

高效液相色谱-串联质谱法测定牛奶中3种磺胺类药物残留不确定度的评定

张燕*, 徐幸, 郭启新, 舒平, 赵用, 杨朝义, 赵燕娜,
(大理州质量技术监督综合检测中心, 大理 671000)

摘要: **目的** 采用高效液相色谱-串联质谱法对牛奶中磺胺吡啶、磺胺噻唑和磺胺甲基异恶唑残留的不确定度进行评估。**方法** 建立测定牛奶中磺胺吡啶、磺胺噻唑和磺胺甲基异恶唑含量不确定度的数学模型, 确定不确定度来源并对其进行评定。**结果** 当牛奶中磺胺吡啶含量为 5.09 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 时, 其扩展不确定度为 0.62 $\mu\text{g}/\text{kg}$ ($k=2$); 当牛奶中磺胺噻唑含量为 8.62 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 时, 其扩展不确定度为 0.71 $\mu\text{g}/\text{kg}$ ($k=2$); 当牛奶中磺胺甲基异恶唑含量为 10.15 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 时, 其扩展不确定度为 0.81 $\mu\text{g}/\text{kg}$ ($k=2$)。其中, 测量重复性和标准曲线对不确定度的影响最大。**结论** 影响检测结果不确定度的主要因素为样品测量的重复性、标准曲线拟合和样品的前处理过程。**关键词:** 磺胺吡啶; 磺胺噻唑; 磺胺甲基异恶唑; 高效液相色谱-串联质谱法; 牛奶; 不确定度

Uncertainty evaluation of three sulfonamides residues in milk by high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry

ZHANG Yan*, XU Xing, GUO Qi-Xin, SHU Ping, ZHAO Yong, YANG Chao-Yi, ZHAO Yan-Na
(Dali State Comprehensive Technical Inspection Center, Dali 67100, China)

ABSTRACT: Objective To establish a mathematical model of uncertainty evaluation of sulfapyridine, sulfathiazole and sulfamethoxazole in milk by high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry method. **Methods** To establish a mathematical model for determination of sulfapyridine, sulfathiazole and sulfamethoxazole uncertainty in milk. The sources of uncertainty of the whole determination procedure were analyzed and the combined uncertainty was finally obtained. **Results** The expanded uncertainty of 5.09 $\mu\text{g}/\text{kg}$ ($k=2$) with 0.62 $\mu\text{g}/\text{kg}$ of the content of sulfapyridin was derived. The expanded uncertainty of 8.62 $\mu\text{g}/\text{kg}$ ($k=2$) with 0.71 $\mu\text{g}/\text{kg}$ of the content of sulfathiazole was derived. The expanded uncertainty of 10.15 $\mu\text{g}/\text{kg}$ ($k=2$) with 0.81 $\mu\text{g}/\text{kg}$ of the content of sulfamethoxazole was derived. The major sources of uncertainty of measurement include the repeatability of detection and the curve fitting. **Conclusion** The major uncertainty sources were standard curve fitting; measurement repeatability and sample pretreatment. **KEY WORDS:** sulfapyridin; sulfathiazole; sulfamethoxazole; liquid chromatography-tandem mass spectrometry; milk; uncertainty

1 引言

磺胺类药物(sulfonamides, SAs)是指一类具有对

氨基苯磺酰胺结构、用于预防和治疗细菌感染性疾病的化学药物, 是一类广谱抗菌药。当前畜禽生产中常用的抗菌、抗原虫药物。能抑制大多数革兰氏阳性菌

*通讯作者: 张燕, 工程师, 主要研究方向为食品安全检测。E-mail: shiyan1230@163.com

*Corresponding author: ZHANG Yan, Engineer, Dali State Comprehensive Technical Inspection Center, Economic Development Zone 1 box, Dali 67100, China. E-mail: shiyan1230@163.com

和某些阴性菌。临床上主要用于预防和治疗细菌感染性疾病,还常作为饲料添加剂在动物生产中长期应用。但其在动物性食品中的残留及其对人类健康所造成的危害日益为人们重视^[1,2]。因此,磺胺类药物的不合理使用,使其在动物性食品中残留引起生态环境污染和人类健康危害的潜在威胁已倍受关注。

本文主要依据 GB/T 22966-2008 《牛奶和奶粉中 16 种磺胺类药物残留量的测定 液相色谱-串联质谱法》对牛奶中 3 种磺胺类药物残留(磺胺吡啶 SP、磺胺噻唑 STZ 和磺胺甲基异恶唑 SMZ)检测为例,探讨了该方法的不确定度的来源、评定、合成以及结果表达。结果表明标准品的配制、稀释、标准曲线校准,样品回收率对样品的相对不确定度贡献较大。建立该方法的测量不确定度的模型,评定了该方法的测量不确定度,为正确评价和使用检测数据提供了依据^[3-13]。

2 材料与方法

2.1 仪器与试剂

高效液相色谱仪(安捷伦 1200); API3200 质谱仪(美国 AB 公司)配有电喷雾离子源; TG16-WS 台式高速离心机; Diret-Q5 超纯水机(美国 Millipore); MTN-2800W 氮吹浓缩装置(天津奥特赛恩斯仪器有限公司); AS20500BDT 超声清洗仪; 旋涡混匀器(Thermo); 水相针式过滤器 0.22 μm; 10~1000 μL, 1000-5000 μL 移液枪(德国 eppendorf); 磺胺吡啶、磺胺噻唑和磺胺甲基异恶唑(纯度均大于 99.5%, 德国 Dr. Ehrenstorfer 公司); HLB 固相萃取柱(30 mg/3 mL); 甲醇、乙腈均为色谱纯(德国 Merck); 其他试剂均为优级纯。

2.2 检测方法

依据 GB/T 22966-2008 《牛奶和奶粉中 16 种磺胺类药物残留量的测定 液相色谱-串联质谱法》。

2.3 样品制备

称取牛奶试样 2 g, 精确到 0.01 g, 置于 10 mL 具塞离心管中, 用 pH=2 高氯酸水溶液定容至 10 mL, 于漩涡振荡器振荡提取 1 min, 超声波萃取 10 min, 与 10000 r/min 离心机上离心 5 min, 取出备用。再取处理好的试样溶液 5 mL 以 1 mL/min 的流速过 Oasis HLB(30 mg/3 mL)固相萃取柱。首先萃取柱分别用 3 mL 甲醇, 5 mL pH=2 高氯酸水溶液活化柱子, 保持柱

体湿润。待样液流出完后, 用 5 mL 水淋洗柱子, 抽干, 用甲醇 3 mL 洗脱于 10 mL 离心管中, 于 40 °C 氮吹仪上吹干, 最后用甲醇-乙酸乙酯(1+19)定容至 1 mL, 涡旋振荡器混匀, 经 0.45 μm 滤膜过滤上液质联用仪测定。

2.4 仪器条件

色谱柱: Phenomenex Luna 3 μ C₁₈(2) (100 mm × 2.00mm 3 μm); 流速: 0.2 mL/min; 柱温: 35 °C; 进样量: 5 μL; 流动相: 0.1%甲酸水+甲醇。质谱条件: 离子源电喷雾正离子源(ESI⁺); 扫描方式: 多反应监测(MRM)模式, 外标法定量。

3 结果与讨论

3.1 数学模型

$$X = \frac{C \times V_3 \times \frac{V_1}{V_2}}{m \times f_{rec}} \quad (1)$$

式中: X 为牛奶中磺胺吡啶、磺胺噻唑和磺胺甲基异恶唑含量(μg/kg); C 测定试样液中磺胺吡啶、磺胺噻唑和磺胺甲基异恶唑在标准曲线上的浓度值(μg/L); V_3 为测定液定容体积 1 mL; V_2 为过固相萃取柱取用试液体积 5 mL; V_1 为试样处理液总体积 10 mL; m 为试样的质量(g); f_{rec} 为回收率。此公式是从测量原理给出的。当中没有考虑各种因素对不确定度的影响, 在此应引入各方面随即影响的重复性系数 f_{rep} , 其数值等于 1。评定不确定度的数学模型应写成如下形式:

$$X = \frac{C \times V_3 \times \frac{V_1}{V_2}}{m \times f_{rec}} \times f_{rep} \circ$$

3.2 各分量标准不确定度的来源

牛奶中磺胺吡啶、磺胺噻唑和磺胺甲基异恶唑含量的测定, 不确定度的来源主要有以下过程引入, 见图 2。

3.2.1 测量重复性标准不确定度 $U_{rel}(X_{rep})$

取同一批次的牛奶 6 份试样, 在相同的前处理条件和完全相同的液质条件下, 重复测定 6 次, 按照公式(1)计算样品中磺胺类药物残留的质量分数和不确定度, 评定结果见表 1。样品重复性测定, 单次实

验标准偏差 $S(X) = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (X_i - \bar{X})^2}{n-1}}$, 在日常的分析中,

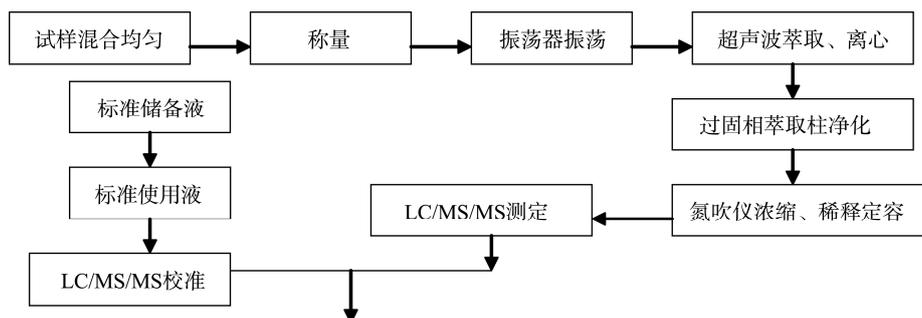


图 1 牛奶中磺胺吡啶、磺胺噻唑和磺胺甲基异恶唑测定流程图

Fig. 1 Flow diagram determination of sulfapyridin, sulfathiazole and sulfamethoxazole in milk

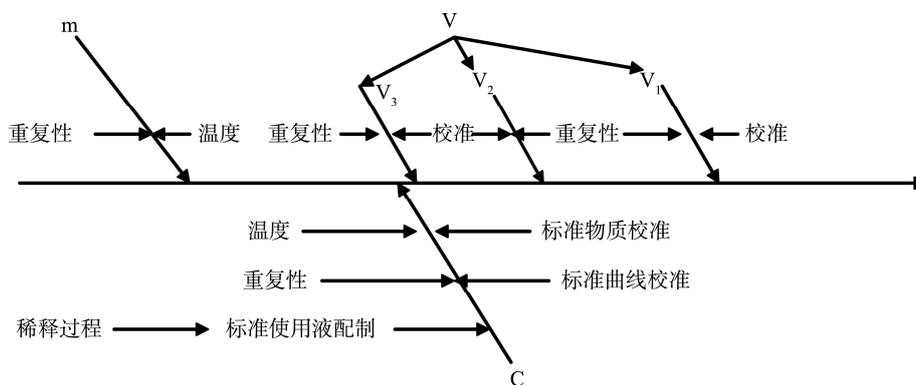


图 2 测量牛奶中磺胺吡啶、磺胺噻唑和磺胺甲基异恶唑不确定的因果关系图

Fig. 2 Measurement in milk sulfapyridin, sulfadiazine and sulfamethoxazole uncertain causality diagram

表 1 重复性测定结果和不确定度
Table 1 Results of repeatability and uncertainties

药物名称	X/(μg/kg)						\bar{X} /(μg/kg)	S(X_{rep}) /(μg/kg)	$u_{rel}(X_{rep})$
	1	2	3	4	5	6			
SP	5.0814	4.9708	5.0982	5.1334	5.0479	5.2051	5.0894	0.07906	0.01098
STZ	8.7636	8.4537	8.6536	8.7959	8.5330	8.5302	8.6217	0.13853	0.01136
SMZ	10.2436	9.9012	10.2065	10.3024	9.9252	10.2982	10.1462	0.20483	0.01427

测量两份试样, 报告其平均值。两次测量结果平均值的相对标准偏差作为其重复性的相对标准不确定度

$$u_{rel}(f_{rep}) = \frac{S(X)}{X \times \sqrt{2}}$$

此分析综合体现了测量仪器、体积测量、质量测量和回收率等方面的随机影响。因此, 在随后评定其他分量时不需要考虑这些随机性影响。

3.2.2 试样称量引入的相对标准不确定度 $u_{rel}(m)$

称样量为 2.0 g, 天平的检定证书给出了最大允许误差(MPE)为±0.05 g, 称量试样的值为 2.0339 g, 取矩形分布, 引入的标准不确定度为: $u(m) = 0.05 / \sqrt{3} = 0.0289(g)$
 $u_{rel}(m) = 0.0289(g) / 2.0339(g) = 0.0142$

3.2.3 样品前处理中提取、净化过程中体积引入的标准不确定度

3.2.3.1 称量试样定容总体积引入的相对标准不确定度

根据 JJG 196-2006《常用玻璃量器》检定规程的规定, 10 mL 具塞比色管(A 级)的容量允差为±0.0020 mL, 取矩形分布, 则 10 mL 具塞比色管引入的标准不确定度为: $u(V_1) = 0.0020 / \sqrt{3} = 0.001155(mL)$, $u_{rel}(V_1) = 0.001155(mL) / 10(mL) = 0.0001155$ 。

3.2.3.2 提取、净化过程中体积引入的相对标准不确定度

根据 JJG 646-2006《移液器》检定规程的规定,

5000 μL 移液器取用 5000 μL 时的容量允差为 $\pm 0.6\%$, 取矩形分布, 则 5000 μL 移液器引入的标准不确定度为: $u(V_2) = 5000 \times 0.6\% / \sqrt{3} = 17.32(\mu\text{L})$, $u_{rel}(V_2) = 17.32(\mu\text{L}) / 5000(\mu\text{L}) = 0.003464$ 。

3.2.3.3 测定液定容体积引入的相对标准不确定度

根据 JJG646-2006《移液器》检定规程的规定, 1000 μL 移液器取用 1000 μL 时的容量允差为 $\pm 1.0\%$, 取矩形分布, 则 1000 μL 移液器引入的标准不确定度为: $u(V_3) = 1000 \times 1.0\% / \sqrt{3} = 5.7733(\mu\text{L})$, $u_{rel}(V_3) = 5.7733(\mu\text{L}) / 1000(\mu\text{L}) = 0.005773$; 则前处理中体积引入的相对标准偏差为 $u_{rel}(V) = \sqrt{u_{rel}^2(V_1) + u_{rel}^2(V_2) + u_{rel}^2(V_3)} = 0.006733$ 。

3.2.4 回收率引入的标准不确定度

牛奶试样的提取、净化是一个复杂的过程, 在空白试样中添加 10 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 的磺胺吡啶、磺胺噻唑和磺胺甲基异恶唑标准工作溶液, 做 6 个平行试样来测定磺胺吡啶、磺胺噻唑和磺胺甲基异恶唑的回收率, 测量结果见表 3。根据回收率平均值(\bar{R})的相对标准偏差 RSD 得到回收率的标准不确定度 $u_{rel}(f_{rec})$ 。

表 2 3 种磺胺类药物的加标回收率测定结果和不确定度计算

Table 2 Recoveries of three sulfonamides at different spike levels and uncertainties

项目	药物名称		
	SP	STZ	SMZ
回收率 R	0.83	0.87	0.92
	0.87	0.89	0.91
	0.85	0.88	0.94
	0.77	0.79	0.89
	0.82	0.83	0.94
	0.85	0.78	0.92
\bar{R}	0.83	0.84	0.92
SD	0.034928	0.014977	0.017888
RSD/%	4.20819	1.78298	1.94435
$u_{rel}(f_{rec})$	0.042082	0.017830	0.019443

3.2.5 最小二乘法拟合的标准工作曲线得到的浓度 C 引入的相对标准不确定度

3.2.5.1 磺胺吡啶、磺胺噻唑和磺胺甲基异恶唑标准

工作溶液配制的相对标准不确定度

在十万分之一的天平上准确称取 0.0105 g 磺胺吡啶、0.0100 g 磺胺噻唑和 0.0122 g 磺胺甲基异恶唑标准物质, 用色谱纯甲醇定容于 100 mL(A 级)容量瓶中, 此储备液的磺胺吡啶、磺胺噻唑和磺胺甲基异恶唑的浓度分别为: 105 mg/L; 100 mg/L; 122 mg/L; 然后用 1 mL 移液器吸取此储备液 1.00 mL 于 100 mL(A 级)容量瓶中, 用色谱纯甲醇定容至 100 mL; 此标准使用液的浓度分别为 1.00 mg/L; 1.05 mg/L; 1.22 mg/L。再用 5 mL 移液器取标准使用液 10.0 mL 于 100 mL(A 级)容量瓶中, 用色谱纯甲醇定容至 100 mL, 此标准使用液的浓度分别为: 0.1000 mg/L; 0.1050 mg/L; 0.1220 mg/L。磺胺类标准工作溶液的浓度为:

$$C = \frac{m \times v_2 \times v_4}{v_1 \times v_3 \times v_5}$$

式中: C 为磺胺类标准工作溶液的浓度(mg/L); m 为磺胺类标准物质的质量(g); v_1 为初次定容体积 100 mL; v_2 为第一次移取储备液的体积 1.0 mL; v_3 为定容体积 100 mL; v_4 为第二次移取标准使用液体积 10.0 mL; v_5 为最终定容体积 100 mL。

度(mg/L); m 为磺胺类标准物质的质量(g); v_1 为初次定容体积 100 mL; v_2 为第一次移取储备液的体积 1.0 mL; v_3 为定容体积 100 mL; v_4 为第二次移取标准使用液体积 10.0 mL; v_5 为最终定容体积 100 mL。

(1) 电子天平校准引入的标准不确定度

由于采用 30 g 内, 十万分之一的电子精确到 0.00001 g 称量标准物质, 因此电子天平校准引入的标准不确定度可以忽略。

(2) 磺胺类标准物质的相对标准不确定度

根据标准物质证书, 磺胺类的标准物质的相对标准不确定度都为: $u_{rel}(m_{标}) = 0.5\% = 0.0050$ 。

(3) 稀释过程引入的相对标准不确定度

根据 GB 196-2006《常用玻璃量器》检定规程的规定, 100 mL(A 级)容量瓶的容量允差为 ± 0.10 mL, 假设为三角分布, 则 100 mL(A 级)容量瓶的标准不确定度为: $u(v_1) = u(v_3) = u(v_4) = 0.10 / \sqrt{6} = 0.0408(\text{mL})$ 。

根据 JJG646-2006《移液器》检定规程的规定, 5000 μL 移液器取用 5000 μL 时的容量允差为 $\pm 0.6\%$, 取矩形分布, 则 5000 μL 移液器引入的标准不确定度为: $u(v_5) = 5000 \times 0.6\% / \sqrt{3} = 17.32(\mu\text{L})$ 。

根据 JJG646-2006《移液器》检定规程的规定, 1000 μL 移液器取用 1000 μL 时的容量允差为 $\pm 1.0\%$, 取矩形分布, 则 1000 μL 移液器引入的标准不确定度为: $u(V_2) = 1000 \times 1.0\% / \sqrt{3} = 5.7733(\mu\text{L})$ 。则磺胺类标准物质溶液配制过程中引入的合成标准不确定度为:

$$u_{rel}(C_{稀}) = \sqrt{u_{rel}^2(m) + \left[\frac{u(v_1)}{v_1}\right]^2 + \left[\frac{u(v_2)}{v_2}\right]^2 + \left[\frac{u(v_3)}{v_3}\right]^2 + \left[\frac{u(v_4)}{v_4}\right]^2 + 2 \times \left[\frac{u(v_5)}{v_5}\right]^2}$$

$$u_{rel}(C_{稀}) = \sqrt{\left[\frac{0.0408}{100}\right]^2 + \left[\frac{5.7733}{1000}\right]^2 + \left[\frac{0.0408}{100}\right]^2 + \left[\frac{0.057733}{100}\right]^2 + 2 \times \left[\frac{17.32}{5000}\right]^2} = 0.00842$$

3.2.5.2 最小二乘法拟合的标准曲线产生的相对标准不确定度

本试验采用磺胺类标准使用液各 6 个浓度点, 分别测定 2 次, 求其峰面积平均值(\bar{A})与相应浓度溶液质量浓度(C)采用最小二乘法拟合标准曲线, 检测结果及线性回归方程见表 3。标准曲线引入的相对标准

不确定度 $u(C) = \frac{S(A)}{b} \sqrt{\frac{1}{P} + \frac{1}{n} + \frac{(C - \bar{C})^2}{S_{cc}}}$, 其中 $S(A)$

为回归直线标准偏差; $S(A) = \sqrt{\frac{\sum_{j=1}^n [A_i - (a + bC_i)]^2}{n - 2}}$;

$$\bar{C}_1 = \frac{\sum_{j=1}^n C_j}{n}; S_{cc} = \sum_{j=1}^n (C_j - \bar{C})^2$$

式中: A_i 为第 i 个质量浓度点测定的响应值(峰面积); $(a + bC_i)$ 为按回归方程计算得出的第 i 个点的响应值, a 为线性回归方程的截距, b 为斜率; n 为标准溶液浓度点 $n=12$; C_i 为第 i 个点的质量浓度的平均值, 结果如表 3 所示。由最小二乘法拟合直线方程计算得到的浓度 C 的相对标准不确定度 $u_{rel}(C_0) = \sqrt{u_{rel}^2(C_{稀}) + u_{rel}^2(C)}$ 。

表 3 3 种磺胺类药物的标准曲线测定结果和不确定度计算
Table 3 Standard curve and uncertainty of determination results of calculation of three sulfonamides

药物名称	质量浓度 $C/(\mu\text{g/L})$	峰面积 A	线性回归方程 $A=a+bC$	相关系数 r	$C_0/(\mu\text{g/L})$	\bar{A}	$u(C_0)/(\mu\text{g/L})$	$u_{rel}(C_0)$
SP	2.10	6910 6930	$A=2700C + 16509$	$r=0.9999$	5.1745	6920	0.20797	0.04106
	5.25	15900 16100				16000		
	10.50	30200 30400				30300		
	21.00	60300 60100				60200		
	31.50	86700 86100				86400		
	52.50	142800 142200				143000		
STZ	2.00	22450 22550	$A=2490C + 16200$	$r=0.9997$	8.8295	22500	0.2745	0.03221
	5.00	29300 29500				29400		
	10.00	41300 41100				41200		
	20.00	65500 65700				65400		
	30.00	88600 89200				88800		
	50.00	142800 141200				142000		
SMZ	2.44	21500 21300	$A=2370C + 14700$	$r=0.9997$	10.3144	21400	0.27258	0.02774
	6.10	30250 30150				30200		
	12.20	44000 43800				43900		
	24.40	73200 73800				73500		
	36.60	105000 94000				99500		
	61.00	160100 159900				160000		

3.3 合成不确定度及检测结果表述

由公式 $u_{rel}(X) = \sqrt{u_{rel}^2(f_{rep}) + u_{rel}^2(m) + u_{rel}^2(V) + u_{rel}^2(f_{rec}) + u_{rel}^2(C)}$ 与 $u(X) = Xu_{rel}(X)$ 计算得到牛奶中磺胺吡啶、磺胺噻唑和磺胺甲基异恶唑的标准不确定度, 取包含因子 $k=2$, 扩展不确定度 $U(X) = 2u(X)$ 表示。则采用液质联用法测定牛奶中磺胺吡啶、磺胺噻唑和磺胺甲基异恶唑, 测量 2 个样品, 取其平均值报告最终检测结果, 见表 4。

表 4 不确定度评定结果

Table 4 Uncertainty evaluation for the determination of three sulfonamides

药物名称	SP	STZ	SMZ
$u_{rel}(X_{rep})$	0.01098	0.01136	0.01427
$u_{rel}(m)$	0.0142	0.0142	0.0142
$u_{rel}(V)$	0.006737	0.006737	0.006737
$u_{rel}(f_{rec})$	0.042082	0.017830	0.019443
$u_{rel}(C)$	0.04106	0.03221	0.02774
$u_{rel}(X)$	0.0618	0.04161	0.03998
X	5.0894	8.6217	10.1462
$u(X)$	0.3145	0.3587	0.4056
$U(X)$	0.6196	0.7174	0.8112
检测结果/($\mu\text{g}/\text{kg}$)	5.08 \pm 0.62	8.62 \pm 0.71	10.15 \pm 0.81

本实验室对奶站的原料乳和市售不同厂家的巴氏灭菌乳、灭菌乳、调制乳、发酵乳共 40 份样品的 3 种磺胺类药物残留进行测定。本评定方法充分考虑了牛奶中磺胺吡啶、磺胺噻唑和磺胺甲基异恶唑含量测定不确定度的来源, 主要是涉及(1) 测量人员、环境方法及其检测仪器等的影响通过重复性得以体现; (2) 标准工作溶液配制引入的不确定度; (3) 试样称量引入的不确定度; (4) 试样前处理中提取、净化、浓缩和定容过程中体积引入的不确定度; 液质联用仪产生的不确定度可以通过测量的牛奶试样的回收率和标准曲线拟合不确定度以及测量试样的重复性来反映。(5) 由最小二乘法拟合标准曲线测定的试样液浓度引入的不确定度。且对各个分量进行了量化, 全面且可靠。适用于不同厂家不同品种的牛奶中 3 种磺胺类药物残留的不确定度的分析和评定。

4 结论

通过对高效液相色谱-串联质谱法测定牛奶中磺胺吡啶、磺胺噻唑和磺胺甲基异恶唑含量的不确定来源进行分析, 并评定各不确定度分量, 得出该方法的扩展不确定度分别为 0.62 $\mu\text{g}/\text{kg}$, 0.71 $\mu\text{g}/\text{kg}$, 0.82 $\mu\text{g}/\text{kg}$, 取包含因子 $k=2$ 。同时可以看出, 采用液质联用法测定牛奶中磺胺类药物残留的不确定来源主要是最小二乘法拟合的标准曲线测定浓度、测量的重复性和回收率, 其中标准曲线测定浓度影响最大。因此, 实际操作过程中可通过增加混合标准系列工作液的测定次数、优化样品的前处理方法、增加平行样品测定、选择精度较高的玻璃量器来减少引入的不确定度, 保证实验具有良好的重复性和标准曲线具有良好的线性。

参考文献

- [1] 鲁晓翠, 侯玉泽, 邓瑞广, 等. 磺胺类药物在动物性食品中的残留与检测[J]. 动物医学进展, 2007, 28(2): 70-74.
Lu XC, Hou YZ, Deng RG *et al.* Sulfonamide residues and detection in animal food [J]. *Progr Vet Med*, 2007, 28(2): 70-74.
- [2] 段振娟, 张鸿雁, 王硕. 动物性食品中磺胺类药物残留分析研究进展[J]. 食品研究与开发, 2007, 28(6): 149-152.
Duan ZJ, Zhang HY, Wang S. Process for analysis of sulphonamide residues in edible animal products [J]. *Food Res and Develop*, 2007, 28(6): 149-152.
- [3] 任雪冬, 刘成雁, 林雪征, 等. 液相色谱-串联质谱法测定畜禽肉中十种磺胺类兽药残留的不确定度评定[J]. 中国兽药杂志, 2011, 45(5): 20-25.
Ren XD, Liu CY, Lin XZ, *et al.* Uncertainty evaluation in the determination of ten kinds of sulfanilamide residues in poultry by liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. *Chin J Vet Drug*, 2011, 45(5): 20-25.
- [4] 洪武兴, 罗聪亮, 刘益锋, 等. 液质联用法罗非鱼中磺胺嘧啶不确定度的评定[J]. 现代食品科技, 2009, 25(11): 1369-1371.
Hong WX, Luo CL, Liu YF, *et al.* Evaluation of uncertainty for detection of sulfadiazine residue in tilapia by HPLC-MS/MS [J]. *Mod Food Sci and Technol*, 2009, 25(11): 1369-1371.
- [5] 陆连寿, 张秀英. 高效液相色谱法测定磺胺间甲氧嘧啶含量的不确定度评定[J]. 中国兽药杂志, 2008, 42(11): 30-33.
Lu LS, Zhang XY. Evaluation of the uncertainty of measurement for determination of sulfamonomethine by HPLC [J]. *Chin J Vet Drug*, 2008, 42(11): 30-33.
- [6] JJF 1059.1-2012 测量不确定度评定与表示[S].
JJF 1059.1-2012 Evaluation and Expression of Uncertainty

- measurement [S].
- [7] GB/T 22966-2008 牛奶和奶粉中 16 种磺胺类药物残留量的测定 液相色谱-串联质谱法[S].
GB/T 22966-2008 Determination of sixteen sulfonamide residues in milk and milk powder LC-MS-MS method [S].
- [8] JJG 196-2006 常用玻璃量器[S].
JJG 196-2006 Working Glass Container [S].
- [9] CNAS-GL06-2006 化学分析中不确定度的评估指南[S].
CNAS-GL06-2006 Guidance on Evaluating the Uncertainty in Chemical Analysis [S].
- [10] 魏博娟, 吴成业, 钱卓真. 液质联用法测定水产品中喹诺酮类药物残留量的不确定度评定[J]. 南方水产科学, 2012, 8(3): 59-64.
Wei BJ, Wu CY, Qian ZZ. Evaluation of uncertainty for detection of quinolones residues in aquatic products by HPLC-MS/MS [J]. South Chin Fish Sci, 2012, 8(3): 59-64.
- [11] 曹爱英, 张园, 赵春晖, 等. 液质联用法测定水产品中泰乐霉素含量不确定度评价[J]. 中国渔业质量与标准, 2013, 4: 21-24.
Cao AY, Zhang Y, Zhao CH, *et al*. Evaluation of uncertainty for determination content of aquatic products Sino Thai Lemildew liquid chromatography-mass spectrometry [J]. Chin Fish Qual and Stan, 2013, 4: 21-24.
- [12] 张厚森, 武晓静, 王玮, 等. 高效液相色谱串联质谱法测定猪肉中磺胺多辛的不确定度评定[J]. 食品工程, 2012, 3: 55-58.
Zhang HS, Wu XJ, Wang W, *et al*. Evaluation of the uncertainty of sulfadoxine in pork by chromatography tandem mass spectrometry [J]. Food engin, 2012, 3: 55-58.
- [13] 赵健亚, 陈丹, 谢怀根, 等. 高效液相色谱法测定鸡肉中磺胺类药物残留的不确定度评定[J]. 食品科学, 2013, 34(10): 144-147.
Zhao JY, Chen D, Xie HG, *et al*. Evaluation uncertainty for determination of sulfonamide residues in chicken by high performance liquid chromatography [J]. Food Sci, 2013, 34(10): 144-147.

(责任编辑: 白洪健)

作者简介



张 燕, 工程师, 主要研究方向为食品安全检测。
E-mail: shiyan1230@163.com