

超高效液相色谱串联飞行时间质谱法测定蛋及蛋制品中 18 种磺胺类药物残留量

陆 庆^{1,2,3}, 易路遥^{1,2*}, 章 红^{1,2}, 熊 雯^{1,2}, 晏 亮^{1,2}

(1. 江西省药品检验检测研究院, 食品(保健食品与化妆品)室, 南昌 330029; 2. 江西省药品与医疗器械质量工程技术研究中心, 南昌 330029; 3. 丰城市市场监督管理局, 丰城 331100)

摘 要: **目的** 建立超高效液相色谱串联飞行时间质谱法(ultra performance liquid chromatography-quadrupole-time of flight-mass spectrometry)对蛋及蛋制品中 18 种磺胺类药物残留快筛确证的方法。**方法** 结合 QuEChERS 净化对样品进行前处理, 以 5% 甲酸乙腈溶液提取, 对鲜蛋、咸蛋、皮蛋、蛋肠、蛋粉、蛋酱、卤蛋 7 种蛋及蛋制品基质效应进行考察, 基质匹配外标法定量, 同时建立了包含一级精确质量和二级碎片离子信息的筛查确证谱库。**结果** 在 50~1000 $\mu\text{g/kg}$ 浓度范围内, 18 种目标化合物线性关系良好, 方法检出限为 2~20 $\mu\text{g/kg}$, 7 种基质在 200、400、800 $\mu\text{g/kg}$ 3 个添加水平回收率在 68.7%~118.7% 之间。**结论** 本方法操作简便, 稳定性好, 适用于蛋及蛋制品中多种磺胺类药物残留的快速筛查。

关键词: 超高效液相色谱串联飞行时间质谱法; QuEChERS 净化; 磺胺类药物残留

Determination of 18 kinds of sulfonamides residues in eggs and egg products by ultra performance liquid chromatography-quadrupole-time of flight-mass spectrometry

LU Qing^{1,2,3}, YI Lu-Yao^{1,2*}, ZHANG Hong^{1,2}, XIONG Wen^{1,2}, YAN Liang^{1,2}

(1. Jiangxi Institute for Drug Control Food (Health Food and Cosmetics) Room, Nanchang 330029, China; 2. Jiangxi Province Engineering Research Center of Drug and Medical Device Quality, Nanchang 330029, China; 3. Fengcheng Market Supervision Authority, Fengcheng 331100, China)

ABSTRACT: Objective To establish an rapid screening method for the determination of 18 kinds of sulfonamides residues in eggs and egg products by ultra performance liquid chromatography-quadrupole-time of flight-mass spectrometry. **Methods** The samples were pretreated with QuEChERS purification and extracted with 5% acetonitrile formate solution. The matrix effects in 7 kinds of egg products were considered and the quantification was carried out by matrix-matched with external standard method. A database including accurate mass and fragment ions information was established. **Results** The linear relationship of 18 target compounds was good in the concentration range of 50-1000 $\mu\text{g/kg}$. The limits of detection were in the range of 2 to 20 $\mu\text{g/kg}$. The average recoveries were in the range of 68.7%-118.7% for 7 kinds of substrates at 3 spiked levels of 200, 400, 800 $\mu\text{g/kg}$.

基金项目: 江西省食品药品监督管理局科技计划(2015SP04)

Fund: Supported by the Jiangxi Food and Drug Administration Science and Technology Plan (2015SP04)

*通讯作者: 易路遥, 硕士, 质量高级工程师, 主要研究方向为食品卫生检验。E-mail: 382840159@qq.com

*Corresponding author: YI Lu-Yao, Master, Quality Senior Engineer, Jiangxi Institute for Drug Control Food (Health Food and Cosmetics) Room & Jiangxi Province Engineering Research Center of Drug and Medical Device Quality, No.1566, Beijing East Road, Qingshanhu District, Nanchang 330029, China. E-mail: 382840159@qq.com

Conclusion This method is simple to operate and stable, which is suitable for the rapid screening of various sulfonamides residues in eggs and egg products.

KEY WORDS: ultra performance liquid chromatography-quadrupole-time of flight-mass spectrometry; QuEChERS sample preparation; sulfonamides residues

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,常用于防治鸡体内白痢、球虫病、盲肠炎和肝炎等疾病^[1-5]。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^[6-10]。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 $\mu\text{g}/\text{kg}$ ^[11,12]。

蛋及蛋制品中含大量蛋白质和脂肪,采用高效的前处理方法对于准确检测其中磺胺药物残留具有重要意义。QuEChERS 是一种快速、简单、廉价、高效、可靠、安全的前处理方法,其早已运用于农药残留检测的官方方法 AOAC 2007.01^[13]和欧盟 CEN 2002/657/EC^[14],近年来,在兽药检测方面也得到了广泛运用。

随着高分辨质谱技术的发展,飞行时间质谱法凭借高通量、高分辨率、谱库检索、不依靠标准品也可分析等能力开始在痕量分析领域得到应用^[15],是检测动物源性食品中药物残留的重要方法,目前在蛋及蛋制品中药物残留检测中应用报道较少,本研究中采用 QuEChERS 方法进行前处理,结合液相色谱-高分辨飞行时间质谱法联用技术,建立了 18 种磺胺类药物的超高效液相色谱串联飞行时间质谱法(ultra performance liquid chromatography-quadrupole-time of flight-mass spectrometry, HPLC-QTOF-MS)的一级精确质量数据库与相应二级谱库。应用一级数据库对具有明显特征离子的磺胺兽药进行鉴定,对疑似磺胺化合物进行二级确证,该方法可以快速、准确对蛋及蛋制品中磺胺化合物筛查定性。以从整体上提高药物残留的筛查检测水平,为我国蛋及蛋制品的健康发展奠定基础。

2 材料与方法

2.1 仪器与试剂

Xevo G2 超高效液相色谱-Q-TOF 质谱仪、ACQUITY UPLC BEH C_{18} 柱(2.1 mm $\times$ 50 mm, 1.7 μm , 美国 Waters 公司); ST16R 冷冻离心机(美国 ThermoFisher 公司); IKA MS3 涡旋混合器(德国 IKA 公司)。

磺胺类标准品:磺胺吡啶、磺胺甲基嘧啶、磺胺氯噻

嗪(纯度均大于 99%, 美国 Sigma 公司);磺胺甲氧嘧啶、磺胺二甲异唑、磺胺邻二甲氧嘧啶、磺胺噻唑、磺胺二甲异嘧啶钠、磺胺喹恶啉、磺胺间二甲氧基嘧啶、磺胺间甲氧嘧啶、磺胺苯吡唑(纯度均大于等于 98%, 德国 Dr.Ehrenstorfer 公司);磺胺甲噻二唑、磺胺对甲基嘧啶、磺胺二甲嘧啶(纯度均大于 99%, 美国 Fluka 公司);磺胺甲恶唑、磺胺嘧啶、甲氧苄啶(纯度均大于 99%, 中国食品药品检定研究院);乙腈、甲醇、甲酸(色谱纯, 美国 Sigma 公司);NaCl(分析纯, 国药集团化学试剂有限公司);十八烷基键合硅胶吸附剂(C_{18})、N-丙基乙二胺(primary secondary amine, PSA)吸附剂、WondaPak QuEChERS SPE 提取包、WondaPak QuEChERS SPE 净化管(岛津(上海)实验器材有限公司)。

2.2 材料

鲜蛋、咸蛋、皮蛋、蛋肠、蛋粉、蛋酱、卤蛋(市售)。

2.3 标准溶液的制备

分别精确称取 25 mg 18 种磺胺类标准品于 50 mL 容量瓶中,加少量乙腈溶解并定容,配制成浓度 500 mg/L 的储备液,储存于 $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 。分别准确移取 0.8 mL 18 种单标储备液于同一 50 mL 容量瓶中,用初始流动相定容,配制成浓度 8 mg/L 混合标准储备液,储存于 $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 。混合标准储备液用初始流动相逐级稀释成浓度为 0.1、0.2、0.4、0.8、1.6、2.0 mg/L 的混合标准工作液,储存于 $4\text{ }^{\circ}\text{C}$ 条件下备用。

2.4 仪器条件

色谱条件:色谱柱:ACQUITY UPLC BEH C_{18} 柱(2.1 mm $\times$ 50 mm, 1.7 μm);柱温 $40\text{ }^{\circ}\text{C}$;进样量:1 μL ;流动相:A 相为 5 mmol/L 乙酸铵溶液(含 0.1%甲酸),B 相为乙腈(含 0.1%甲酸)。梯度洗脱程序见表 1。

质谱条件:Electron spray ionization (ESI)离子源,正离子扫描,扫描范围为 m/z 100~1000,毛细管电压为 3000 V;干燥气温度 $500\text{ }^{\circ}\text{C}$,干燥气流速 1000 L/h;锥孔气流速 50 L/h;锥孔电压 40 V;碰撞能 15~40 V(MS/MS 采集时);质谱采集时间:2.0~11.0 min。

2.5 样品前处理

取样品,粉碎匀浆后,称取 5.00 g,加入 5 mL 5%甲酸乙腈,振荡 30 s,加入 4.0 g NaCl(或一份 WondaPak QuEChERS SPE 提取包,效果等同),涡旋 30 s,8000 r/min

离心 10 min, 取 1 mL 上清液, 待净化。将 1 mL 上清液转移至 2 mL 净化管(含 PSA 50 mg、C₁₈ 50 mg)(或 WondaPak QuEChERS SPE 净化管, 效果等同)中, 涡旋 30 s, 10800 r/min 离心 2 min, 取上清液, 过 0.22 μm 有机滤膜, 上机分析。同时做空白实验。

2.6 数据库的建立

在优化的色谱-质谱条件下, 对 18 种磺胺化合物进行一级质谱全扫描, 获得目标物的保留时间、母离子, 通过 Chromalynx XS 软件输入化合物名称、保留时间、分子式、精确相对分子质量、CAS 号, 再将目标物精确质量母离子在碰撞能量 15~40 V 下进行测定, 采集目标物的子离子信息, 建立了 18 种磺胺化合物的一级二级精确质量数据库, 具体信息见表 2。

表 1 梯度洗脱程序表
Table 1 Gradient elution procedure table

时间/min	流速/(mL/min)	流动相 A/%	流动相 B/%
0~1.2	0.4	98	2
1.2~5.0	0.4	98~80	2~20
5.0~6.0	0.4	80	20
6.0~8.0	0.4	80~2	20~98
8.0~10.0	0.4	2	98
10.0~11.0	0.4	2~98	98~2
11.0~15.0	0.4	98	2

表 2 18 种磺胺化合物质谱信息表
Table 2 Information sheet of 18 kinds of sulfonamides

序号	名称	保留时间/min	母离子(实测质量数)	子离子 1	子离子 2	分子式	CAS 号
1	磺胺吡啶 sulfapyridine	3.30	250.0639	156.0108	184.0860	C ₁₁ H ₁₁ N ₃ O ₂ S	144-83-2
2	磺胺甲氧吡嗪 sulfamethoxypyridazine	4.29	281.0701	156.0124	108.0450	C ₁₁ H ₁₂ N ₄ O ₃ S	80-35-3
3	磺胺甲基嘧啶 sulfamerazine	3.44	265.0750	108.0453	156.0112	C ₁₁ H ₁₂ N ₄ O ₂ S	127-79-7
4	磺胺二甲异唑 sulfamethoxazole	5.52	268.0750	108.0424	156.0115	C ₁₁ H ₁₃ N ₃ O ₃ S	127-79-7
5	磺胺邻二甲氧嘧啶 sulfadoxine	5.15	311.0806	156.0114	108.0446	C ₁₂ H ₁₄ N ₄ O ₄ S	2447-57-6
6	磺胺噻唑 sulfathiazole	3.19	256.0207	108.0445	156.0114	C ₉ H ₉ N ₃ O ₂ S ₂	72-14-0
7	磺胺二甲异嘧啶 sulfisomidine	2.82	279.0910	124.0875	186.0346	C ₁₂ H ₁₄ N ₄ O ₂ S	72-14-0
8	磺胺氯吡嗪 sulfachloropyridazine	4.75	285.0209	156.0097	108.0451	C ₁₀ H ₉ C ₁ N ₄ O ₂ S	80-32-0
9	磺胺喹恶啉 sulfaquinolaxaline	6.76	301.0749	156.0108	108.0441	C ₁₄ H ₁₂ N ₄ O ₂ S	59-40-5
10	磺胺间二甲氧嘧啶 sulfadimethoxypyrimidine	6.59	311.0804	156.0772	108.0441	C ₁₂ H ₁₄ N ₄ O ₄ S	122-11-2
11	磺胺甲噻二唑 sulfamethizole	4.19	271.0311	156.0107	/	C ₉ H ₁₀ N ₄ O ₂ S ₂	144-82-1

续表 2

序号	名称	保留时间/min	母离子(实测质量数)	子离子 1	子离子 2	分子式	CAS 号
12	磺胺对甲基嘧啶 sulfadiazine	4.09	281.0710	156.0128	108.0443	C ₁₁ H ₁₂ N ₄ O ₃ S	651-06-9
13	磺胺甲恶唑 sulfamethoxazole	5.13	254.0594	156.0121	108.0454	C ₁₀ H ₁₁ N ₃ O ₃ S	723-46-6
14	磺胺二甲嘧啶 sulfadimidine	4.08	279.0911	124.0873	108.0450	C ₁₂ H ₁₄ N ₄ O ₂ S	57-68-1
15	磺胺嘧啶 sulfadiazine	2.62	251.0596	156.0108	108.0444	C ₁₀ H ₁₀ N ₄ O ₂ S	68-35-9
16	甲氧苄啶 trimethoprim	4.04	291.1452	230.1166	261.0984	C ₁₄ H ₁₈ N ₄ O ₃	738-70-5
17	磺胺间甲氧嘧啶 sulfamonomethoxine	4.73	281.0705	156.0135	108.4380	C ₁₁ H ₁₂ N ₄ O ₃ S	1220-83-3
18	磺胺苯吡唑 sulfaphenazole	6.68	315.0912	158.0724	160.0873	C ₁₅ H ₁₄ N ₄ O ₂ S	526-08-9

3 结果与分析

3.1 样品前处理条件的选择和优化

磺胺属于极性偏弱的化合物, 在水中溶解度极低, 易溶于丙酮、乙腈等非极性或中等极性溶剂中, 且乙腈能较好的沉淀蛋及蛋制品中的蛋白质, 所以选择乙腈作为提取溶剂。磺胺药物分子中含有芳香第一胺, 呈弱碱性, 因此使用酸化乙腈作为提取剂可获得更好的离子化效果。试验考察了 5 个不同水平甲酸含量乙腈在 3 种鸡蛋基质(鲜蛋、皮蛋、蛋粉)中对提取率的影响, 分别为纯乙腈、1%甲酸乙腈、5%甲酸乙腈、7%甲酸乙腈、10%甲酸乙腈, 每个平行 3 份, 平均提取率结果见图 1。纯乙腈提取效果较差, 而酸化乙腈具有比较好的提取效果, 但浓度过高的甲酸乙腈溶液会对提取效果有影响, 并且上机对仪器和柱子有损害, 因此, 选用含 5%甲酸乙腈作为提取溶剂。

3.2 色谱条件的选择和优化

由于磺胺化合物呈弱碱性, 试验发现, 在 A、B 流动相中均加入体积分数 0.1%甲酸, 可较好的提高检测响应, 得到比较尖锐对称的峰形, 所有化合物在 7 min 内全部出峰, 对同分异构体, 也可达到比较好的分离效果。18 种磺胺类药物残留的总离子流图如图 2 所示。同时由于磺胺类

药物残留有多重同分异构体, 其母离子和子离子基本相同, 提取离子时容易产生混淆, 可通过优化后的液相条件得到不同的保留时间, 从而获得单一准确的定量离子对。

3.3 定性筛查及确证

通过建立的谱库对样品进行检测时, 保留时间偏差、精确质量数偏差、同位素 3 个因素是影响定性判定的主要原因, 使结果出现假阳性, 此时需对可疑化合物进行二级子离子信息确证。根据欧盟 SANTE/11945/2015^[16]决议, 使用高分辨质谱仪确证时, 当有 2 个及 2 个以上的特征离子匹配, 至少一个精确质量数的母离子和一个碎片离子, 则可确证其为目标物。应用本试验建立的谱库, 18 种磺胺类药物残留均能被准确确证。

3.4 样品基质效应的考察

基质效应由分析物的共流出组分影响电喷雾接口的离子化效率所致, 表现为离子增强或抑制作用^[17]。通过在不同基质提取液和纯试剂中加标, 测定对比目标化合物的离子响应值, 以两者的比值来考察基质效应(ME=目标化合物在空白基质提取液中峰面积÷在纯溶剂溶液中峰面积)(其中 ME > 1, 为增强作用; ME < 1, 为抑制作用; ME=1, 为不存在基质效应)。结果表明, 在 7 种蛋及蛋制品基质中, 18 种磺胺的基质效应在 0.83~1.19 之间, 基质效应不明显, 这跟磺胺属于极性较弱的化合物有一定关系。

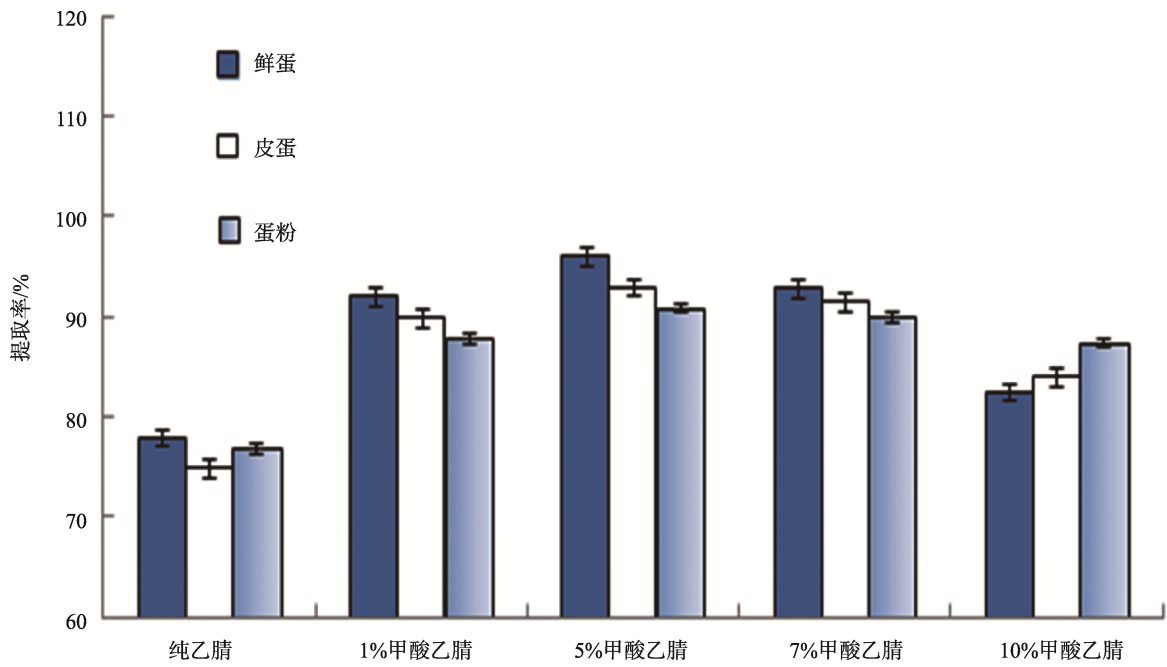


图 1 5 个水平甲酸含量对提取率的影响
Fig.1 Influence of 5 levels of formic acid on extraction rate

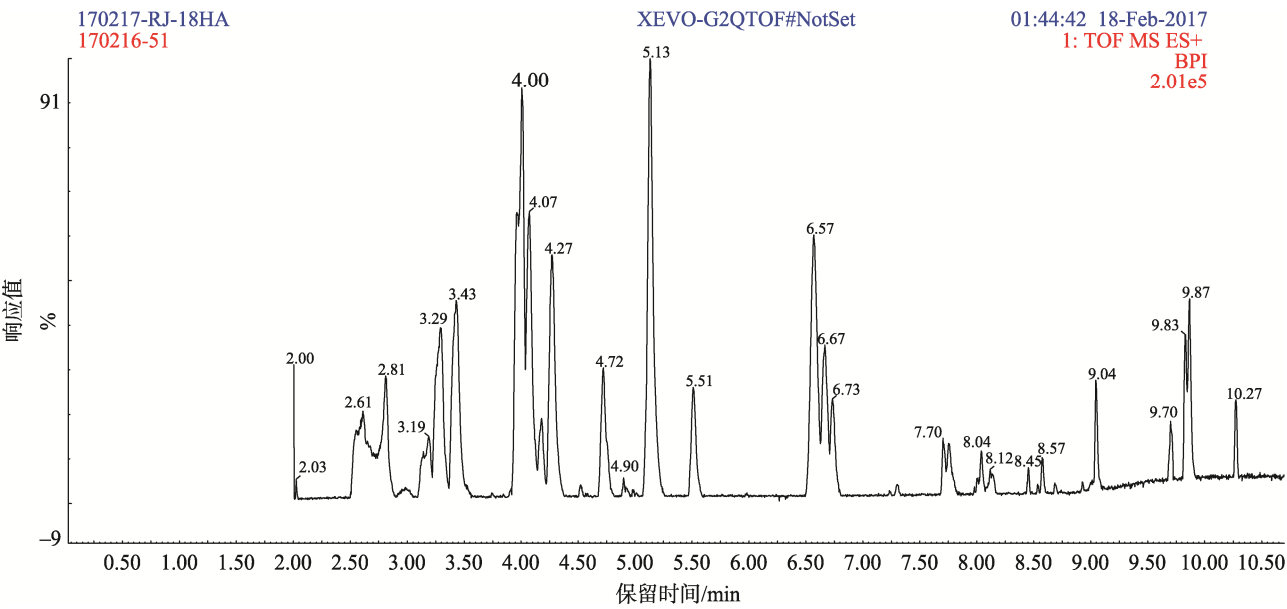


图 2 18 种磺胺类药物残留的总离子流图
Fig.2 Total ion flow of 18 kinds of sulfonamides

3.5 方法学验证

3.5.1 线性范围与检出限

空白基质样品经前处理，得空白基质溶液。分别精密

吸取 500 μL 0.1、0.2、0.4、0.8、1.6、2 mg/L 混合标准工作液，加 500 μL 空白基质溶液，配制浓度为 50、100、200、400、800、1000 $\mu\text{g/L}$ 的(鲜蛋、咸蛋、皮蛋、蛋肠、

蛋粉、蛋酱、卤蛋)基质标准溶液, 绘制标准工作曲线。以峰面积为纵坐标, 浓度为横坐标, 各目标化合物在 50~1000 $\mu\text{g/kg}$ 范围内线性关系良好, 相关系数(r)为 0.9950~0.9996。在基质空白样品中添加标准溶液, 以信噪比 $S/N \geq 3$ 确定方法检出限(limit of detection, LOD), 结果为 2~20 $\mu\text{g/kg}$ 。以咸蛋基质为代表, 列出各化合物线性回归方程、相关系数及方法的检出限, 见表 3。

3.5.2 回收率试验

在 7 种蛋及蛋制品空白样品中分别添加不同量的混合标准溶液(8 mg/L), 添加水平分别为 200、400、800 $\mu\text{g/kg}$, 每个浓度设置 3 个平行样, 按上述优化的实验方法测定 18 种磺胺类药物残留的回收率和精密度。以皮蛋为例, 结果如表 4。回收率均在 68.7%~118.7%之间, 精密度均小于 10.8%, 方法精密度好, 回收率高, 能够满足日常检测需求。

表 3 咸蛋基质各化合物线性回归方程、相关系数及方法的检出限
Table 3 Linear regression equation, correlation coefficient and limit of detection of each compound in salted egg matrix

序号	名称	线性回归方程	相关系数 r	检出限
1	磺胺吡啶 sulfapyridine	$Y=1.9044X+7.8036$	0.9994	5
2	磺胺甲氧哒嗪 sulfamethoxypyridazine	$Y=1.7456X+39.0428$	0.9961	5
3	磺胺甲基嘧啶 sulfamerazine	$Y=2.1045X+2.4230$	0.9992	5
4	磺胺二甲异唑 sulfamethoxazole	$Y=0.9346X+3.2819$	0.9986	10
5	磺胺邻二甲氧嘧啶 sulfadoxine	$Y=4.7789X+62.9131$	0.9950	2
6	磺胺噻唑 sulfathiazole	$Y=1.0673X+0.5542$	0.9988	20
7	磺胺二甲异嘧啶 sulfisomidine	$Y=2.4296X+0.2574$	0.9995	10
8	磺胺氯哒嗪 sulfachloropyridazine	$Y=0.3782X+17.9986$	0.9963	20
9	磺胺喹恶啉 sulfaquinoxaline	$Y=0.7956X+4.2233$	0.9991	20
10	磺胺间二甲氧基嘧啶 sulfadimethoxypyrimidine	$Y=3.7256X+14.2678$	0.9994	5
11	磺胺甲噻二唑 sulfamethizole	$Y=0.5723X+9.0134$	0.9993	10
12	磺胺对甲基嘧啶 sulfadiazine	$Y=1.7224X+45.2289$	0.9957	5
13	磺胺甲恶唑 sulfamethoxazole	$Y=0.9846X+48.2265$	0.9952	5
14	磺胺二甲嘧啶 sulfadimidine	$Y=2.6711X+30.2517$	0.9969	10
15	磺胺嘧啶 sulfadiazine	$Y=1.2195X+17.7763$	0.9996	20
16	甲氧苄啶 trimethoprim	$Y=5.8765X+0.0241$	0.9990	2
17	磺胺间甲氧嘧啶 sulfamonomethoxine	$Y=0.9312X-2.3391$	0.9986	10
18	磺胺苯吡唑 sulfaphenazole	$Y=1.7892X+17.2835$	0.9978	10

表 4 皮蛋基质的精密度和回收试验结果(n=3)
Table 4 Results of precision and recovery of preserved egg matrix (n=3)

名称	200 µg/kg		400 µg/kg		800 µg/kg	
	回收率/%	精密度/%	回收率/%	精密度/%	回收率/%	精密度/%
磺胺吡啶 sulfapyridine	89.4	5.3	88.9	4.7	93.2	7.1
磺胺甲氧吡嗪 sulfamethoxypyridazine	93.1	4.8	95.3	3.6	97.2	0.6
磺胺甲基嘧啶 sulfamerazine	95.6	9.1	95.3	7.4	94.7	7.1
磺胺二甲异唑 sulfamethoxazole	98.6	8.5	100.5	6.3	101.6	7.2
磺胺邻二甲氧嘧啶 sulfadoxine	103.3	3.3	99.9	9.5	105.4	1.4
磺胺噻唑 sulfathiazole	110.5	4.8	111.9	8.2	114.3	5.2
磺胺二甲异嘧啶 sulfisomidine	107.3	7.5	104.1	4.1	108.6	6.4
磺胺氯吡嗪 sulfachloropyridazine	92.1	6.2	94.4	1.3	94.7	5.6
磺胺喹恶啉 sulfaquinoxaline	68.7	5.5	73.5	4.3	72.9	8.8
磺胺间二甲氧基嘧啶 sulfadimethoxypyrimidine	73.2	7.3	70.5	7.3	76.8	2.9
磺胺甲噻二唑 sulfamethizole	99.2	10.2	104.6	5.9	106.2	6.1
磺胺对甲基嘧啶 sulfadiazine	114.5	1.2	115.2	3.5	117.0	0.9
磺胺甲恶唑 sulfamethoxazole	102.7	3.4	104.4	9.3	104.1	2.7
磺胺二甲嘧啶 sulfadimidine	99.8	9.4	102.8	4.9	103.1	3.8
磺胺嘧啶 sulfadiazine	88.4	5.2	88.7	2.7	89.4	9.2
甲氧苄啶 trimethoprim	113.6	1.5	113.3	10.8	118.7	4.6
磺胺间甲氧嘧啶 sulfamonomethoxine	82.5	0.8	86.2	4.4	85.7	4.9
磺胺苯吡唑 sulfaphenazole	91.0	2.4	93.9	6.2	92.6	4.3

4 结 论

本研究建立了鲜蛋、咸蛋、皮蛋、蛋肠、蛋粉、蛋酱、卤蛋 7 种蛋及蛋制品基质中 18 种磺胺类药物的 LC-Q-TOF 的筛查与确证方法, 缩短了样品前处理和仪器运行的时间, 并能保证较高的精密度和回收率, 提高了工作人员的工作效率, 节约了试剂, 适用于实验室日常蛋及蛋制品中快速准确筛查磺胺类药物残留, 进一步加强了蛋及蛋制品的安全监管工作。

参考文献

- [1] 王秀娟, 张峰, 陈云霞, 等. 高效液相色谱-串联质谱法同时测定漱口水中的 11 种磺胺类药物[J]. 食品安全质量检测学报, 2018, 9(24): 6521-6527.
- Wang XJ, Zhang F, Chen YX, *et al.* Simultaneous determination of 11 sulfonamides in mouthrinse by high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. J Food Saf Qual, 2018, 9(24): 6521-6527.
- [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(8): 892-896.
- Cheng GD, Wu XH, Jin Z, *et al.* Determination of three sulfonamides residues in prepared milk by ultrahigh performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Chin J Chromatogr, 2015, 33(8): 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]. 分析试验室, 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] 谢体波, 龚维瑶, 钟新敏, 等. 动物源性食品检测磺胺类药物 ELISA 试剂盒的研制[J]. 食品与发酵工业, 2018, 44(12): 250-255.
- Xie TB, Gong WY, Zhong XM, *et al.* Preparation of ELISA kit for detection of sulfa residue in animal food [J]. Food Ferment Ind, 2018, 44(12): 250-255.
- [6] 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.
- Lv B. Research of determination of nine sulfonamides residue in royal jelly [J]. Food Res Dev, 2015, 36(22): 131-133.
- [7] 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, (6): 58-61.
- Gao XL, Zhao HF. Determination of sulfonamide residues in pork by HPLC [J]. J Traidit Chin Vet Med, 2013, (6): 58-61.
- [8] 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.
- [9] 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.
- [10] 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]. 分析试验室, 2015, 34(7): 783-787.
- Li N, Fan 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(7): 783-787.
- [11] 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(7): 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(7): 1196-1201.
- [12] 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(2): 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 Veter Med, 2016, 48(2): 7-12.
- [13] Lehotay SJ. Determination of pesticide residues in foods by acetonitrile extraction and partitioning with magnesium sulfate: Collaborative study [J]. J AOAC Int, 2007, 2(90): 485.
- [14] 2002/657/EC. Commission decision of 12 August 2002 implementing council directive 96/23/EC concerning the performance of analytical methods and the interpretation of results, Official Journal of the European Commission.
- [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(1): 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(1): 38-41.
- [16] SANTE/1945/2015. Guidance document on analytical quality control and method validation procedures for pesticides residues analysis in food and feed, European Commission Directorate-general for health and food safety.
- [17] Eeckhaut AV, Lanckmans K, Sarre S, *et al.* Validation of bioanalytical LC-MS/MS assays: Evaluation of matrix effects [J]. J Chromatogr B, 2009, 887: 2198-2207.

(责任编辑: 苏笑芳)

作者简介



陆 庆, 助理工程师, 硕士, 主要研究方向为食品卫生检验。
E-mail: 280244308@qq.com



易路遥, 质量高级工程师, 硕士, 主要研究方向为食品卫生检验。
E-mail: 382840159@qq.com