混合体である。そのため、CMC-Naについてはフェノール硫酸法により全糖量を、モノマー及びオリ

ゴマーが主成分のナイロン抽出液については主なピークをカプロラクタムとして定量しこれらの合計量を、ラップフィルム抽出液については主な成分であるATBCを測定した。一方、シリコンオイル及びエポキシ化大豆油については、検体と同じ試薬を用いて検量線を作成し、検出された最大ピークを用いて定量した。

その結果を表2に示した。検体の均質性については、受領直後と測定期限後の測定結果から、すべての検体で濃度差がないと判定された。検体の安定性については、いずれの検体も測定期限後の定量値は受領直後の定量値の95.2～103.7%であった。以上から、検体の均質性及び安定性に問題がないことが確認された。

表2 検体受領直後及び測定期限後の濃度、分散比及び濃度比

検体	測定法	検体濃度 (mg/mL)	配付直後			測定期限後			濃度比 ②／①
			総平均 (mg/mL) ①	RSD (%)	分散比 (F値)	総平均 (mg/mL) ②	RSD (%)	分散比 (F値)	
検体1*	ICP-OES	2.5	0.954	1.2	1.53	0.938	1.4	0.46	98.4
検体2	吸光	1.5	1.45	9.4	0.93	1.51	8.9	1.42	103.5
検体3	LC/MS	3.3	3.48	6.0	1.08	3.31	6.3	1.49	95.2
検体4*	ICP-OES	1.2	0.978	1.3	1.10	0.964	1.1	0.67	98.5
検体5*	ICP-OES	3.5	1.38	1.0	0.42	1.40	1.6	0.82	101.2
検体6*	ICP-OES	3.0	0.31	1.5	0.81	0.315	2.0	0.89	101.2
検体7	LC-UV	2.2	2.23	1.2	2.44	2.19	0.8	0.66	98.2
検体8	LC/MS	6.8	7.14	6.9	0.51	6.79	8.5	0.77	95.1
検体9	LC-UV	約8	8.30	0.6	0.72	8.36	0.4	1.01	100.8
検体10	GC-FID	6.2	6.27	2.7	0.45	6.50	4.6	0.18	103.7
検体11	GC/MS	5.5	5.50	3.8	2.27	5.45	4.7	1.55	99.1
検体12*	GC/MS	6.4	5.20	3.8	0.26	5.17	2.4	1.12	99.4
検体13	GC-FID	6.2	6.37	2.9	1.25	6.19	1.9	1.18	97.2
検体14	GC/MS	5.5	5.30	4.2	0.73	5.22	3.9	0.64	98.6
検体15*	GC/MS	6.4	4.93	3.4	0.18	4.93	2.5	1.20	100.1
検体16	GC-FID	6.2	6.22	2.5	1.91	6.30	2.4	1.19	101.4
検体17	GC/MS	5.5	5.16	5.0	2.25	5.32	4.8	0.29	103.0
検体18*	GC/MS	6.4	5.09	2.2	0.92	4.98	4.3	1.16	98.0

\*: 検体に含まれる一部の成分のみ（検体1はNa、検体4及び6はZn、検体5はCa、検体12、15及び18はATBC）を定量したため、検体濃度と総平均の値が異なる。

## 2. 各試験機関における試験条件

### 1) 各試験機関の試験法

各試験機関の試験法一覧を表3に示した。

公定法では、試験溶液量は200~300 mLと規定されている。各試験機関の試験用液量はいずれも200 mLであり、公定法に準拠していた。

蒸発乾固については、公定法では水浴上で行うことが規定されている。公定法に従い水浴上で蒸発乾固を行っていたのは、検体1~9では試験機関A、I、L、O、T及びXの6機関、検体10~18では試験機関A、F、I、L、O、R、S、T及びXの9機関であった。その他の試験機関は大部分がホットプレートを使用していた。ホットプレート以外では、試験

機関Hが検体1~6で乾燥機を用い、試験機関U及びVは検体10~18で加熱装置を用いず風乾により蒸発乾固を行っていた。また、試験機関Wも検体16~18で風乾により蒸発乾固を行っていた。以上のように水浴以外で蒸発乾固を行った場合は公定法変法に分類した。

公定法では、ヘプタンを浸出用液とした場合、浸出用液を減圧濃縮して液量を数 mLにしたのちに水浴上で蒸発乾固することが規定されている。検体10~18で減圧濃縮を行わなかったのは試験機関C、J、T、U及びVの5機関であった。これらは浸出用液を減圧濃縮せず、そのまま蒸発乾固していたため公定法変法に分類した。

表3 各試験機関(23機関)の試験法一覧

試験機関	検体1~9				検体10~18				
	試験法	試験用液量 (mL)	加熱装置 (蒸発)	LOQ (µg/mL)	試験法	試験用液量 (mL)	減圧濃縮	加熱装置 (蒸発)	LOQ (µg/mL)
A	公定法	200	水浴	5	公定法	200	○	水浴	5
B	公定法変法	200	HP	5	公定法変法	200	○	HP	5
C	公定法変法	200	HP	5	公定法変法	200	×	HP	5
D	公定法変法	200	HP	10	公定法変法	200	○	HP	10
E	公定法変法	200	HP	5	公定法変法	200	○	HP	5
F	公定法変法	200	HP	5	公定法	200	○	水浴	5
G	公定法変法	200	HP	5	公定法変法	200	○	HP	5
H	公定法変法	200	乾燥機/HP <sup>*1</sup>	5	公定法変法	200	○	HP	5
I	公定法	200	水浴	10	公定法	200	○	水浴	10
J	公定法変法	200	HP	5	公定法変法	200	×	HP	5
K	公定法変法	200	HP	5	公定法変法	200	○	HP	5
L	公定法	200	水浴	5	公定法	200	○	水浴	5
M	公定法変法	200	HP	5	公定法変法	200	○	HP	5
O	公定法	200	水浴	5	公定法	200	○	水浴	5
P	公定法変法	200	HP	5	公定法変法	200	○	HP	5
R	公定法変法	200	HP	5	公定法	200	○	水浴	5
S	公定法変法	200	HP	5	公定法	200	○	水浴	5
T	公定法	200	水浴	5	公定法変法	200	×	水浴	5
U	公定法変法	200	HP	1	公定法変法	200	×	風乾	1
V	公定法変法	200	HP	1.0	公定法変法	200	×	風乾	1.0
W	公定法変法	200	HP	5	公定法変法	200	○	HP/風乾 <sup>*2</sup>	5
X	公定法	200	水浴	1	公定法	200	○	水浴	1
Y	公定法変法	200	HP	5	公定法変法	200	○	HP	5

HP:ホットプレート LOQ:定量下限値 ○:有 ×:無

\*1:検体1~6は乾燥機、検体7~9はHP

\*2:検体10~15はHP、検体16~18は風乾

各試験機関の使用容器に関する情報を表4に示した。23 機関中 18 機関はすべての検体に同じ種類の容器を使用していたが、試験機関 F、R、W 及び Y は検体 1～9 と検体 10～18 で、試験機関 B は検体 1～6 と検体 7～18 で異なる種類の容器を使用していた。蒸発乾固に用いる容器については、公定法では白金製、石英製または耐熱ガラス製の蒸発皿が規定されているが、使用容器による試験結果への影響は小さいと考えられたことから、今回の試験では容器の材質や種類は限定せず、規定以外の容器を用いた場合も公定法変法には分類しなかった。

以上をまとめると、検体 1～9 では、試験機関 A、I、L、O、T 及び X の 6 機関を公定法、

その他の 17 機関を公定法変法に分類した。また、検体 10～18 では、試験機関 A、F、I、L、O、R、S 及び X の 8 機関を公定法、その他の 15 機関を公定法変法に分類した。すべての検体で公定法を実施したのは試験機関 A、I、L、O 及び X の 5 機関であった。

## 2) 定量下限値

各試験機関の定量下限値は 1～10 µg/mL の範囲であり (表 3)、23 機関中 18 機関は 5 µg/mL であった。定量下限値 5 µg/mL は、試験溶液量を 200 mL とした場合、蒸発乾固操作前後の重量差の定量下限値を 1 mg に設定して試験を実施することを意味する。

表4 各試験機関(23機関)の使用容器一覧

試験機関	検体1～9			検体10～18		
	種類	材質	容量(mL)	種類	材質	容量(mL)
A	結晶皿	耐熱ガラス	100	結晶皿	耐熱ガラス	100
B	白金皿 <sup>*1</sup>	白金	100	秤量瓶	アルミ	50
C	秤量瓶 <sup>*2</sup>	耐熱ガラス	20	秤量瓶 <sup>*2</sup>	耐熱ガラス	20
D	ビーカー	耐熱ガラス	200	ビーカー	耐熱ガラス	100
E	蒸発皿	石英	60	蒸発皿	石英	60
F	ビーカー	ガラス	50	蒸発皿	ガラス	70
G	結晶皿	耐熱ガラス	100	結晶皿	耐熱ガラス	100
H	ビーカー	耐熱ガラス	200	ビーカー	耐熱ガラス	200
I	蒸発皿	ジルコニウム	200	蒸発皿	ジルコニウム	200
J	蒸発用ビーカー	耐熱ガラス	100	蒸発用ビーカー	耐熱ガラス	100
K	ビーカー	ガラス	300	ビーカー	ガラス	300
L	蒸発皿	耐熱ガラス	200	蒸発皿	耐熱ガラス	200
M	蒸発皿	磁製 (SiO <sub>2</sub> , Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	260	蒸発皿	磁製 (SiO <sub>2</sub> , Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	50または20
O	るつぼ	白金	100	るつぼ	白金	100
P	カップ <sup>*3</sup>	ガラス	6	カップ <sup>*3</sup>	ガラス	6
R	ビーカー	ガラス	50	蒸発皿	ガラス	50
S	蒸発皿	ガラス	100	蒸発皿	ガラス	100
T	蒸発皿	ガラス	50	蒸発皿	ガラス	50
U	蒸発皿	耐熱ガラス	300	蒸発皿	耐熱ガラス	300
V	蒸発皿	耐熱ガラス	300	蒸発皿	耐熱ガラス	300
W	結晶皿	耐熱ガラス	180	ビーカー	耐熱ガラス	100
X	蒸発皿	耐熱ガラス	35	蒸発皿	耐熱ガラス	35
Y	結晶皿	耐熱ガラス	200	ビーカー	耐熱ガラス	100

\*1: 検体7～9はアルミ製秤量瓶、200mL耐熱ガラス製ビーカーで濃縮後、白金皿や秤量瓶に移して乾固

\*2: 300mL耐熱ガラス製ビーカーで濃縮後、秤量瓶に移して乾固

\*3: 300mLガラス製ビーカーで濃縮後、カップに移して乾固

### 3) 蒸発乾固の方法と時間、放冷時間

#### ①公定法

公定法における各試験機関の試験条件を表5及び表6に示した。

##### i) 検体 1~9

「蒸発乾固の加熱中止のタイミング」は、試験機関 T のみが蒸発乾固するまで水浴上で加熱させたが、その他はいずれも乾固直前または液量が少量となった状態で水浴上から容器を下ろし、余熱と自然乾燥により乾固させていた。

蒸発乾固時間は、177~450 分で、300 分前後が多かった。

放冷時間は、試験機関 O 及び X が 0.5 または 1 時間だったのに対し、試験機関 A、I 及び L は一晩以上であった。また、試験機関 T は検体によって 2 時間と一晩放置を併用していた。

##### ii) 検体 10~18

「蒸発乾固の加熱中止のタイミング」は、いずれの試験機関とも乾固直前または液量が少量となった状態で水浴上から容器を下ろし、余熱と自然乾燥により乾固させていた。

蒸発乾固時間は、10 分未満~65 分であった。検体 10~18 は浸出用液が乾固させやすいヘプタン、95%エタノール及びイソオクタンであるうえ、事前に減圧濃縮して液量を減らしているため、検体 1~9 に比べて短時間であった。

放冷時間は、試験機関 F、O、R、S 及び X の 5 機関が 0.5~2 時間だったのに対し、試験機関 A、I 及び L の 3 機関は一晩以上であった。

#### ②公定法変法

公定法変法における各試験機関の試験条件を表7及び表8に示した。

##### i) 検体 1~9

ホットプレートの設定温度は 100~250℃であり、試験機関によって異なっていた。試験機関 B、C、D 及び J は設定温度を一定とせず液の残量に応じて設定温度を変えながら蒸

発させていた。また、試験機関 H の検体 1~6 では 105℃に設定した乾燥機を使用していた。

「蒸発乾固の加熱中止のタイミング」は、試験機関 B、J 及び Y の 3 機関は蒸発乾固するまでホットプレート上で加熱させていた。試験機関 H は検体 1~6 では乾燥機を用いて乾固まで加熱していたのに対し、検体 7~9 ではホットプレート上で加熱し、液量が少量となった状態でホットプレート上から容器を下ろし、余熱と自然乾燥により乾固させていた。また、試験機関 K は、濃縮当日の帰りにホットプレートの電源を入れ、翌日の出勤時に乾固を確認して電源を止めていた。これら以外の試験機関は乾固直前または液量が少量となった状態で容器をホットプレート上から下ろし、余熱と自然乾燥により乾固させていた。

蒸発乾固時間も試験機関によって異なり 120~1440 分であった。このうち、ホットプレートによる乾固時間は 120~920 分で、300~500 分の試験機関が多かった。この差は、前述の加熱装置の設定温度の違いによるものと考えられ、公定法の水浴による乾固時間と比べると同等かあるいは若干長かった。ただし、試験機関 H の検体 7~9 と、濃縮当日の帰日から翌日出勤時まで加熱していた試験機関 K では 900 分以上と長時間であった。また、乾燥機を用いた試験機関 H の検体 1~6 では、乾固までに約 1 日を要した。

放冷時間は、試験機関 B、C、E、F、H、J、K、P、R、S、U、V 及び Y の 13 機関が 0.5~2 時間だったのに対し、試験機関 D、G 及び W の 3 機関は一晩以上であった。また、試験機関 M は 4~15 時間を使い分けていた。

##### ii) 検体 10~18

試験機関 C、J、T、U 及び V の 5 機関では前述のように減圧濃縮を行わず、それ以外の 10 機関では行っていた。

ホットプレートの設定温度は試験機関によって異なり 40~200℃であった。試験機関 C、

表5 公定法(検体1～9)における各試験機関(6機関)の試験条件

試験機関	水浴の設定温度 (°C)	蒸発乾固の加熱中止のタイミング	蒸発乾固時間 (分)	放冷時間 (時間)
A	100	液量が約1 mLとなったら水浴上から下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	330～360	15～35
I	100	液量が約1 mLとなったら水浴上から下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	300	18
L	100	液量がごく少量となったら水浴上からおろし、余熱と自然乾燥により乾固	177～240	15.4～16.4
O	100	液量が約1 mLとなったら水浴上から下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	240	0.5
T	100	水浴上で蒸発乾固	240～420	2または16
X	100	溶媒が無くなる直前で水浴上から下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	330～450	1

表6 公定法(検体10～18)における各試験機関(8機関)の試験条件

試験機関	水浴の設定温度 (°C)	蒸発乾固の加熱中止のタイミング	蒸発乾固時間 (分)	放冷時間 (時間)
A	100	液量が約1 mLとなったら水浴上から下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	10未満	15～120.5
F	100	液量が約1 mLとなったら水浴上から下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	40	1
I	100	液量が約1 mLとなったら水浴上から下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	10～20	18
L	100	液量がごく少量となったら水浴上からおろし、余熱と自然乾燥により乾固	19～43	15.5～16.3
O	100	液量が約1 mLとなったら水浴上から下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	30	0.5
R	100	液量が約0.5 mLとなったら水浴上から下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	45～65	1
S	100	乾固直前に水浴上から下ろし <sup>*1</sup> 、余熱と自然乾燥により乾固	40または60	2
X	100	溶媒が無くなる直前で水浴上から下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	10～20	1

\*<sup>1</sup>: 検体13～18では約1 mLとなったら水浴上から下ろした

表7 公定法変法(検体1~9)における各試験機関(17機関)の試験条件

試験機関	加熱装置 (蒸発)	設定温度 (°C)	蒸発乾固の加熱中止のタイミング	蒸発乾固時間 (分)	放冷時間 (時間)
B	HP	150→125→100	150°Cで約25 mL、125°Cで数mLまで濃縮し、100°Cで乾固確認後HPから下ろした <sup>*4</sup>	420または540	0.7
C	HP	350→200	350°Cで約10 mLとしたのち秤量瓶に洗いこみ、200°Cで約0.5 mLとなったらHPから下ろし、余熱濃縮(乾固させず0.1~0.2 mL残した)	270または300	0.5
D	HP	200→100 <sup>*1</sup>	200°Cで約3 mL、100°Cで乾固直前まで濃縮後、HPから下ろして自然乾固	420	22
		170→200→100 <sup>*2</sup>	170°Cで約150 mL、200°Cで約3 mL、100°Cで約1 mLまで濃縮後、HPから下ろして自然乾固	420	46
E	HP	200	液量が1~2 mLとなったらHPから下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	300または360	0.5
F	HP	100	液量が約1 mLとなったらHPから下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	360	1
G	HP	140 <sup>*1</sup>	液量が約1 mLとなったらHPから下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	300	15または16
		120 <sup>*2</sup>		330	19
H	乾燥機 <sup>*1</sup>	105	乾固後乾燥機から取り出した	1230または1440	1.5
	HP <sup>*2</sup>	105	液量が約1 mLとなったらHPから下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	920	1.5
J	HP	175 <sup>*1</sup> 130→135→140 <sup>*3</sup>	乾固後直ちにHPから下ろした	290~400 435~525	2 2
K	HP	105	濃縮当日の帰りにHPの電源を入れ、翌日出勤時に止めた(乾固確認) <sup>*5</sup>	900	1
M	HP	180	液量が約1 mLとなったらHPから下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	240~420	4~15
P	HP	160	液量が約0.5 mLとなったらHPから下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	300または360	2
R	HP	100	液量が約0.5 mLとなったらHPから下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	420~480	1
S	HP	100	乾固直前にHPから下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	490~730	2
U	HP	120	液量が約20 mLとなったらHPから下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	480	2
V	HP	120	液量が30~50 mLとなったらHPから下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	480	2
W	HP	160	液量が約1 mLとなったらHPから下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	270または280	15~17
Y	HP	250	液量が約10 mLとなったら温度設定を保温にしたHPに移し、乾固後HPから下した	120または150	1.5

HP:ホットプレート

<sup>\*1</sup>:検体1~6    <sup>\*2</sup>:検体7~9    <sup>\*3</sup>:検体7~9(130°C(345分)→135°C(80分)→140°C(100分)で昇温)    <sup>\*4</sup>:乾固後数分間放置の可能性有り

<sup>\*5</sup>:乾固後1時間程度加熱した可能性有り



表8 公定法変法(検体10~18)における各試験機関(15機関)の試験条件

試験機関	減圧濃縮	加熱装置 (蒸発)	設定温度 (°C)	蒸発乾固の加熱中止のタイミング	蒸発乾固時間 (分)	放冷時間 (時間)
B	○	HP	100	乾固確認後HPから下ろした。乾固後数分間放置の可能性有り	20	0.7
C	×	HP	250→200	250°Cで約10 mLとしたのち秤量瓶に洗いこみ、200°Cで約0.5 mLとなったらHPから下ろし、余熱濃縮(乾固させず0.1~0.2 mL残した)	120~210	0.5
D	○	HP	40→60 <sup>*3</sup>	液量が約2 mLとなったらHPから下ろし、自然乾燥により乾固	60または90	22
E	○	HP	100	液量が1~2 mLとなったらHPから下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	40または50	0.5
G	○	HP	100 <sup>*4</sup>	液量が約1 mLとなったらHPから下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	10または15	16
H	○	HP	105	液量が約1 mLとなったらHPから下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	50または60	1.5
J	×	HP	125 <sup>*5</sup> 110 <sup>*6</sup>	乾固後直ちにHPから下した	280~350 325~405	2 2
K	○	HP	105	液量が約2 mLとなったらHPから下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	120	1
M	○	HP	180	液量が約1 mLとなったらHPから下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	10または20	2または15
P	○	HP	保温(<120)	液量が約1 mLとなったらHPから下ろし、余熱と自然乾燥により乾固	30または50	2
T	×	水浴	100	水浴上で蒸発乾固	80~95	2または16
U	×	風乾	室温	室温で16時間風乾させ乾固したことを確認	960	2
V	×	風乾	室温	室温で風乾させ乾固	480	2
W	○	HP <sup>*1</sup> 風乾 <sup>*2</sup>	100 室温	液量が約1 mLとなったらHPから下ろし、余熱と自然乾燥により乾固 局所排気前に放置して乾固	10 70	17または18 19
Y	○	HP	保温	乾固確認後HPから下ろした	15または20	1.5

HP:ホットプレート

<sup>\*1</sup>:検体10~15    <sup>\*2</sup>:検体16~18    <sup>\*3</sup>:検体13~15は40→70°C、検体16~18は60→70°C    <sup>\*4</sup>:検体13~15は120°C

<sup>\*5</sup>:検体10~12(ただし、検体10と11は最初の40分は135°Cに設定し、以降125°Cに下げた)    <sup>\*6</sup>:検体13~18

D及びJは検体によって設定温度を一定とせず、液の残量に応じて設定温度を変えながら蒸発させていた。また、試験機関PとYは「保温」を設定していた。一方、試験機関Tは水浴を用い、試験機関UとVは加熱装置を用いず室温で風乾により蒸発乾固を行った。また、試験機関Wは、検体10～15では100℃で設定したホットプレートを用い、検体16～18では室温で風乾により蒸発乾固を行った。

「蒸発乾固の加熱中止のタイミング」は、試験機関B、J、T及びYの4機関は蒸発乾固するまでホットプレートまたは水浴上で加熱させたが、試験機関D、E、G、H、K、M及びPの7機関は乾固前に液量が少量となった状態でホットプレート上から容器を下ろし、余熱と自然乾燥により乾固させ、試験機関Cは自然乾固せず0.1～0.2 mL残していた。また、試験機関UとVは浸出用液を室温で風乾させて乾固させていた。さらに、試験機関Wは、検体10～15では乾固前に液量が少量となった状態でホットプレート上から容器を下ろし、余熱と自然乾燥により乾固させていたのに対し、検体16～18では局所排気前に容器を放置して風乾により乾固させた。

蒸発乾固時間は、浸出用液を減圧濃縮した試験機関では10～120分であった。この差は主にホットプレートの設定温度の差によるものと考えられた。また、試験機関Wの検体16～18では減圧濃縮後70分で風乾させていた。一方、減圧濃縮を行わなかった場合は、ホットプレートで乾固させた試験機関C及びJは120～405分、水浴上で乾固させた試験機関Tは80～95分であった。また、風乾により乾固させた試験機関U及びVは480または960分と長時間を要した。

放冷時間は、試験機関B、C、E、H、J、K、P、U、V及びYの10機関が0.5～2時間だったのに対し、試験機関D、G及びWの3機関は一晩以上であった。また、試験機関M及びTは検体によって2時間と一晩放置を併用し

ていた。

### 3. 各試験機関における重量測定の精度

空容器を用いた各試験機関における重量測定精度を表9に示した。

各試験機関が使用した空容器は、結晶皿、蒸発皿、ビーカー、るつぼなどで、材質は耐熱ガラス製が多く、その他白金製、ジルコニウム製、磁製など様々であった。空容器の重量は試験機関ごとに大きく異なっていたが、併行精度及び室内再現精度は極めて小さく、重量測定精度は試験結果の精度にほとんど影響しないと予想された。

### 4. 試験室間共同試験の結果

試験室間共同試験により得られた各検体の定量値を表10に示した。また、蒸発残留物量と試験濃度がほぼ一致した検体1、2、3、10、11、13、14、16及び17については真度の外れ値検定の結果も合わせて記した。これらの定量値について、試験法ごとに定量値及びその解析結果の考察を行った。

#### 1) 検体1～3の試験結果

公定法による6機関の定量値とその解析結果を表11、公定法変法による17機関の定量値とその解析結果を表12に示した。

##### ① 公定法

真度の外れ値は検体1で2つ、検体2で4つ存在した。そのうち、試験機関A及びIは検体1と2の両者が外れ値に該当し、いずれも定量値が試験濃度よりも高かった。また、試験機関Xにおける検体2の結果は、併行精度は悪くなかったが、定量値が他機関と比べて明らかに低かった。一方、精度の外れ値は存在しなかった。

真度は98.4～102.5%、 $RSD_r$ は1.7～2.1%、 $RSD_R$ は8.4～22.0%であり、検体2の $RSD_R$ が大きかったが、いずれの性能パラメーターの値も目標値を満たした。

表9 空容器を用いた各試験機関における重量測定精度

試験機関	容器	回数	空容器の重量(g)					併行精度 (%)	室内再現精度 (%)	
			1日目	2日目	3日目	4日目	5日目			平均値
A	耐熱ガラス製結晶皿	1回目	46.30133	46.30144	46.30202	46.30183	46.30171	46.301689	0.0004	0.0005
		2回目	46.30184	46.30151	46.30192	46.30168	46.30161			
B	アルミ製秤量瓶	1回目	6.4323	6.4321	6.4321	6.4320	6.4322	6.43214	0.0010	0.0017
		2回目	6.4322	6.4320	6.4321	6.4321	6.4323			
C	耐熱ガラス製秤量瓶	1回目	19.4949	19.4948	19.4949	19.4949	19.4949	19.49489	0.0003	0.0003
		2回目	19.4949	19.4949	19.4948	19.495	19.4949			
D	ガラス製ビーカー	1回目	106.3992	106.3988	106.3989	106.3993	106.3993	106.39914	0.0001	0.0002
		2回目	106.3993	106.3991	106.3992	106.3992	106.3991			
E	耐熱ガラス製ビーカー	1回目	29.4440	29.4441	29.4444	29.4442	29.4443	29.4442	0.0002	0.0004
		2回目	29.4441	29.4441	29.4443	29.4442	29.4443			
F	ガラス製ビーカー	1回目	37.2404	37.2403	37.2406	37.2400	37.2405	37.24032	0.0004	0.0006
		2回目	37.2400	37.2402	37.2406	37.2402	37.2404			
G	耐熱ガラス製結晶皿	1回目	37.44182	37.44190	37.44183	37.44182	37.44180	37.44183	< 0.0001	0.0001
		2回目	37.44178	37.44187	37.44184	37.44180	37.44179			
H	耐熱ガラス製ビーカー	1回目	108.0137	108.0142	108.0157	108.0154	108.0161	108.01505	< 0.0001	0.0009
		2回目	108.0138	108.0144	108.0157	108.0154	108.0161			
I	ジルコニウム製蒸発皿	1回目	104.6065	104.6063	104.6061	104.6061	104.6061	104.60621	< 0.0001	0.0002
		2回目	104.6065	104.6062	104.6061	104.6061	104.6061			
J	耐熱ガラス製ビーカー	1回目	57.48442	57.48332	57.48372	57.48471	57.48473	57.484231	0.0003	0.0010
		2回目	57.48440	57.48363	57.48405	57.48461	57.48472			
K	ガラス製ビーカー	1回目	141.3807	141.3810	141.3810	141.3807	141.3803	141.38058	0.0002	0.0002
		2回目	141.3803	141.3807	141.3805	141.3803	141.3803			
L	耐熱ガラス製蒸発皿	1回目	56.4151	56.4152	56.4151	56.4151	56.4151	56.41514	< 0.0001	< 0.0001
		2回目	56.4151	56.4152	56.4152	56.4151	56.4152			
M	磁製蒸発皿	1回目	34.89960	34.89840	34.89861	34.89855	34.89821	34.898692	0.0012	0.0015
		2回目	34.89889	34.89951	34.89864	34.89835	34.89816			
O	白金ろつぼ	1回目	40.0218	40.0219	40.0222	40.0220	40.0220	40.02198	< 0.0001	0.0004
		2回目	40.0218	40.0219	40.0222	40.0220	40.0220			
P	ガラス製カップ	1回目	5.84169	5.84172	5.84165	5.84170	5.84172	5.841684	0.0004	0.0005
		2回目	5.84168	5.84167	5.84164	5.84170	5.84167			
R	ガラス製ビーカー	1回目	36.4652	36.4653	36.4653	36.4653	36.4653	36.46523	0.0003	0.0003
		2回目	36.4652	36.4653	36.4652	36.4651	36.4651			
S	ガラス製蒸発皿	1回目	56.2042	56.2045	56.2043	56.2044	56.2044	56.20438	0.0001	0.0002
		2回目	56.2044	56.2044	56.2043	56.2045	56.2044			
T	ガラス製蒸発皿	1回目	27.60382	27.60403	27.60372	27.60372	27.60374	27.603806	< 0.0001	0.0005
		2回目	27.60383	27.60402	27.60373	27.60371	27.60374			
U	耐熱ガラス製蒸発皿	1回目	94.0671	94.0670	94.0673	94.0672	94.0673	94.06721	0.0001	0.0001
		2回目	94.0673	94.0671	94.0674	94.0673	94.0671			
V	耐熱ガラス製蒸発皿	1回目	85.4478	85.4477	85.4477	85.4476	85.4477	85.44767	0.0001	0.0001
		2回目	85.4477	85.4478	85.4476	85.4475	85.4476			
W	耐熱ガラス製結晶皿	1回目	64.37325	64.37319	64.37322	64.37323	64.37289	64.373168	< 0.0001	0.0002
		2回目	64.37326	64.37317	64.37319	64.37325	64.37303			
X	耐熱ガラス製蒸発皿	1回目	20.88108	20.88076	20.88075	20.88071	20.88054	20.880777	0.0002	0.0010
		2回目	20.88107	20.88081	20.88086	20.88070	20.88049			
Y	耐熱ガラス製ビーカー	1回目	62.2296	62.2295	62.2297	62.2293	62.2294	62.22947	0.0002	0.0002
		2回目	62.2295	62.2293	62.2295	62.2294	62.2295			

表10 試験室間共同試験における各検体の定量値一覧

試験機関	試験法	蒸発残留物量 (µg/mL)																	
		検体1	検体2	検体3	検体4	検体5	検体6	検体7	検体8	検体9	検体10	検体11	検体12	検体13	検体14	検体15	検体16	検体17	検体18
A	公定法	28.3, 27.7 <sup>†1</sup>	18.7, 18.2 <sup>†1</sup>	35.5, 35.7	24.1, 25.4	64.4, 64.8	37.2, 40.4	19.1, 19.8	28.3, 37.9	49.0, 50.1	63.5, 64.0	61.8, 63.9 <sup>†1</sup>	20.2, 33.4	59.9, 62.6	60.6, 58.8	24.5, 20.8	61.6, 62.8	58.6, 60.4	27.8, 27.9
B	公定法変法	24.0, 23.0	13.0, 11.5	30.5, 32.0	20.0, 18.5	57.5, 59.0	31.0, 29.5	18.0, 18.5	11.5, 12.0	47.5, 48.0	59.0, 60.0	54.0, 54.0	31.0, 30.0	53.0, 54.0	51.0, 54.0	29.0, 25.5	60.0, 58.0	56.0, 53.5	28.0, 30.5
C	公定法変法	24.8, 26.3	14.8, 15.7	33.3, 34.8	26.8, 26.3	59.3, 60.8	31.2, 31.2	21.5, 19.0	20.0, 21.0	47.0, 46.5	62.0, 66.0	55.0, 55.0	45.5, 49.5	61.7, 62.2	55.7, 54.8	30.7, 32.7	62.3, 62.8	55.7, 57.8	35.8, 38.2
D	公定法変法	25.0, 24.5	14.5, 14.5	32.0, 33.0	24.3, 23.3	59.3, 61.8	32.3, 29.8	21.5, 23.0	44.0, 45.0	47.5, 47.5	63.3, 64.3	54.3, 54.2	54.2, 53.8	58.3, 60.8	56.2, 56.3	54.2, 55.3	63.0, 63.0	53.5, 54.5	57.0, 56.0
E	公定法変法	25.0, 25.5	14.5, 14.5	33.5, 32.0	13.0, 12.5	59.0, 57.5	27.5, 28.5	22.5, 21.5	18.0, 18.5	50.5, 52.0	64.0, 64.5	62.5, 61.5 <sup>†1</sup>	30.5, 29.5	59.0, 58.0	55.0, 55.0	42.0, 41.0	62.5, 62.0	57.0, 58.0	43.0, 43.0
F	公定法	—	—	—	—	—	—	—	—	—	59.5, 60.5	55.5, 57.0	26.0, 29.5	58.5, 60.5	54.5, 53.5	35.0, 41.0	60.0, 59.5	61.0, 56.5	30.5, 29.5
	公定法変法	27.0, 27.0	16.0, 15.5	33.0, 33.0	22.0, 22.5	59.5, 59.0	28.5, 29.0	19.5, 20.5	32.0, 37.5	43.5, 45.5	—	—	—	—	—	—	—	—	—
G	公定法変法	26.2, 25.7	17.1, 16.5 <sup>†1</sup>	31.4, 31.5	22.2, 22.6	59.3, 59.6	33.7, 34.7	25.1, 23.3	44.6, 45.9	53.8, 52.6	61.6, 63.0	57.1, 56.7	42.0, 42.8	54.2, 53.2	51.8, 51.7	44.9, 42.6	58.6, 57.0	52.2, 53.3	40.4, 38.0
H	公定法変法	26.5, 24.5	18.5, 17.0 <sup>†1</sup>	27.5, 29.5	13.5, 10.5	57.5, 56.5	29.0, 29.0	19.0, 17.5	29.0, 30.0	42.5, 44.0	59.0, 59.5	52.5, 52.5	6.5, 7.0	55.5, 59.5	56.5, 57.0	33.5, 31.5	63.0, 61.5	56.0, 58.0	14.0, 12.5
I	公定法	27.5, 28.5 <sup>†1</sup>	18.0, 18.5 <sup>†1</sup>	35.0, 36.0	29.0, 29.5	68.5, 69.0	32.0, 32.0	21.0, 20.0	28.5, 32.0	50.0, 50.0	59.5, 58.5	54.0, 54.5	52.0, 51.5	60.5, 57.0	50.5, 52.5	20.5, 15.5	61.5, 60.0	55.0, 55.5	45.0, 46.5
J	公定法変法	24.6, 27.5	16.6, 16.6 <sup>†1</sup>	33.8, 33.7	17.2, 17.8	60.3, 62.1	30.6, 32.0	21.7, 19.2	40.4, 46.1	47.3, 47.6	61.9, 62.2	56.6, 55.7	20.3, 9.9	60.3, 60.5	54.2, 54.4	11.1, 17.4	63.6, 64.0	56.7, 56.3	22.7, 26.6
K	公定法変法	29.5, 26.0 <sup>†1</sup>	17.0, 20.0 <sup>†1</sup>	47.0, 46.0 <sup>†1</sup>	18.0, 24.5	74.0, 71.5	39.5, 40.0	17.5, 18.5	41.0, 38.5	56.0, 60.0	69.0, 73.0 <sup>†1</sup>	49.0, 48.5	50.0, 50.5	52.5, 53.5	50.0, 51.0	27.5, 29.5	52.0, 52.0	47.0, 48.0	52.5, 50.0
L	公定法	25.0, 24.5	14.5, 14.0	30.5, 30.5	13.5, 21.5	60.5, 58.0	28.5, 27.0	21.5, 21.0	23.5, 8.0	51.5, 49.5	67.0, 65.0	56.5, 58.0	52.0, 51.5	55.5, 58.0	55.0, 54.5	29.0, 31.0	60.0, 61.0	55.0, 56.0	14.0, 23.0
M	公定法変法	29.0, 29.0 <sup>†1</sup>	18.4, 19.0 <sup>†1</sup>	23.5, 25.0 <sup>†1</sup>	16.5, 17.0	62.0, 63.0	29.5, 28.5	21.0, 18.0	55.0, 59.5	50.0, 50.5	70.5, 72.3 <sup>†1</sup>	61.0, 59.6	50.5, 54.9	59.3, 58.7	53.6, 53.8	45.8, 47.6	65.8, 65.7	53.5, 53.6	42.9, 43.9
O	公定法	25.5, 25.5	17.0, 17.0 <sup>†1</sup>	30.5, 29.5	18.5, 17.5	57.5, 59.0	32.0, 32.5	18.5, 17.0	22.5, 26.0	47.5, 48.0	62.0, 62.0	56.0, 56.0	22.5, 17.5	59.0, 59.5	55.5, 53.5	14.5, 18.0	60.5, 60.5	55.5, 57.5	11.5, 10.5
P	公定法変法	25.3, 25.1	14.6, 15.0	33.0, 33.4	20.3, 20.2	58.3, 58.0	30.8, 31.4	21.2, 20.8	31.5, 31.7	45.7, 47.7	50.5, 48.0 <sup>†1</sup>	54.2, 55.2	27.5, 29.6	60.2, 59.8	52.6, 52.8	37.0, 38.6	56.0, 46.3	53.0, 52.0	41.1, 36.4
R	公定法	—	—	—	—	—	—	—	—	—	58.0, 59.0	53.5, 53.5	25.5, 27.5	59.0, 58.5	54.0, 54.0	35.5, 36.5	60.5, 59.0	57.5, 56.5	27.5, 27.0
	公定法変法	24.5, 26.0	14.0, 13.0	34.5, 33.0	17.0, 18.5	60.0, 60.0	28.0, 27.5	21.5, 21.0	33.0, 32.0	49.0, 47.5	—	—	—	—	—	—	—	—	—
S	公定法	—	—	—	—	—	—	—	—	—	61.5, 61.5	56.0, 55.0	35.0, 32.0	55.0, 54.5	56.5, 55.5	34.0, 39.5	64.5, 64.5	53.0, 54.5	26.5, 26.0
	公定法変法	24.5, 23.0	14.0, 14.0	31.5, 33.0	31.0, 32.0	68.5, 70.5	44.0, 47.0	18.0, 17.5	29.0, 30.5	52.0, 53.0	—	—	—	—	—	—	—	—	—
T	公定法	22.8, 23.2	14.5, 15.1	33.2, 33.5	27.0, 24.2	58.5, 59.8	27.2, 31.1	20.6, 21.7	47.1, 43.7	49.5, 48.3	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	公定法変法	—	—	—	—	—	—	—	—	—	57.0, 56.7	50.3, 50.4	36.2, 36.5	60.9, 60.8	43.4, 42.9 <sup>†1</sup>	33.8, 35.0	58.3, 56.6	52.3, 51.7	37.1, 37.0
U	公定法変法	24.5, 24.5	15.5, 16.5	10.0, 9.5 <sup>†1</sup>	15.0, 12.5	58.5, 59.5	32.0, 33.0	3.0, 3.0	9.5, 9.0	46.0, 49.0	62.0, 62.0	57.5, 58.0	9.0, 7.0	53.5, 57.5	55.0, 53.0	5.0, 5.5	60.0, 59.0	56.5, 55.5	5.5, 6.5
V	公定法変法	26.5, 26.5	15.5, 22.5 <sup>†1</sup>	21.0, 21.0 <sup>†1</sup>	16.0, 14.0	60.0, 57.5	33.5, 30.5	9.0, 13.5	14.5, 15.0	46.0, 46.0	63.5, 65.0	61.0, 58.0	22.0, 11.0	51.5, 51.0	55.5, 54.0	7.0, 8.0	62.0, 62.5	60.0, 58.0	23.0, 24.0
W	公定法変法	25.9, 25.8	14.8, 15.1	32.8, 33.2	22.4, 19.3	63.8, 60.1	30.4, 31.8	22.4, 22.5	21.5, 22.7	47.9, 47.6	61.8, 61.5	54.8, 54.5	43.6, 45.6	60.8, 60.7	54.0, 53.1	32.7, 33.4	61.9, 59.9	53.1, 52.3	32.4, 36.8
X	公定法	24.4, 23.2	9.7, 9.4 <sup>†1</sup>	29.4, 30.5	13.5, 18.1	53.0, 55.0	19.4, 23.0	19.8, 16.7	34.2, 33.6	44.1, 47.0	62.0, 62.9	55.5, 56.1	47.2, 42.0	59.6, 59.9	53.2, 53.5	46.8, 47.8	62.7, 62.4	53.7, 55.4	46.5, 40.8
	公定法変法	28.5, 29.0 <sup>†1</sup>	16.5, 17.5 <sup>†1</sup>	34.5, 29.0	23.0, 16.5	58.0, 60.0	43.0, 39.5	19.0, 21.0	26.0, 30.0	52.0, 52.0	62.5, 63.5	57.5, 58.0	47.5, 48.5	58.5, 58.5	51.5, 54.0	46.0, 31.5	60.0, 59.0	57.0, 58.0	21.0, 23.5

<sup>†1</sup>: 外れ値(真度)、[(定量値の平均) / 試験濃度 × 100 (%)]の値が80%未満または110%を超える結果

表11 公定法による検体1～3の定量値とその解析結果

試験機関	蒸発残留物量 (µg/mL)		
	検体1	検体2	検体3
A	28.3, 27.7 <sup>*1</sup>	18.7, 18.2 <sup>*1</sup>	35.5, 35.7
I	27.5, 28.5 <sup>*1</sup>	18.0, 18.5 <sup>*1</sup>	35.0, 36.0
L	25.0, 24.5	14.5, 14.0	30.5, 30.5
O	25.5, 25.5	17.0, 17.0 <sup>*1</sup>	30.5, 29.5
T	22.8, 23.2	14.5, 15.1	33.2, 33.5
X	24.4, 23.2	9.7, 9.4 <sup>*1</sup>	29.4, 30.5
試験濃度 (µg/mL)	25	15	33
平均値 (µg/mL)	25.5	15.4	32.5
真度 (%)	102.0	102.5	98.4
RSD <sub>r</sub> (%)	2.0	2.1	1.7
RSD <sub>R</sub> (%)	8.4	22.0	8.4
外れ値 (真度) 数 <sup>*1</sup>	2/6	4/6	0/6
外れ値 (精度) 数 <sup>*2</sup>	0/6	0/6	0/6

真度 = 平均値 / 試験濃度 × 100、RSD<sub>r</sub> : 併行精度、RSD<sub>R</sub> : 室間再現精度

\*1 : 外れ値 (真度)、[ (定量値の平均) / 試験濃度 × 100 (%) ] の値が 80%未満または 110%を超える結果

\*2 : 外れ値 (精度)、Cochran 検定 (\*2a) または Grubbs 検定 (\*2b) における異常値 (危険率<1%) に該当する結果

表12 公定法変法による検体1～3の定量値とその解析結果

試験機関	蒸発残留物量 (µg/mL)		
	検体1	検体2	検体3
B	24.0, 23.0	13.0, 11.5	30.5, 32.0
C	24.8, 26.3	14.8, 15.7	33.3, 34.8
D	25.0, 24.5	14.5, 14.5	32.0, 33.0
E	25.0, 25.5	14.5, 14.5	33.5, 32.0
F	27.0, 27.0	16.0, 15.5	33.0, 33.0
G	26.2, 25.7	17.1, 16.5 <sup>*1</sup>	31.4, 31.5
H	26.5, 24.5	18.5, 17.0 <sup>*1</sup>	27.5, 29.5
J	24.6, 27.5	16.6, 16.6 <sup>*1</sup>	33.8, 33.7
K	29.5, 26.0 <sup>*1</sup>	17.0, 20.0 <sup>*1</sup>	47.0, 46.0 <sup>*1</sup>
M	29.0, 29.0 <sup>*1</sup>	18.4, 19.0 <sup>*1</sup>	23.5, 25.0 <sup>*1</sup>
P	25.3, 25.1	14.6, 15.0	33.0, 33.4
R	24.5, 26.0	14.0, 13.0	34.5, 33.0
S	24.5, 23.0	14.0, 14.0	31.5, 33.0
U	24.5, 24.5	15.5, 16.5	10.0, 9.5 <sup>*1</sup>
V	26.5, 26.5	15.5, 22.5 <sup>*1, 2a</sup>	21.0, 21.0 <sup>*1</sup>
W	25.9, 25.8	14.8, 15.1	32.8, 33.2
Y	28.5, 29.0 <sup>*1</sup>	16.5, 17.5 <sup>*1</sup>	34.5, 29.0 <sup>*2a</sup>
試験濃度 (µg/mL)	25	15	33
平均値 (µg/mL)	25.9	15.9	30.7
真度 (%)	103.5	105.8	93.1
RSD <sub>r</sub> (%)	3.8	8.9	4.0
RSD <sub>R</sub> (%)	6.5	13.7	24.4
外れ値 (真度) 数 <sup>*1</sup>	3/17	7/17	4/17
外れ値 (精度) 数 <sup>*2</sup>	0/17	1/17	1/17

真度 = 平均値 / 試験濃度 × 100、RSD<sub>r</sub> : 併行精度、RSD<sub>R</sub> : 室間再現精度

\*1 : 外れ値 (真度)、[ (定量値の平均) / 試験濃度 × 100 (%) ] の値が 80%未満または 110%を超える結果

\*2 : 外れ値 (精度)、Cochran 検定 (\*2a) または Grubbs 検定 (\*2b) における異常値 (危険率<1%) に該当する結果

## ② 公定法変法

真度の外れ値は検体 1 で 3 つ、検体 2 で 7 つ、検体 3 で 4 つ存在した。そのうち、試験機関 K 及び M の結果は 3 検体とも外れ値に該当した。これらのうち、試験機関 M による検体 3 の結果を除く 5 つはいずれも定量値が試験濃度よりも高かった。また、試験機関 V の検体 2 及び 3、試験機関 Y の検体 1 及び 2 の結果もそれぞれ外れ値に該当した。これらのうち、試験機関 V による検体 3 の結果を除く 3 つはいずれも定量値が試験濃度よりも高かった。

精度の外れ値は Cochran 検定で検体 2 及び 3 にそれぞれ 1 つ存在した。検体 2 では試験機関 V、検体 3 では試験機関 Y の結果が外れ値に該当した。これらの試験機関は、真度においてそれぞれ 2 つの外れ値を報告した機関であった。ただし、この 2 機関の他検体の結果には併行精度に問題はなかった。

真度は 93.1~105.8%、 $RSD_r$  は 3.8~8.9%、 $RSD_R$  は 6.5~24.4%であり、検体 3 の  $RSD_R$  が大きかったが、いずれの性能パラメーターの値も目標値を満たした。

## ③ 検体 2 及び 3 の結果のばらつき原因

検体 2 の真度の外れ値は、公定法で 6 機関中 4 機関、公定法変法で 17 機関中 7 機関が該当し、公定法と公定法変法のいずれでも多かった。これらの定量値は、公定法の試験機関 X のもの以外はいずれも定量値が試験濃度よりも高かった。このように定量値が高かった原因として、蒸発乾固時に検体 2 の溶質であるカルボキシメチルセルロース Na が水和物を生成したためではないかと推測された。

また、検体 3 の真度の外れ値は、公定法では存在しなかったが、公定法変法は 17 機関中 4 機関が該当した。そのうち、試験機関 M、U 及び V の 3 機関の結果は他機関より明らかに低かったが、その原因は不明であった。

## 2) 検体 4~6 の試験結果

公定法による 6 機関の定量値とその解析結果を表 1 3、公定法変法による 17 機関の定量値とその解析結果を表 1 4 に示した。ただし、検体 4~6 はすべて B グループの検体であったため、真度及び真値の外れ値は求めなかった。

### ① 公定法

各試験機関の定量値は、検体 4 は 13.5~29.5  $\mu\text{g/mL}$  で平均値は 21.8  $\mu\text{g/mL}$ 、検体 5 は 53.0~69.0  $\mu\text{g/mL}$  で平均値は 60.7  $\mu\text{g/mL}$ 、検体 6 は 19.4~40.4  $\mu\text{g/mL}$  で平均値は 30.2  $\mu\text{g/mL}$  であり、精度の外れ値は存在しなかった。

性能パラメーターの値は、 $RSD_r$  は 1.8~12.9%、 $RSD_R$  は 8.7~26.6%であった。検体 5 及び 6 の  $RSD_r$  と  $RSD_R$  は目標値を満たしたが、検体 4 はともに目標値を満たさなかった。検体 4 は各試験機関の結果にばらつきが大きく、試験機関 L 及び X の結果が低く、試験機関 I の結果が高かった。

### ② 公定法変法

各試験機関の定量値は、検体 4 は 10.5~32.0  $\mu\text{g/mL}$  で平均値は 19.6  $\mu\text{g/mL}$ 、検体 5 は 56.5~74.0  $\mu\text{g/mL}$  で平均値は 60.9  $\mu\text{g/mL}$ 、検体 6 は 27.5~47.0  $\mu\text{g/mL}$  で平均値は 32.6  $\mu\text{g/mL}$  であり、精度の外れ値は存在しなかった。

性能パラメーターの値は、 $RSD_r$  は 2.1~9.6%、 $RSD_R$  は 6.9~26.5%であった。検体 5 及び 6 の  $RSD_r$  と  $RSD_R$  は目標値を満たしたが、検体 4 の  $RSD_R$  が目標値を満たさなかった。検体 4 は、公定法と同様に各試験機関の結果にばらつきが大きく、試験機関 E、H、U 及び V の結果が低く、試験機関 S の結果が高かった。

### ③ 検体 4 及び 6 の結果のばらつき原因

検体 4 は公定法、公定法変法のいずれも各試験機関の結果にばらつきが大きかった。検体 4 の溶質である ZnO は酢酸存在下で酢酸亜

鉛を生成するため、蒸発乾固後は酢酸亜鉛として残留したと推測される。さらに、酢酸亜鉛は無水物と二水和物の2つの形態が存在し生成した酢酸亜鉛の形態の違いやその存在比により結果にばらつきが生じた可能性がある。また、検体6についても、目標値を満たした

が、両法とも RSD<sub>R</sub> は比較的大きかった。検体6の溶質はゴム手袋抽出液であり、その主成分は架橋助剤として使用される ZnO と推測された。このことから、検体6の結果のばらつきは、検体4と同様の理由によるものと推測された。

表13 公定法による検体4～6の定量値とその解析結果

試験機関	蒸発残留物量 (µg/mL)		
	検体4	検体5	検体6
A	24.1, 25.4	64.4, 64.8	37.2, 40.4
I	29.0, 29.5	68.5, 69.0	32.0, 32.0
L	13.5, 21.5	60.5, 58.0	28.5, 27.0
O	18.5, 17.5	57.5, 59.0	32.0, 32.5
T	27.0, 24.2	58.5, 59.8	27.2, 31.1
X	13.5, 18.1	53.0, 55.0	19.4, 23.0
平均値 (µg/mL)	21.8	60.7	30.2
RSD <sub>f</sub> (%)	12.9	1.8	6.1
RSD <sub>R</sub> (%)	26.6	8.7	19.8
外れ値 (精度) 数*	0/6	0/6	0/6

\* : 外れ値 (精度)、Cochran 検定 (\*<sup>2a</sup>) または Grubbs 検定 (\*<sup>2b</sup>) における異常値 (危険率<1%) に該当する結果

表14 公定法変法による検体4～6の定量値とその解析結果

試験機関	蒸発残留物量 (µg/mL)		
	検体4	検体5	検体6
B	20.0, 18.5	57.5, 59.0	31.0, 29.5
C	26.8, 26.3	59.3, 60.8	31.2, 31.2
D	24.3, 23.3	59.3, 61.8	32.3, 29.8
E	13.0, 12.5	59.0, 57.5	27.5, 28.5
F	22.0, 22.5	59.5, 59.0	28.5, 29.0
G	22.2, 22.6	59.3, 59.6	33.7, 34.7
H	13.5, 10.5	57.5, 56.5	29.0, 29.0
J	17.2, 17.8	60.3, 62.1	30.6, 32.0
K	18.0, 24.5	74.0, 71.5	39.5, 40.0
M	16.5, 17.0	62.0, 63.0	29.5, 28.5
P	20.3, 20.2	58.3, 58.0	30.8, 31.4
R	17.0, 18.5	60.0, 60.0	28.0, 27.5
S	31.0, 32.0	68.5, 70.5	44.0, 47.0
U	15.0, 12.5	58.5, 59.5	32.0, 33.0
V	16.0, 14.0	60.0, 57.5	33.5, 30.5
W	22.4, 19.3	63.8, 60.1	30.4, 31.8
Y	23.0, 16.5	58.0, 60.0	43.0, 39.5
平均値 (µg/mL)	19.6	60.9	32.6
RSD <sub>f</sub> (%)	9.6	2.1	3.6
RSD <sub>R</sub> (%)	26.5	6.9	15.5
外れ値 (精度) 数*	0/17	0/17	0/17

\* : 外れ値 (精度)、Cochran 検定 (\*<sup>2a</sup>) または Grubbs 検定 (\*<sup>2b</sup>) における異常値 (危険率<1%) に該当する結果

### 3) 検体 7~9 の試験結果

公定法による 6 機関の定量値とその解析結果を表 1 5、公定法変法による 17 機関の定量値とその解析結果を表 1 6 に示した。ただし、検体 7~9 は、すべて B グループの検体であったため、真度及び真値の外れ値は求めなかった。

#### ① 公定法

各試験機関の定量値は、検体 7 は 16.7~21.7  $\mu\text{g/mL}$  で平均値は 19.7  $\mu\text{g/mL}$ 、検体 8 は 8.0~47.1  $\mu\text{g/mL}$  で平均値は 30.4  $\mu\text{g/mL}$ 、検体 9 は 44.1~51.5  $\mu\text{g/mL}$  で平均値は 48.7  $\mu\text{g/mL}$  であり、精度の外れ値は存在しなかった。

性能パラメーターの値は、 $RSD_r$  は 2.3~18.2%、 $RSD_R$  は 8.5~35.2%であった。検体 7 及び 9 の  $RSD_r$  と  $RSD_R$  は目標値を満たしたが、検体 8 はともに目標値を満たさなかった。検体 8 は各試験機関の結果にばらつきが大きく、試験機関 L 及び O の結果が低く、試験機関 T の結果が高かった。

#### ② 公定法変法

各試験機関の定量値は、検体 7 は 3.0~25.1  $\mu\text{g/mL}$  で平均値は 18.8  $\mu\text{g/mL}$ 、検体 8 は 9.0~59.5  $\mu\text{g/mL}$  で平均値は 30.2  $\mu\text{g/mL}$ 、検体 9 は 42.5~60.0  $\mu\text{g/mL}$  で平均値は 48.9  $\mu\text{g/mL}$  であった。精度の外れ値は Grubbs 検定で検体 7 に 2 つ存在し、これらの結果を提出した試験機関 U 及び V の結果は他機関と比べて明らかに低かった。

性能パラメーターの値は、 $RSD_r$  は 2.3~6.9%、 $RSD_R$  は 7.6~43.9%であった。検体 9

の  $RSD_r$  と  $RSD_R$  は目標値を満たしたが、検体 7 及び 8 の  $RSD_R$  は目標値を満たさなかった。検体 7 は、各試験機関の結果にばらつきが大きく、特に精度の外れ値に該当した試験機関 U 及び V の結果が低かった。検体 7 については、この 2 機関の結果を棄却すると、検体 7 の平均値は 20.4  $\mu\text{g/mL}$ 、 $RSD_r$  は 5.5%、 $RSD_R$  は 9.9%と公定法の結果と同等となり、目標値を満たした。また、検体 8 も、公定法と同様に各試験機関の結果にばらつきが大きく、試験機関 B、E、U 及び V の結果が低く、試験機関 D、G 及び M の結果が高かった。

#### ③ 検体 7 及び 8 の結果のばらつき原因

検体 7 は公定法変法で、検体 8 は両法で各試験機関の結果にばらつきが大きかった。そのうち、特に公定法変法における試験機関 B、U 及び V の結果は他機関より明らかに低かった。その原因の一つとして、検体 7 及び 8 のそれぞれの溶質である BPA 及び TBC の沸点が 250°C 前後と比較的低く、加熱条件によって揮散しやすい性質があることが考えられる。試験機関 B は、蒸発乾固の加熱中止のタイミングとして「乾固後数分間ホットプレート上に容器を放置した可能性がある」と回答しているため、乾固時に揮散したことが推測された。一方、試験機関 U 及び V は液量を 20 mL 以上残した状態で容器をホットプレートから下ろし、その後は余熱と自然乾燥により乾固させており、低値の原因が乾固時の揮散に起因するかは判断できなかった。



表15 公定法による検体7～9の定量値とその解析結果

試験機関	蒸発残留物量 (μg/mL)		
	検体7	検体8	検体9
A	19.1, 19.8	28.3, 37.9	49.0, 50.1
I	21.0, 20.0	28.5, 32.0	50.0, 50.0
L	21.5, 21.0	23.5, 8.0	51.5, 49.5
O	18.5, 17.0	22.5, 26.0	47.5, 48.0
T	20.6, 21.7	47.1, 43.7	49.5, 48.3
X	19.8, 16.7	34.2, 33.6	44.1, 47.0
平均値 (μg/mL)	19.7	30.4	48.7
RSD <sub>r</sub> (%)	5.6	18.2	2.3
RSD <sub>R</sub> (%)	8.5	35.2	4.1
外れ値 (精度) 数*	0/6	0/6	0/6

\*: 外れ値 (精度)、Cochran 検定 (\*2a) または Grubbs 検定 (\*2b) における異常値 (危険率<1%) に該当する結果

表16 公定法変法による検体7～9の定量値とその解析結果

試験機関	蒸発残留物量 (μg/mL)		
	検体7	検体8	検体9
B	18.0, 18.5	11.5, 12.0	47.5, 48.0
C	21.5, 19.0	20.0, 21.0	47.0, 46.5
D	21.5, 23.0	44.0, 45.0	47.5, 47.5
E	22.5, 21.5	18.0, 18.5	50.5, 52.0
F	19.5, 20.5	32.0, 37.5	43.5, 45.5
G	25.1, 23.3	44.6, 45.9	53.8, 52.6
H	19.0, 17.5	29.0, 30.0	42.5, 44.0
J	21.7, 19.2	40.4, 46.1	47.3, 47.6
K	17.5, 18.5	41.0, 38.5	56.0, 60.0
M	21.0, 18.0	55.0, 59.5	50.0, 50.5
P	21.2, 20.8	31.5, 31.7	45.7, 47.7
R	21.5, 21.0	33.0, 32.0	49.0, 47.5
S	18.0, 17.5	29.0, 30.5	52.0, 53.0
U	3.0, 3.0 <sup>*2b</sup>	9.5, 9.0	46.0, 49.0
V	9.0, 13.5 <sup>*2b</sup>	14.5, 15.0	46.0, 46.0
W	22.4, 22.5	21.5, 22.7	47.9, 47.6
Y	19.0, 21.0	26.0, 30.0	52.0, 52.0
平均値 (μg/mL)	18.8 (20.4)	30.2	48.9
RSD <sub>r</sub> (%)	6.9 (5.5)	6.1	2.3
RSD <sub>R</sub> (%)	26.8 (9.9)	43.9	7.6
外れ値 (精度) 数*	2/17	0/17	0/17

\*: 外れ値 (精度)、Cochran 検定 (\*2a) または Grubbs 検定 (\*2b) における異常値 (危険率<1%) に該当する結果 ( ) 内は試験機関 U と V の結果を棄却して解析した場合の値

#### 4) 検体 10~18 の試験結果

公定法による 8 機関の定量値とその解析結果を表 1 7、公定法変法による 15 機関の定量値とその解析結果を表 1 8 に示した。ただし、ラップフィルム抽出物から調製した検体（検体 12、15 及び 18）は、B グループの検体であるため、真度及び真値の外れ値は求めなかった。

##### ① 公定法

###### i) 検体 10、11、13、14、16 及び 17

シリコーンオイル及びエポキシ化大豆油を用いて調製した検体（検体 10、13 及び 16、並びに検体 11、14 及び 17）では、真度の外れ値が検体 11 において 1 つ存在した。これは試験機関 A の結果が試験濃度よりも高かったためである。それ以外の実度の外れ値は存在しなかった。一方、精度の外れ値は存在しなかった。

性能パラメーターの値はいずれも良好で、真度は 94.5~102.6%、 $RSD_f$  は 1.1~2.6%、 $RSD_R$  は 2.8~5.2% であり、目標値を満たした。

###### ii) 検体 12、15 及び 18

ラップフィルム抽出物の検体（検体 12、15 及び 18）における各試験機関の定量値は、検体 12 は 17.5~52.0  $\mu\text{g/mL}$  で平均値は 35.3  $\mu\text{g/mL}$ 、検体 15 は 14.5~47.8  $\mu\text{g/mL}$  で平均値は 30.6  $\mu\text{g/mL}$ 、検体 18 は 10.5~46.5  $\mu\text{g/mL}$  で平均値は 28.8  $\mu\text{g/mL}$  であり、精度の外れ値は存在しなかった。

性能パラメーターの値は、 $RSD_f$  は 9.1~11.3%、 $RSD_R$  は 35.9~40.8% であり、検体 12 の  $RSD_f$  及び 3 検体すべての  $RSD_R$  が目標値を満たさなかった。3 検体とも結果のばらつきが大きく、特定の試験機関の結果が一律に高いまたは低いという傾向もみられなかった。

##### ② 公定法変法

###### i) 検体 10、11、13、14、16 及び 17

シリコーンオイル及びエポキシ化大豆油の検体では、真度の外れ値が検体 10 で 3 つ、検体 11 で 1 つ、検体 14 で 1 つ存在した。また、

精度の外れ値は Cochran 検定で検体 11 及び 16 にそれぞれ 1 つ、Grubbs 検定で検体 14 に 1 つ存在した。

しかし、いずれの性能パラメーターの値も良好で、真度は 92.9~101.2%、 $RSD_f$  は 1.3~3.2%、 $RSD_R$  は 5.5~8.6% であり、目標値を満たした。

###### ii) 検体 12、15 及び 18

ラップフィルム抽出物の検体における各試験機関の定量値は、検体 12 は 6.5~54.9  $\mu\text{g/mL}$  で平均値は 34.1  $\mu\text{g/mL}$ 、検体 15 は 5.0~55.3  $\mu\text{g/mL}$  で平均値は 31.8  $\mu\text{g/mL}$ 、検体 18 は 5.5~57.0  $\mu\text{g/mL}$  で平均値は 33.3  $\mu\text{g/mL}$  であり、精度の外れ値は Cochran 検定で検体 15 に 1 つ存在した。これは試験機関 Y の併行精度が悪かったためである。

性能パラメーターの値は、 $RSD_f$  は 5.3~9.8%、 $RSD_R$  は 41.1~48.3% であり、3 検体すべての  $RSD_R$  が目標値を満たさなかった。公定法と同様に 3 検体とも各試験機関の結果にばらつきが大きく、試験機関 H、J、U 及び V では、すべてまたは一部の検体の結果で他機関と比べて明らかに低かった。これらの試験機関のうち、試験機関 J は蒸発乾固の加熱中止のタイミングとして「乾固後直ちにホットプレートから下した」と回答しており、蒸発乾固時に溶質が揮散した可能性がある。また、試験機関 U 及び V の蒸発乾固の方法は大部分の試験機関とは大きく異なり、加熱装置を用いず、また減圧濃縮も行わず長時間をかけて室温で風乾させていた。

##### ③ 検体 12、15 及び 18 の結果のばらつき原因

ラップフィルム抽出物の検体 12、15 及び 18 は両法とも各試験機関の結果にばらつきが大きかった。このラップフィルム抽出物の成分分析を行ったところ、主成分は可塑剤の ATBC であった。ATBC は沸点が 200°C 前後と低いため、加熱により揮散しやすいものと考えられる。実際に予備試験時に求めた回収

表17 公定法による検体10~18の定量値とその解析結果

試験機関	蒸発残留物量 (µg/mL)								
	検体10	検体11	検体12	検体13	検体14	検体15	検体16	検体17	検体18
A	63.5, 64.0	61.8, 63.9 <sup>*1</sup>	20.2, 33.4	59.9, 62.6	60.6, 58.8	24.5, 20.8	61.6, 62.8	58.6, 60.4	27.8, 27.9
F	59.5, 60.5	55.5, 57.0	26.0, 29.5	58.5, 60.5	54.5, 53.5	35.0, 41.0	60.0, 59.5	61.0, 56.5	30.5, 29.5
I	59.5, 58.5	54.0, 54.5	52.0, 51.5	60.5, 57.0	50.5, 52.5	20.5, 15.5	61.5, 60.0	55.0, 55.5	45.0, 46.5
L	67.0, 65.0	56.5, 58.0	52.0, 51.5	55.5, 58.0	55.0, 54.5	29.0, 31.0	60.0, 61.0	55.0, 56.0	14.0, 23.0
O	62.0, 62.0	56.0, 56.0	22.5, 17.5	59.0, 59.5	55.5, 53.5	14.5, 18.0	60.5, 60.5	55.5, 57.5	11.5, 10.5
R	58.0, 59.0	53.5, 53.5	25.5, 27.5	59.0, 58.5	54.0, 54.0	35.5, 36.5	60.5, 59.0	57.5, 56.5	27.5, 27.0
S	61.5, 61.5	56.0, 55.0	35.0, 32.0	55.0, 54.5	56.5, 55.5	34.0, 39.5	64.5, 64.5	53.0, 54.5	26.5, 26.0
X	62.0, 62.9	55.5, 56.1	47.2, 42.0	59.6, 59.9	53.2, 53.5	46.8, 47.8	62.7, 62.4	53.7, 55.4	46.5, 40.8
試験濃度 (µg/mL)	62	55	—	62	55	—	62	55	—
平均値 (µg/mL)	61.6	56.4	35.3	58.6	54.7	30.6	61.3	56.3	28.8
真度 (%)	99.4	102.6	—	94.5	99.5	—	98.9	102.4	—
RSD <sub>r</sub> (%)	1.1	1.4	11.3	2.4	1.7	9.1	1.1	2.6	9.4
RSD <sub>R</sub> (%)	4.1	5.2	35.9	3.8	4.5	36.1	2.8	4.0	40.8
外れ値 (真度) 数 <sup>*1</sup>	0/8	1/8	—	0/8	0/8	—	0/8	0/8	—
外れ値 (精度) 数 <sup>*2</sup>	0/8	0/8	0/8	0/8	0/8	0/8	0/8	0/8	0/8

真度 = 平均値 / 試験濃度 × 100、RSD<sub>r</sub> : 併行精度、RSD<sub>R</sub> : 室間再現精度

\*1 : 外れ値 (真度) 、 [ (定量値の平均) / 試験濃度 × 100 (%) ] の値が 80%未満または 110%を超える結果

\*2 : 外れ値 (精度) 、 Cochran 検定 (\*2a) または Grubbs 検定 (\*2b) における異常値 (危険率<1%) に該当する結果

表18 公定法変法による検体10~18の定量値とその解析結果

試験機関	蒸発残留物量 (µg/mL)								
	検体10	検体11	検体12	検体13	検体14	検体15	検体16	検体17	検体18
B	59.0, 60.0	54.0, 54.0	31.0, 30.0	53.0, 54.0	51.0, 54.0	29.0, 25.5	60.0, 58.0	56.0, 53.5	28.0, 30.5
C	62.0, 66.0	55.0, 55.0	45.5, 49.5	61.7, 62.2	55.7, 54.8	30.7, 32.7	62.3, 62.8	55.7, 57.8	35.8, 38.2
D	63.3, 64.3	54.3, 54.2	54.2, 53.8	58.3, 60.8	56.2, 56.3	54.2, 55.3	63.0, 63.0	53.5, 54.5	57.0, 56.0
E	64.0, 64.5	62.5, 61.5 <sup>*1</sup>	30.5, 29.5	59.0, 58.0	55.0, 55.0	42.0, 41.0	62.5, 62.0	57.0, 58.0	43.0, 43.0
G	61.6, 63.0	57.1, 56.7	42.0, 42.8	54.2, 53.2	51.8, 51.7	44.9, 42.6	58.6, 57.0	52.2, 53.3	40.4, 38.0
H	59.0, 59.5	52.5, 52.5	6.5, 7.0	55.5, 59.5	56.5, 57.0	33.5, 31.5	63.0, 61.5	56.0, 58.0	14.0, 12.5
J	61.9, 62.2	56.6, 55.7	20.3, 9.9	60.3, 60.5	54.2, 54.4	11.1, 17.4	63.6, 64.0	56.7, 56.3	22.7, 26.6
K	69.0, 73.0 <sup>*1</sup>	49.0, 48.5	50.0, 50.5	52.5, 53.5	50.0, 51.0	27.5, 29.5	52.0, 52.0	47.0, 48.0	52.5, 50.0
M	70.5, 72.3 <sup>*1</sup>	61.0, 59.6	50.5, 54.9	59.3, 58.7	53.6, 53.8	45.8, 47.6	65.8, 65.7	53.5, 53.6	42.9, 43.9
P	50.5, 48.0 <sup>*1</sup>	54.2, 55.2	27.5, 29.6	60.2, 59.8	52.6, 52.8	37.0, 38.6	56.0, 46.3 <sup>*2a</sup>	53.0, 52.0	41.1, 36.4
T	57.0, 56.7	50.3, 50.4	36.2, 36.5	60.9, 60.8	43.4, 42.9 <sup>*1, *2b</sup>	33.8, 35.0	58.3, 56.6	52.3, 51.7	37.1, 37.0
U	62.0, 62.0	57.5, 58.0	9.0, 7.0	53.5, 57.5	55.0, 53.0	5.0, 5.5	60.0, 59.0	56.5, 55.5	5.5, 6.5
V	63.5, 65.0	61.0, 58.0 <sup>*2a</sup>	22.0, 11.0	51.5, 51.0	55.5, 54.0	7.0, 8.0	62.0, 62.5	60.0, 58.0	23.0, 24.0
W	61.8, 61.5	54.8, 54.5	43.6, 45.6	60.8, 60.7	54.0, 53.1	32.7, 33.4	61.9, 59.9	53.1, 52.3	32.4, 36.8
Y	62.5, 63.5	57.5, 58.0	47.5, 48.5	58.5, 58.5	51.5, 54.0	46.0, 31.5 <sup>*2a</sup>	60.0, 59.0	57.0, 58.0	21.0, 23.5
試験濃度 (µg/mL)	62	55	—	62	55	—	62	55	—
平均値 (µg/mL)	62.3	55.6	34.1	57.6	53.1	31.8	59.9	54.7	33.3
真度 (%)	100.5	101.2	—	92.9	96.6	—	96.7	99.4	—
RSD <sub>F</sub> (%)	2.1	1.3	9.0	2.1	1.7	9.8	3.2	1.7	5.3
RSD <sub>R</sub> (%)	8.6	6.5	48.3	6.0	6.2	44.3	7.2	5.5	41.1
外れ値 (真度) 数 <sup>*1</sup>	3/15	1/15	—	0/15	1/15	—	0/15	0/15	—
外れ値 (精度) 数 <sup>*2</sup>	0/15	1/15	0/15	0/15	1/15	1/15	1/15	0/15	0/15

真度 = 平均値 / 試験濃度 × 100、RSD<sub>F</sub> : 併行精度、RSD<sub>R</sub> : 室間再現精度

\*1 : 外れ値 (真度)、[ (定量値の平均) / 試験濃度 × 100 (%) ] の値が 80%未満または 110%を超える結果

\*2 : 外れ値 (精度)、Cochran 検定 (\*2a) または Grubbs 検定 (\*2b) における異常値 (危険率<1%) に該当する結果