

液相色谱-串联质谱法同时测定蜂蜜中 17 种磺胺类药物的残留量

徐慧, 陈燕, 王柯, 刘畅*

(上海市食品药品检验所, 上海 201203)

摘要: **目的** 建立液相色谱-串联质谱法(liquid chromatography-tandem mass spectrometry, LC-MS/MS)同时测定蜂蜜中的 17 种磺胺类药物。**方法** 蜂蜜样品经 0.1 mol/L 盐酸溶液溶解, 经正己烷除脂、固相萃取柱净化, 采用 CAPCELL PAK C₁₈ 色谱柱分离; 质谱采用电喷雾正离子电离模式(electrospray ionization, ESI+)和多反应扫描监测模式(multi reaction monitoring, MRM)进行测定, 以内标法定量。**结果** 17 种磺胺类药物的检出限为 0.1~1.0 μg/kg; 在 0.5~50 μg/kg 范围内线性关系良好, 相关系数 $r > 0.99$; 回收率在 82.40~100.6% 之间, 相对标准偏差为 1.0~6.0% ($n=6$)。**结论** 本方法灵敏度高、准确性好, 可适用于蜂蜜中多种磺胺类药物残留的检测。

关键词: 磺胺类药物; 液相色谱-串联质谱法; 固相萃取; 蜂蜜

Simultaneous determination of 17 kinds of sulfonamides in honey by liquid chromatography-tandem mass spectrometry

XU Hui, CHEN Yan, WANG Ke, LIU Chang*

(Shanghai Institute of Food and Drug Control, Shanghai 201203, China)

ABSTRACT: Objective To establish a method for the simultaneous determination of 17 kinds of sulfonamides in honey by liquid chromatography-tandem mass spectrometry (LC-MS/MS). **Methods** Honey was dissolved with 0.1 mol/L hydrochloric acid, removed fat with n-hexane and cleaned up with solid phase extraction column, and then separated by CAPCELL PAK C₁₈ column. Mass used electrospray ionization positive ionization mode (ESI+) and multiple reaction monitoring (MRM) for determination with internal standard method for quantification. **Results** The limits of detection of 17 kinds of sulfonamides were 0.1~1.0 μg/kg. The method showed a good linearity over the range of 0.5~50 μg/kg with $r > 0.99$. The average recoveries were in the range of 82.40~100.6%, while the relative standard deviations (RSD) were 1.0~6.0% ($n=6$). **Conclusion** The established method is highly sensitive and accurate, which is suitable for the detection of sulfonamides in honey.

KEY WORDS: sulfonamides; liquid chromatography-tandem mass spectrometry; solid phase extraction; honey

1 引言

磺胺类药物(sulfonamides)是人工合成的一类具有

对氨基苯磺酰胺结构的抗菌药物的总称, 具有抗菌谱广、性质稳定、疗效强、价廉及使用方便等特点, 因此被广泛应用于畜牧养殖业中^[1-5]。在养蜂业中, 磺胺类药

*通讯作者: 刘畅, 副主任药师, 主要研究方向为食品检测与食品安全。E-mail: cible@sina.cn

*Corresponding author: LIU Chang, Associate Chief Pharmacist, Shanghai Institute for Food and Drug Control, Shanghai 201203, China. E-mail: cible@sina.cn

物可以防治蜂病、降低蜜蜂死亡率,并且能够提高蜂蜜产能^[6]。但其在动物体内代谢缓慢,易造成积蓄和残留,过量会对人体造成潜在的危害,特别是机体对抗生素的耐药性^[7-11]。

目前,大多数国家对食品中磺胺类药物的最大残留限量进行了规定,一般为 10~100 $\mu\text{g}/\text{kg}$,我国规定动物源性食品中磺胺类药物残留的总量不得大于 100 $\mu\text{g}/\text{kg}$ ^[12-15]。目前,国内外报道的检测动物性食品中磺胺类药物残留的检测方法主要有酶联免疫法、液相色谱法、高效毛细管电泳法、气相色谱-质谱法以及液相色谱-串联质谱(liquid chromatography-tandem mass spectrometry, LC-MS/MS)法等,LC-MS/MS 联用技术,结合了液相色谱的高分辨率能力和质谱提供结构信息的功能,具有灵敏度高、选择性强等优势。因此,本研究利用 LC-MS/MS 联用技术,建立一种快速高效、灵敏度高、准确性好,且适用于蜂蜜中多种残留磺胺类药物的检测方法。

2 材料与amp;方法

2.1 仪器与amp;设备

Waters ACQUITY UPLC 超高效液相色谱仪(美国 Waters 公司); API 5500 质谱仪(美国 AB Sciex 公司); MS3 型漩涡振荡器(德国 IKA 公司); R40 型高速离心机(美国 Thermo 公司); 多位氮气浓缩仪(德国 Organomation 公司); Milli-Q 超纯水制备系统(美国 Milli-pore 公司); Oasis MCX 固相萃取小柱(150 mg, 6 mL)(美国 Waters 公司)。

2.2 材料与amp;试剂

空白蜂蜜样品: 森蜂园蜂蜜(上海森蜂园蜂业有限公司)。

磺胺甲氧嘧啶(批号: SZBB137XV; 纯度: 99.7%)、磺胺间甲氧嘧啶(批号: SZBD042XV; 纯度: 95.6%)、磺胺喹噁啉(批号: SZBD227XV; 纯度: 98.8%)、磺胺间二甲氧嘧啶(磺胺地索辛)(批号: SZBB028XV; 纯度: 99.9%)、磺胺甲基嘧啶(批号: SZBB322XV; 纯度: 98.8%)、磺胺甲噻二唑(批号: SZBC061XV; 纯度: 98.9%)和磺胺(二甲)异恶唑(批号: SZBC109XV; 纯度: 99.9%)标准品购自美国 Sigma 公司; 磺胺邻二甲氧嘧啶(磺胺多辛)(批号: 2.0; 纯度: 100%)、磺胺嘧啶(批号: 1.3; 纯度: 100%)、磺胺脒(批号: 2.0; 纯度: 100%)、磺胺噻唑(批号: 1.2; 纯度: 100%)和磺胺(批号: 2.0; 纯度: 100%)标准品购自欧洲药典(European Pharmacopoeia, EP); 磺胺吡啶(批号: 40108; 纯度: 99.0%)和磺胺二甲基恶唑(批号: 30308; 纯度: 98.0%)标准品购自德国 Dr.Ehrenstorfer 公司; 磺胺二甲嘧啶(批号: 100411-200501; 纯度: 100%)和磺胺甲噻唑(批号: 100025-200904; 纯度: 99.8%)标准品购自中国食品药品检定研究院; 磺胺氯噻嗪(批号: G0J109; 纯度: 98.6%)标准品购自美国药典(United

States Pharmacopoeia, USP); 磺胺-13C6(批号: 090319; 纯度: 99.9%)和磺胺(二甲)异恶唑-13C6(批号: 221542; 纯度: 99.9%)购自德国 Witega 公司; 磺胺二甲嘧啶-D4(批号: 10-SWZ-34-2; 纯度: 98.0%)、磺胺间甲氧嘧啶-D4(批号: 1-ATH-76-3; 纯度: 98.0%)和磺胺甲基嘧啶-D4(批号: 1-KGD-17-1; 纯度: 98.0%)购自加拿大多伦多研究化学(Toronto Research Chemicals, TRC)公司; 磺胺甲噻唑-13C6(批号: SZBE016XV; 纯度: 99.5%)、磺胺地索辛-D6(批号: SZBD063XV; 纯度: 99.4%)、磺胺喹噁啉-13C6(批号: SZBD164XV; 纯度: 99.6%)、磺胺氯噻嗪-13C6(批号: SZBE045XV; 纯度: 99.2%)、磺胺吡啶-13C6(批号: SZBE045XV; 纯度: 99.8%)、磺胺多辛-D3(批号: SZBD105XV; 纯度: 99.3%)、磺胺甲氧嘧啶-D3(批号: SZBE113XV; 纯度: 99.8%)、磺胺噻唑-13C6(批号: SZBC263XV; 纯度: 99.5%)和磺胺嘧啶-D4(批号: SZBE084XV; 纯度: 99.4%)购自美国 Sigma 公司; 磺胺甲噻二唑-D4(批号: 40821AC; 纯度: 94.5%)购自德国 Dr.Ehrenstorfer 公司。

甲醇(HPLC 级)、乙腈(HPLC 级)和甲酸(HPLC 级)均购自德国 Merck 公司; 醋酸铵(HPLC 级)购自美国 Sigma 公司; 正己烷(分析纯)、盐酸(分析纯)和氨水(分析纯)均购自国药集团化学试剂有限公司; 去离子水由 Milli-Q 超纯水系统(美国 MILLIPORE 公司)制得。

2.3 实验方法

2.3.1 标准品溶液的配制

标准储备液的配制: 分别精密称取各磺胺类标准物质约 10 mg, 分别置于 20 mL 容量瓶中, 用甲醇溶解并定容至刻度, 制成浓度为 500 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 的溶液。

混合标准中间溶液的配制: 分别精密量取各磺胺类标准储备液适量, 用水稀释制成各化合物浓度均为 1 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 的溶液。

内标储备液的配制: 分别精密称取各磺胺类同位素内标约 5 mg, 分别置于 50 mL 容量瓶中, 用甲醇溶解并定容至刻度, 摇匀, 制成浓度为 0.1 mg/mL 的溶液。

混合内标使用溶液的配制: 分别精密量取上述内标储备液各 0.5 mL, 置同一 50 mL 容量瓶中, 用水定容至刻度, 摇匀, 浓度为 1 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 。

2.3.2 样品前处理

提取: 准确称取 1.0 g(精确至 0.01 g)蜂蜜试样于 50 mL 离心管中, 精密加入混合内标使用溶液 50 μL , 0.1 mol/L 盐酸 5 mL, 涡旋振荡混匀。加入 5 mL 正己烷, 手动缓慢振摇 20 次, 以 4600 r/min 离心 5 min 后除去上层正己烷层, 取下层溶液备用。

净化: 将 MCX 固相萃取柱依次用 3 mL 甲醇、3 mL 盐酸(0.1 mol/L)活化。将上述备用液转移至固相萃取柱上, 在重力作用下流出, 弃去流出液。用 2 mL 0.1 mol/L 盐酸、

2 mL 水-甲醇-乙腈(55:25:20, V:V:V)溶液淋洗固相萃取柱, 在负压下干燥 10 min, 用 2 mL 水-甲醇-乙腈-氨水(25:35:35:5, V:V:V:V)洗脱固相萃取柱, 收集洗脱液, 于 45 °C 水浴中氮气吹至约 0.5 mL, 用水定容至 1.0 mL, 涡旋振荡溶解残渣, 过 0.22 μm 滤膜, 滤液供液相色谱-串联质谱测定。

2.3.3 液相色谱条件

色谱柱: CAPCELL PAK C₁₈ 柱(250 mm×4.6 mm, 5.0 μm); 流动相: A 相为乙腈-甲醇(8:2, V:V), B 相为 0.1% 甲酸水溶液(含 5.0 mmol/L 醋酸铵); 梯度洗脱程序: 0~3.0 min, 3% A; 3.0~6.0 min, 3% A 线性增加至 12% A; 6.0~9.0 min, A 从 12% 线性增加至 50%; 9.0~13.0 min, 50% A; 13.1~16.0 min, 3% A。流速: 800 μL/min; 进样量: 10 μL; 柱温: 35 °C。

2.3.4 质谱条件

离子源: 电喷雾电离离子源(electrospray ionization, ESI); 扫描方式: 正离子扫描; 喷雾电压: 5.5 kV; 毛细管温度: 500 °C; 雾化气压力(GS1): 50 psi; 辅助气压力(GS2): 50 psi; 气帘气压力(air curtain gas pressure, CUR): 35 psi; 碰撞气压力(collision gas pressure, CAD): 10 psi; 检测方式: 多反应监测(multi reaction monitoring, MRM)扫描模式。

3 结果与分析

3.1 色谱条件的优化

因磺胺类药物为碱性化合物, 故甲酸可使其以离子状态存在, 提高质谱信号响应值, 乙酸铵可改善色谱峰形,

经综合考虑, 本方法采用乙腈-甲醇-含 5 mmol/L 乙酸铵的 0.1% 甲酸溶液作为流动相。在磺胺类化合物中, 磺胺多辛与磺胺地索辛、磺胺甲氧吡嗪与磺胺间甲氧嘧啶、磺胺二甲基恶唑与磺胺(二甲)异恶唑为同分异构体, 通过比较不同色谱柱中 17 种化合物峰形及分离及情况, 最终选用 CAPCELL PAK C₁₈ 柱(250 mm×4.6 mm, 5.0 μm), 该柱可较好地分离各对同分异构体, 色谱图见图 1~3。

3.2 质谱条件的优化

碱性的磺胺类化合物适合采用电喷雾离子源进行分析。将 1 μg/mL 的各磺胺类化合物的标准溶液以流动注射的方式在正离子模式下进行母离子扫描, 确定分子离子, 然后对其子离子进行全扫描, 优化碰撞能量等参数, 得到适用于磺胺类化合物的最佳质谱条件, 各化合物质谱检测参数见表 1。

3.3 方法的线性范围和检出限

取空白蜂蜜样品, 分别精密加入混合内标使用溶液 50 μL 及适量混合标准中间溶液, 使各化合物浓度为 0.5~50 μg/kg, 按“2.3.2”中方法进行前处理, 得到系列线性标准溶液, 在“2.3.3”及“2.3.4”的仪器条件下进行 LC-MS/MS 分析, 建立标准曲线。通过逐渐降低样品中所添加的标准溶液的浓度, 当各化合物信噪比(S/N)为 3 时, 其质量浓度定义为方法检出限(limit of detection, LOD)。各化合物线性方程、相关系数、检出限结果见表 2。

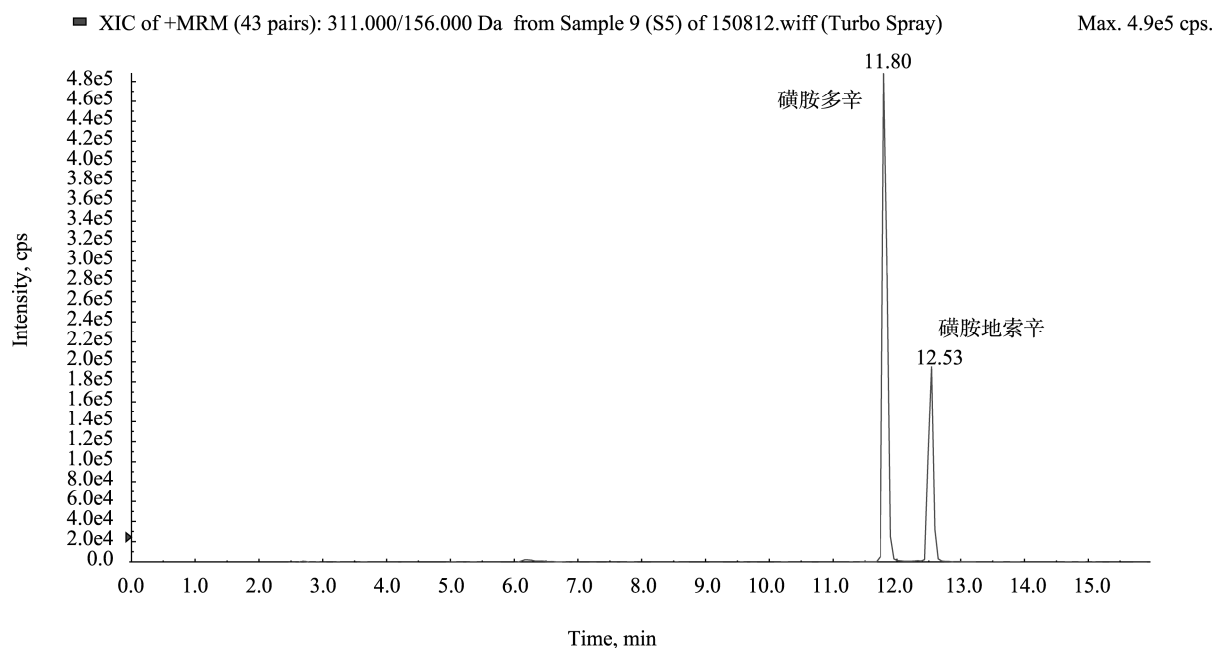


图 1 磺胺多辛和磺胺地索辛色谱图

Fig.1 Chromatogram of sulfadoxine and sulfadimethoxine

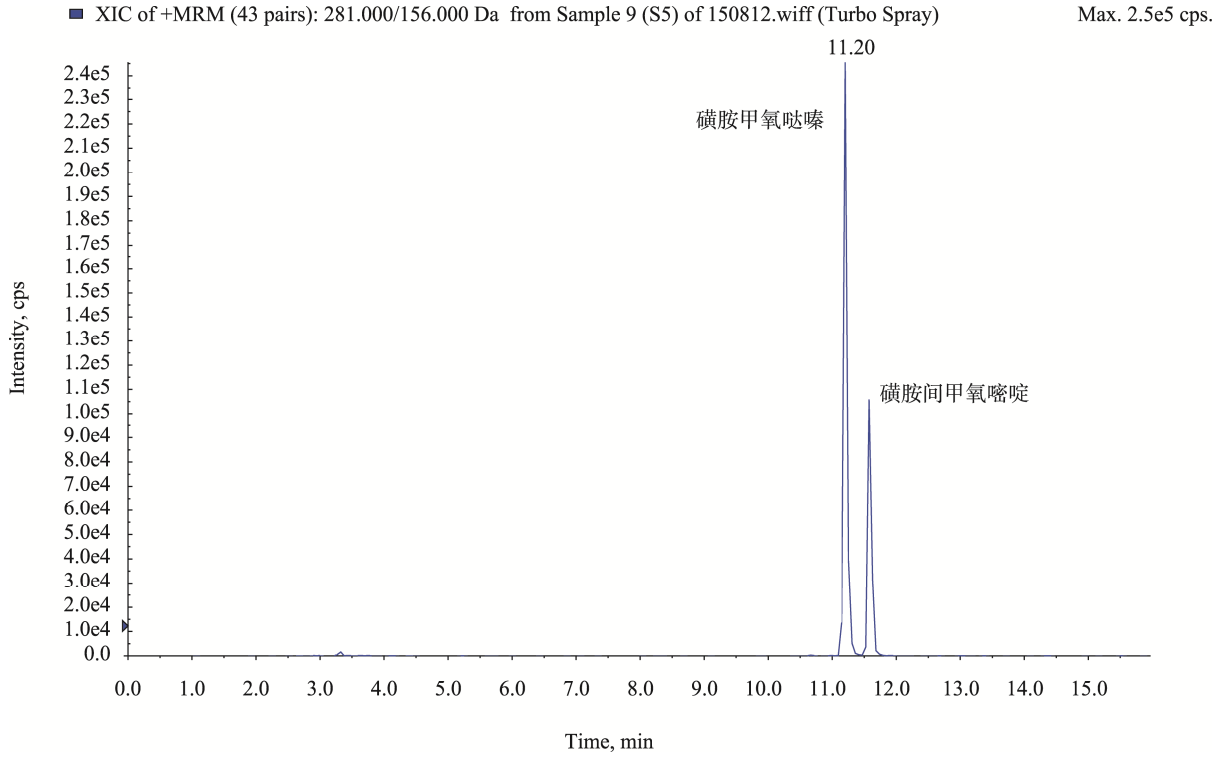


图 2 磺胺甲氧吡嗪和磺胺间甲氧嘧啶色谱图
Fig.2 Chromatogram of sulfamethoxypyridazine and sulfamonomethoxine

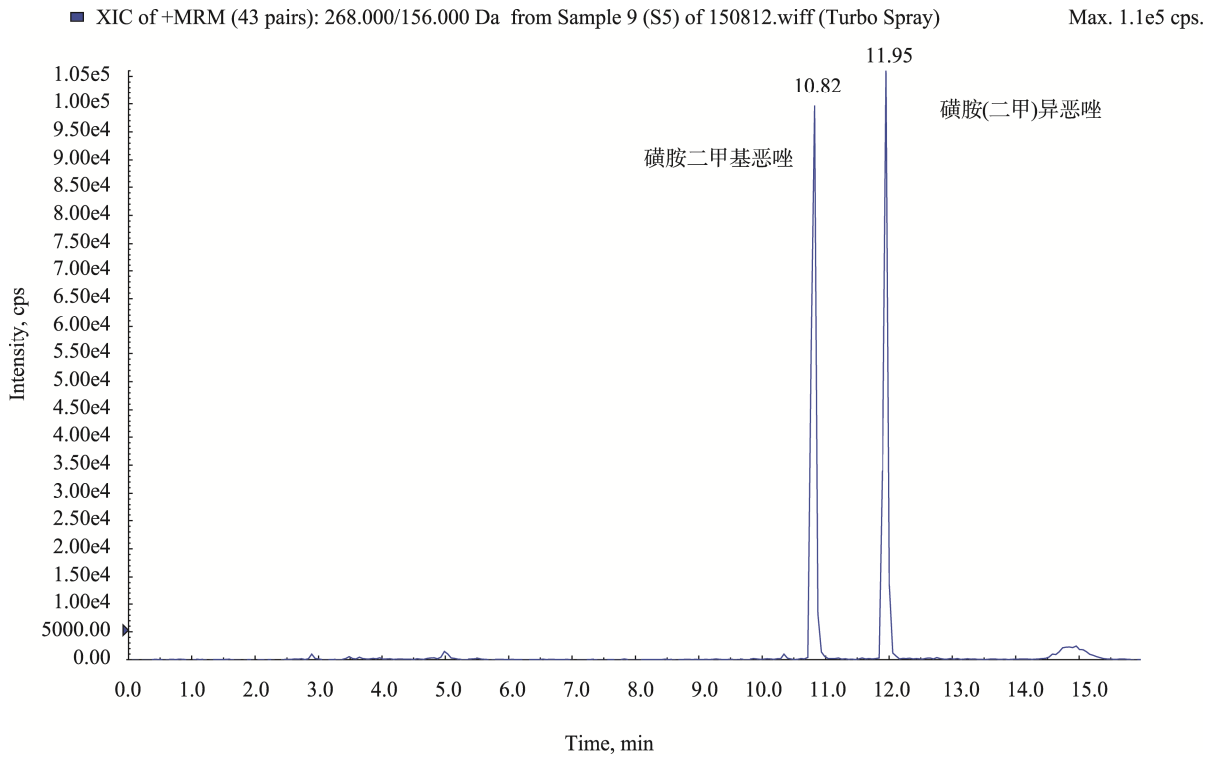


图 3 磺胺二甲基恶唑和磺胺(二甲)异恶唑色谱图
Fig.3 Chromatogram of sulfamoxole and sulfisoxazole

表 1 各磺胺类化合物的质谱参数
Table 1 Mass parameters of sulfonamides

化合物	母离子(m/z)	子离子(m/z)	去簇电压(V)	入口电压(V)	碰撞能量(eV)	碰撞室出口电压(V)
磺胺氯哒嗪	285.0	156.0	40	10	21	30
		108.1			32	30
磺胺邻二甲氧嘧啶 (磺胺多辛)	311.0	156.0	60	10	24	30
		108.0			38	30
磺胺甲氧哒嗪	281.0	156.0	60	10	26	30
		126.0			33	30
磺胺吡啶	250.0	156.0	120	9	22	10
		108.0			34	10
磺胺嘧啶	251.0	156.1	120	9	21	11
		108.1			34	7
磺胺脒	215.0	156.0	60	9	20	10
		108.0			30	10
磺胺间甲氧嘧啶	281.0	156.0	60	10	26	30
		126.0			33	30
磺胺喹噁啉	301.0	156.0	60	10	23	30
		108.0			40	30
磺胺间二甲氧嘧啶 (磺胺地索辛)	311.0	156.0	60	10	24	30
		108.0			38	30
磺胺二甲基恶唑	268.0	156.0	120	9	21	10
		108.0			34	10
磺胺噻唑	255.9	156.0	120	9	21	9
		108.0			31	9
磺胺二甲嘧啶	279.0	186.0	120	8	24	12
		156.0			26	10
磺胺甲噻二唑	270.9	156.1	65	11	21	7
		108.1			35	10
磺胺	172.9	108.0	80	8	21	8
		65.1			40	8
磺胺(二甲)异恶唑	268.0	156.0	120	9	21	10
		113.1			25	10
磺胺甲噁唑	254.0	156.0	120	10	22	10
		108.1			32	10
磺胺甲基嘧啶	264.9	156.1	130	9	24	12
		172.0			24	12
磺胺氯哒嗪-13C6	291.0	162.1	198	10	26	7
磺胺多辛-D3	314.1	155.9	80	7	25	15

续表 1

化合物	母离子(m/z)	子离子(m/z)	去簇电压(V)	入口电压(V)	碰撞能量(eV)	碰撞室出口电压(V)
磺胺甲氧哒嗪-D3	284.1	108.2	80	7	36	15
磺胺吡啶-13C6	256.0	162.0	80	7	23	15
磺胺嘧啶-D4	255.0	160.0	88	9	22	10
磺胺间甲氧嘧啶-D4	285.2	159.9	142	7	25	36
磺胺喹噁啉-13C6	307.3	162.1	116	13	25	20
磺胺地索辛-D6	317.1	162.2	168	10	31	14
磺胺噻唑-13C6	262.0	162.0	80	7	21	15
磺胺二甲嘧啶-D4	283.2	186.3	100	8	12	11
磺胺甲噻二唑-D4	275.0	159.9	80	7	20	15
磺胺-13C6	179.0	114.0	80	7	23	15
磺胺(二甲)异恶唑-13C6	274.3	162.0	80	7	20	15
磺胺甲噁唑-13C6	260.1	162.1	72	9	22	9
磺胺甲基嘧啶-D4	269.3	172.1	160	10	28	19

表 2 各化合物的线性方程、相关系数和检出限

Table 2 Linear equation, correlation coefficient and limit of detection

化合物	线性方程	相关系数(r)	LOD($\mu\text{g}/\text{kg}$)
磺胺氯哒嗪	$Y=1.96\times 10^4 X-9.94\times 10^3$	0.9918	0.5
磺胺邻二甲氧嘧啶(磺胺多辛)	$Y=1.13\times 10^5 X-2.9\times 10^4$	0.9988	0.1
磺胺甲氧哒嗪	$Y=4.02\times 10^4 X+2.09\times 10^4$	0.9990	0.25
磺胺吡啶	$Y=5.45\times 10^4 X-2.94\times 10^4$	0.9958	0.25
磺胺嘧啶	$Y=3.2\times 10^4 X+3.87\times 10^3$	0.9979	0.3
磺胺脒	$Y=1.05\times 10^4 X-472$	0.9966	1
磺胺间甲氧嘧啶	$Y=1.67\times 10^4 X-3.58\times 10^3$	0.9959	0.5
磺胺喹噁啉	$Y=2.92\times 10^4 X+9.77\times 10^3$	0.9967	0.5
磺胺间二甲氧嘧啶(磺胺地索辛)	$Y=4.87\times 10^4 X+5.35\times 10^3$	0.9978	0.25
磺胺二甲基恶唑	$Y=2.4\times 10^4 X-4.44\times 10^4$	0.9976	0.5
磺胺噻唑	$Y=2.44\times 10^4 X-576$	0.9998	0.3
磺胺二甲嘧啶	$Y=7.96\times 10^4 X+2.59\times 10^4$	0.9984	0.2
磺胺甲噻二唑	$Y=2.59\times 10^4 X-1.02\times 10^3$	0.9973	0.3
磺胺	$Y=688X+366$	0.9981	1
磺胺(二甲)异恶唑	$Y=2.54\times 10^4 X-3.03\times 10^4$	0.9938	0.5
磺胺甲噁唑	$Y=2.61\times 10^4 X-3.29\times 10^5$	0.9960	0.1
磺胺甲基嘧啶	$Y=4.29\times 10^4 X-1.76\times 10^3$	0.9973	0.25

3.4 方法的回收率和精密度

空白蜂蜜中添加 3 种不同浓度的标准溶液, 按“2.3.2~2.3.4”所述方法进行前处理及测定, 每个加标水平平行

测定 6 次, 结果见表 3。结果表明, 3 种不同浓度水平的加标回收率在 82.40~100.6%之间, 相对标准偏差(relative standard deviation, RSD)为 1.0~6.0%, 说明方法的回收率好、精密度高。

表 3 方法的回收率和精密度($n=6$)
Table 3 Recovery and precision of the method ($n=6$)

化合物	加标量 ($\mu\text{g}/\text{kg}$)	平均回收率(%)	RSD (%)	化合物	加标量($\mu\text{g}/\text{kg}$)	平均回收率 (%)	RSD(%)
磺胺氯哒嗪	0.5	92.04	1.1	磺胺二甲基恶唑	0.5	90.17	3.4
	5	93.34			5	96.35	
	50	91.32			50	94.28	
磺胺邻二甲氧嘧啶 (磺胺多辛)	0.5	88.64	2.2	磺胺噻唑	0.5	96.56	1.7
	5	90.71			5	93.39	
	50	86.74			50	94.48	
磺胺甲氧哒嗪	0.5	89.32	3.2	磺胺二甲嘧啶	0.5	82.40	1.8
	5	98.38			5	85.35	
	50	92.55			50	84.40	
磺胺吡啶	0.5	90.91	1.5	磺胺甲噻二唑	0.5	92.56	2.4
	5	93.74			5	96.77	
	50	92.49			50	96.19	
磺胺嘧啶	0.5	89.94	4.8	磺胺	0.5	89.46	3.1
	5	95.30			5	95.21	
	50	99.02			50	93.18	
磺胺脒	0.5	85.53	2.6	磺胺(二甲)异恶唑	0.5	94.07	1.0
	5	88.32			5	92.66	
	50	83.83			50	92.31	
磺胺间甲氧嘧啶	0.5	91.32	5.1	磺胺甲噻唑	0.5	89.81	5.3
	5	100.6			5	95.98	
	50	93.34			50	99.74	
磺胺喹噁啉	0.5	93.34	3.9	磺胺甲基嘧啶	0.5	93.12	1.4
	5	95.22			5	95.60	
	50	88.26			50	93.43	
磺胺间二甲氧嘧啶 (磺胺地索辛)	0.5	92.53	6.0				
	5	99.58					
	50	88.52					

3.5 方法的应用

本研究将所建立的方法应用于英国 FAPAS(Food Analysis Performance Assessment Scheme)分析实验室组织的能力验证中,对蜂蜜中多种磺胺类药物进行筛查测定,共筛查出样品中含有 4 种磺胺类化合物,分别为磺胺嘧啶 81.4 $\mu\text{g}/\text{kg}$,磺胺甲噻唑 106.5 $\mu\text{g}/\text{kg}$,磺胺氯哒嗪 49.7 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 和磺胺地索辛 7.86 $\mu\text{g}/\text{kg}$, $|Z| < 2$,结果见表 4。结果表明,本方法灵敏度高且准确性好,适用于蜂蜜中多种磺胺类药物的检测,能够满足常规样品检测需求及国际实验室能力验证的要求。

表 4 FAPAS 结果
Table 4 Result of FAPAS

化合物	本实验室测定结果 ($\mu\text{g}/\text{kg}$)	统计中值 (%)	Z 值
磺胺嘧啶	81.4	92.1	-0.5
磺胺甲噻唑	106.5	116.4	-0.4
磺胺氯哒嗪	49.7	63.9	-1.0
磺胺地索辛	7.86	9.04	-0.6

4 结 论

本文建立了蜂蜜中 17 种磺胺类药物的液相色谱-串联质谱测定方法。样品经盐酸溶液溶解, 正己烷除脂, 固相萃取柱净化、浓缩后, 采用液相色谱-串联质谱法在正离子模式下检测。本方法操作简单、灵敏度高且准确性好, 适用于蜂蜜中多种磺胺类药物的检测。

参考文献

- [1] 赵鹏, 刘鑫, 孙希彦, 等. HPLC-MS/MS 法测定水产品中 14 种磺胺类药物[J]. 食品研究与开发, 2013, 34(23): 80-83.
Zhao P, Liu X, Sun XY, *et al.* Determination of 12 Kinds of Sulfonamide in Aquatic Products by HPLC-MS/MS [J]. Food Res Dev, 2013, 34(23): 80-83.
- [2] 程国栋, 吴小慧, 金珠, 等. 超高效液相色谱-串联质谱法测定调制乳中 3 种磺胺类药物残留[J]. 色谱, 2015, 33(08): 892-896.
Cheng GD, Wu XH, Jin Z, *et al.* Simultaneous determination of three sulfonamide residues in modified milk by ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Chin J Chromatogr, 2015, 33(08): 892-896.
- [3] 贡松松, 顾欣, 曹慧, 等. 超高效液相色谱-四极杆飞行时间质谱法快速筛查生鲜牛乳中的 14 种磺胺类药物[J]. 分析测试学报, 2014, 33(12): 1342-1348.
Gong SS, Gu X, Cao H, *et al.* Rapid Screening of 14 sulfonamides in raw milk by ultra performance liquid chromatography-quadrupole time-of-flight mass spectrometry [J]. J Instrum Anal, 2014, 33(12): 1342-1348.
- [4] 刘洪斌, 姚喜梅, 蔡英华, 等. UPLC-MS/MS 检测鸡蛋中 16 种磺胺类药物残留[J]. 分析实验室, 2015, 34(10): 1141-1144.
Liu HB, Yao XM, Cai YH, *et al.* Determination of 16 Kinds of Sulfonamide in eggs by UPLC-MS/MS [J]. Chin J Anal Lab, 2015, 34(10): 1141-1144.
- [5] 何强, 孔祥虹, 李建华, 等. 超高效液相色谱-串联质谱法同时测定蜂蜜中硝基咪唑类、磺胺类、喹诺酮类兽药残留[J]. 分析实验室, 2010, 29(08): 61-65.
He Q, Kong XH, Li JH, *et al.* Simultaneous determination of nitroimidazoles, sulfonamides and quinolones residues in honey by ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Chin J Anal Lab, 2010, 29(08): 61-65.
- [6] 盛雪飞, 李小平, 姚珊珊, 等. 超快速液相色谱-串联质谱联用法测定蜂蜜中 20 种痕量磺胺类药物残留研究[J]. 中国卫生检验杂志, 2010, 20(11): 2690-2694, 2697.
Sheng XF, Li XP, Yao SS, *et al.* Simultaneous determination of twenty trace sulfonamides residues in honey by ultra-fast liquid chromatography coupled with andem mass spectrometry [J]. Chin J Health Lab Technol, 2010, 20(11): 2690-2694, 2697.
- [7] 吕斌. 蜂王浆中 9 种磺胺类药物残留测定方法研究[J]. 食品研究与开发, 2015, 36(22): 131-133.
Lu B. Research of determination of nine sulfonamides residue in royal jelly [J]. Food Res Dev, 2015, 36(22): 131-133.
- [8] 许旭, 耿丹丹, 肖远灿, 等. 改良 QuEChERS/HPLC-光化学在线衍生荧光检测法测定猪肉中 18 种磺胺类药物残留量[J]. 分析测试学报, 2015, 34(07): 807-812.
Xu X, Geng DD, Xiao YC, *et al.* Determination of 18 sulfonamide residues in pork by modified quechers/hplc with online photochemical derivatization and fluorescence detection [J]. J Instrum Anal, 2015, 34(07): 807-812.
- [9] 高小龙, 赵海福. HPLC 法测定猪肉中磺胺类药物残留[J]. 中兽医医药杂志, 2013, (06): 58-61.
Gao XL, Zhao HF. Determination of sulfonamide residues in pork by HPLC [J]. J Tradit Chin Vet Med, 2013, (06): 58-61.
- [10] 董琴芳. 动物性食品中 14 种磺胺类药物残留的同步测定液相紫外法[J]. 世界最新医学信息文摘, 2015, 15(45): 148.
Dong QF. Simultaneous determination of 14 kinds of residues in animal foods by liquid phase ultraviolet method [J]. World Latest Med Inf, 2015, 15(45): 148.
- [11] 张元, 李伟青, 周伟娥, 等. 食品中磺胺类药物前处理及检测方法研究进展[J]. 食品科学, 2015, 36(23): 340-346.
Zhang Y, Li WQ, Zhou WE, *et al.* Progress in Sample Pretreatment and Analytical Techniques for the Determination of Sulfonamide Residues in Foods [J]. Food Sci, 2015, 36(23): 340-346.
- [12] 李宁, 樊建麟, 杨东顺, 等. QuEChERS-超高效液相色谱-串联质谱法同时测定牛奶和奶粉中 13 种磺胺类药物[J]. 分析实验室, 2015, 34(07): 783-787.
Li N, Pan JL, Yang DS, *et al.* Determination of 13 Kinds of Sulfonamide in milk and milk powder by QuEChERS- UPLC-MS/MS [J]. Chin J Anal Lab, 2015, 34(07): 783-787.
- [13] 左志辉, 高立勤, 唐素芳. 固相萃取-液相色谱串联质谱法同时定量检测蜂蜜中 28 种抗生素类药物残留的研究[J]. 药物分析杂志, 2009, 29(07): 1196-1201.
Zuo ZH, Gao LQ, Tang SF. Studies on multiresidue determination of 28 antibiotics in honey by solid-phase extraction and high-performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Chin J Pharm Anal, 2009, 29(07): 1196-1201.
- [14] 刘洪斌, 姚喜梅, 蔡英华, 等. 应用 QuEChERS 检测鸡蛋中 16 种磺胺类药物残留 UPLC-MS/MS 方法的建立[J]. 畜牧与兽医, 2016, 48(02): 7-12.
Liu HB, Yao XM, Cai YH, *et al.* Development of UPLC-MS/MS for simultaneous determination of sixteen sulfonamides residues in eggs using a QuEChERS approach [J]. Anim Husb Vet Med, 2016, 48(02): 7-12.
- [15] 李杏翠, 李宝明, 田亚平. UPLC-MS/MS 法测定动物源性食品中 3 种磺胺类药物残留[J]. 中国药师, 2015, 18(01): 38-41.
Li XC, Li BM, Tian YP. Determination of three sulfonamides residues in animal derived food by UPLC-MS/MS [J]. China Pharm, 2015, 18(01): 38-41.

(责任编辑: 姚 菲)

作者简介



徐 慧, 理化检验技师, 主要研究方向为食品理化检验与质量控制。
E-mail: xuhui@sifdc.org.cn



刘 畅, 副主任药师, 主要研究方向为食品检测与食品安全。
E-mail: cible@sina.cn