

果冻类样品中非法添加物质 2 种提取方法比较

贺鑫鑫, 王钢力*, 曹进*

(中国食品药品检定研究院, 北京 100050)

摘要: **目的** 比较常规加热法和粉碎离心法对果冻类样品中非法添加物质的提取效果。**方法** 以常见的 2 种降糖类、4 种减肥类和 3 种利尿类非法添加化学物质为研究对象制备基质加标阳性样, 样品经加热和粉碎离心处理后采用超高效液相色谱串联质谱仪测定, 外标法定量, 以基质效应、回收率和精密度为指标考察 2 种方法的提取效率。**结果** 加热处理下样品的回收率为 31.27%~135.50%, 精密度为 0.75%~16.40%, 经粉碎离心提取处理下的样品中的 9 种非法添加化学药物回收率为 51.60%~116.90%, 精密度为 1.63%~10.70%, 粉碎离心处理下样品的基质效应也低于加热处理。**结论** 相较于加热提取法, 粉碎离心提取法操作简便、结果稳定可靠、灵敏度高, 可用于果冻类胶质样品的样品前处理。

关键词: 果冻类样品; 加热处理法; 粉碎离心处理法

Comparative study on 2 extractive methods for the extraction of illegal additives in jelly samples

HE Xin-Xin, WANG Gang-Li*, CAO Jin*

(National Institute for Food and Drug Control, Beijing 100050, China)

ABSTRACT: Objective To compare the extraction effect of illegal additives in jelly samples by routine heated method and pulverized centrifugal method. **Methods** Totally 9 illegally additives, including 2 antidiabetic drugs, 4 weight-loss pills and 3 diuretics were used as the research objects to prepare matrix spiked positive samples. After being heated, crushed and centrifuged, the samples were determined by ultra performance liquid chromatography tandem mass spectrometer (UPLC-MS/MS), and quantified by external standard method. The extraction efficiency of the 2 methods was investigated with matrix effect, recovery and precision as indexes. **Results** Under heat treatment, the recovery rate was 31.27%–135.50% and the precision was 0.75%–16.40%. While, the recovery rate of the 9 illegally additives in the pulverized samples was 51.60%–116.90%, and the precision was 1.63%–10.70%. Besides, the matrix effect under pulverization and centrifugation was lower than that of heat treatment. **Conclusion** Compared with the heating extraction method, the crushing centrifugal extraction method is easy to operate, and can be used for sample pretreatment of jelly-like samples with more stable, reliable and sensitive results.

KEY WORDS: jelly sample; routine heated method; pulverized centrifugal processed method

基金项目: “十三五”国家重点研发计划项目(2017YFC1601300)

Fund: Supported by the National Key R & Program of China (2017YFC160130)

*通信作者: 王钢力, 博士, 研究员, 主要研究方向为食品化妆品安全检测。E-mail: dunner@163.com

曹进, 博士, 研究员, 主要研究方向为食品安全性评价。E-mail: caojin@nifdc.org.cn

*Corresponding author: WANG Gang-Li, Ph.D, Professor, National Institutes for Food and Drug Administration, Dongcheng District, Beijing 100050, China. E-mail: duneer@163.com

CAO Jin, Ph.D, Professor, National Institutes for Food and Drug Administration, Dongcheng District, Beijing 100050, China. E-mail: caojin@nifdc.org.cn

0 引言

样品的前处理是食品检验的关键,好的样品前处理方式不仅应提取回收率高、精密度和重复性好,还应操作简便。食品检验时因样品基质复杂,不同类型的样品常采用不同的前处理方法,需结合样品基质和所检测目标化合物成分的特性进行选择,如样品中重金属等无机元素的测定常采用消解法作为前处理方法^[1-2];肉类、蔬果、粮食等样品常采用均质超声提取法作为其样品前处理方法^[3-4];从动植物组织中提取有机污染物则常采用组织捣碎提取等^[5-6]。常见的提取方式为保证目标化合物的完全提取,往往会引入较多的基质成分,这不仅会增加后期样品净化富集的难度,也同样增加了基质效应的影响以及色谱等仪器检测分离分析的难度。在对保健食品或者普通食品中含胶基质的样品处理过程中,通常的方式常采用加热提取进而稀释基质的方法进行样品前处理^[7-11],该方式在针对热不稳定化合物或多组分检测时均会带来一定的干扰和影响,另外胶体基质成分的引入,对后期测定也会带来一定的影响。如采用上述加热方式对果冻、压片糖等样品中非法添加物质进行提取时,不但会引入较多的基质成分,且多组分非法添加物质检测^[12-15]提取步骤中苛刻的条件影响因素会使得某些成分不能完全地被提取,从而带来测定的不确定性。因此,针对该类样品,考虑到非法添加的特性,采用溶剂提取和超微粉碎结合的样品前处理方式,通过扩大样品微粒比表面积,使其在与溶剂共存过程中有效溶出,避免加热和再稀释的影响。

本研究所针对的果冻是一种普遍且备受消费者喜爱的食品,其质量安全一直受到人们的广泛关注。而近年来,时常被爆出添加有非法化学药物的报道^[16-20],使其一时间成为关注和检测的焦点。果冻因采用胶质的材料,其硬度和弹性较大且不溶于有机溶剂,故通常采用水浴加热进行溶解,后取溶解样品进行溶剂稀释,冷却定容^[8-9]。但在实际的检测过程中发现,加热提取对化学性质不稳定、受热易分解等化合物的影响较大且存在一定的基质效应。本研究以明胶为基质制备了非法添加阳性的果冻样品,横向比较常规加热提取法和粉碎离心一体化提取法二者的提取效率,以探求更为合适、简便、稳定的果冻等胶质类样品的前处理方法。

1 材料与方法

1.1 仪器与试剂

1290-6400 超高效液相-三重四极杆质谱联用仪(美国 Agilent 科技有限公司); Milli-Q 型超纯水仪(德国 Sartorius 公司); XMTD-6000 恒温水浴锅(北京长风仪器

仪表有限公司); HC-3018R 高速冷冻离心机(安徽中佳科学仪器有限公司); 小号粉碎离心一体机配氧化锆碰撞子, 2.5 mm 直径(北京绿青科技有限公司); XP205 电子分析天平(十万分之一)、AL204 电子分析天平(万分之一)(瑞士 Mettler 公司)。

标准品: 格列喹酮、格列齐特、西布曲明、N-单去甲基西布曲明、N-单去甲基西布曲明、N,N-双去甲基西布曲明、N-苯甲酰基西布曲明、氢氯噻嗪、噻嗪、呋塞米(纯度 $\geq 97\%$)、明胶(中国食品药品检定研究院); 甲醇(色谱纯)、乙腈(质谱纯)、甲酸(LC/MS 级)(美国 Fisher Scientific 公司); 乙酸铵(LC/MS 级,北京百灵威科技有限公司)。

1.2 实验方法

1.2.1 标准溶液的配制

标准储备溶液: 格列喹酮, 格列齐特 500 mg/L; 西布曲明、N-单去甲基西布曲明、N,N-双去甲基西布曲明、N-苯甲酰基西布曲明、氢氯噻嗪、呋塞米 1000 mg/L; 氯噻嗪 2500 mg/L。分别称取上述标准对照品 10 mg(精确至 0.01 mg)用甲醇溶液(下同)溶解制成。使用时,配制成格列喹酮、格列齐特、西布曲明、N-单去甲基西布曲明、N,N-双去甲基西布曲明、N-苯甲酰基西布曲明和氯噻嗪的质量浓度为 500 mg/L, 氢氯噻嗪、呋塞米的重量浓度为 1000 mg/L 的混合储备溶液。

标准工作溶液: 分别吸取适量体积的上述混合储备溶液与甲醇稀释成 1.00、0.25、0.10、0.05、0.02 mg/L 的标准工作溶液。

1.2.2 仪器工作条件

1)液相色谱条件: ACQUITY UPLC[®]HSS T₃ C₁₈ 色谱柱(100 mm \times 2.1 mm, 1.8 μ m), 柱温 40 $^{\circ}$ C, 进样量 5 μ L, 流速 0.3 mL/min, 流动相 A 为 0.1%甲酸-10 mmol 乙酸铵溶液, B 为乙腈溶液。梯度洗脱程序: 0~0.5 min, 10% B; 0.5~1 min, 10%~35% B; 1~3 min, 35% B; 3.1~5.5 min, 40% B; 5.5~6 min, 40%~80% B; 6~10 min, 80% B; 10~11 min, 10% B。

2)质谱条件: 电喷雾正负离子模式; 多反应监测(multiple reaction monitoring, MRM)模式; 气流温度: 350 $^{\circ}$ C; 鞘气温度: 250 $^{\circ}$ C; 喷雾电压: 500 V; 毛细管电压: 3500 V(+) 3000 V(-); 干燥气流速: 8 L/min; 鞘气流速: 11 L/min。各物质的定性、定量离子对、锥孔电压、碰撞能量见表 1。

1.2.3 阳性果冻样品的配制

分别准确称取 4 份 1.5 g(精确至 0.001 g)明胶于 100 mL 烧杯中,加入 30 mL 超纯水使其吸水膨胀后,于 60 $^{\circ}$ C 水浴中恒温加热 5 min 使明胶融化成澄清透明的溶液,待其稍冷却后准确加入 0.96、0.3、0.06、0 mL 混合储备溶液,冷却至室温后于冰箱中冷藏 4 h 后分别制备成添加量为 16、5、1、0 mg/kg 的阳性明胶果冻样品 30 g。

表1 非法添加化学药物的主要质谱参数
Table 1 Main mass spectrometry parameters for illegal addition of chemical drugs

序号	化合物名称	母离子(m/z)	子离子(m/z)	锥孔电压/V	碰撞能量/eV	极性
1	格列喹酮	528	403*	135	7	+
		528	386	135	19	+
2	格列齐特	324	127*	135	15	+
		324	110	135	19	+
3	西布曲明	280	139	135	30	+
		280	125*	135	30	+
4	N-单去甲基西布曲明	266	139	135	30	+
		266	125*	135	30	+
5	N,N-双去甲基西布曲明	252	139	135	30	+
		252	125*	135	30	+
6	N-苯甲酰基西布曲明	356.2	139	135	30	+
		356.2	125*	135	30	+
7	氢氯噻嗪	296	268.9	135	20	-
		296	205*	135	20	-
8	氯噻嗪	294.1	213.7*	135	30	-
		294.1	178.7	135	50	-
9	呋塞米	329	205*	135	30	-
		329	126	135	30	-

注: *为定量离子。

1.2.4 样品前处理方法

常规加热法: 精密称取 1.0 g(精确至 0.001 g)样品于 20 mL 容量瓶中, 加入 80%甲醇 5 mL, 于 60 °C 水浴中恒温水浴加热至明胶果冻样品完全融化, 溶液呈乳白色浑浊液, 待其冷却至室温后用 80%(V/V)甲醇定容, 摇晃混匀样品全部转移至 50 mL 带盖的聚四氟乙烯离心管中, 以 10000 r/min 离心 5 min。取上清液过 0.22 μm 有机滤膜, 滤液直接进样分析。

粉碎离心一体化法: 精密称取 1.0 g(精确至 0.001 g)样品于 50 mL 带盖的聚四氟乙烯离心管中, 加入 20 mL 80%甲醇和 6 个氧化锆制备的碰撞子, 于粉碎离心一体机中粉碎离心各 60 s。取上清液过 0.22 μm 有机滤膜, 滤液直接进样分析。

2 结果与分析

2.1 标准曲线及线性系数

取系列标准工作溶液进行分析, 每一浓度进样 3 次, 按上述色谱条件测得峰面积, 以标准工作液的质量浓度(mg/L)为横坐标, 各物质的定量离子对峰面积

为纵坐标, 绘制各物质的标准曲线, 线性方程及其相关系数见表 2。结果表明各组分在 0.02~1.00 mg/L 内线性关系良好, r^2 值均大于 0.99。

2.2 检出限与定量限

添加 20 μg/g 的混标溶液于明胶果冻样品基质中, 按照 1.2.4 的方法进行前处理后进样分析, 以定量离子信噪比 $S/N=3$ 计算方法检出限与定量限, 结果和配对 t 检验结果分别如表 3、4 所示。

由表中数据可知, 非法添加化学药物的明胶果冻样品在经粉碎离心法和加热处理法处理后的检出限和定量限的 t 值均 $< t$ 双尾值, $P > 0.05$, 可知, 此 2 种样品前处理方法的检出限和定量限之间并不存在显著性差异。

2.3 回收率和精密度

取 3 个添加浓度的阳性明胶果冻样品, 按 2 种方法各平行制备 6 份供试溶液, 以定性和定量离子对进行监测得各化合物的色谱图和峰面积, 以峰面积计算各化合物的回收率和精密度, 其结果如表 5 和表 6 所示。

表 2 非法添加化学药物的线性范围、回归方程及相关系数
Table 2 Linear range, regression equation and correlation coefficient for illegally added chemical drugs

物质	线性范围/(mg/L)	线性方程	r^2
格列喹酮	0.02~1.00	$Y=1.3588 \times 10^6 X - 1.599 \times 10^4$	0.9996
格列齐特	0.02~1.00	$Y=1.7361 \times 10^6 X + 1.526 \times 10^5$	0.9916
西布曲明	0.02~1.00	$Y=2.5996 \times 10^6 X + 6.3988 \times 10^4$	0.9985
N-单去甲基西布曲明	0.02~1.00	$Y=2.1561 \times 10^6 X + 5.430 \times 10^4$	0.9987
N,N-双去甲基西布曲明	0.02~1.00	$Y=2.563 \times 10^5 X + 12521$	0.9976
N-苯甲酰基西布曲明	0.02~1.00	$Y=2.0187 \times 10^6 X + 8.4839 \times 10^4$	0.9959
氢氯噻嗪	0.04~2.00	$Y=1819.8X + 351.46$	0.9925
氯噻嗪	0.02~1.00	$Y=2.97 \times 10^4 X + 2413.6$	0.9953
呋塞米	0.04~2.00	$Y=852.41X - 51.324$	0.9948

表 3 明胶果冻样品中非法添加化学药物的检出限与定量限
Table 3 LODs and LOQs of illegally added chemical drugs in jelly samples

	粉碎离心法		传统加热法	
	LOD/($\mu\text{g/g}$)	LOQ/($\mu\text{g/g}$)	LOD/($\mu\text{g/g}$)	LOQ/($\mu\text{g/g}$)
格列喹酮	0.05	0.18	0.04	0.14
N-苯甲酰基西布曲明	0.01	0.05	0.01	0.05
格列齐特	0.01	0.04	0.01	0.03
西布曲明	0.02	0.05	0.02	0.05
N-单去甲基西布曲明	0.03	0.09	0.02	0.07
N,N-双去甲基西布曲明	0.12	0.40	0.11	0.38
呋塞米	43.00	143.60	36.40	121.40
氢氯噻嗪	3.85	12.83	3.70	12.35
氯噻嗪	0.30	0.99	0.39	1.30

表 4 明胶果冻样品中非法添加化学药物检出限与定量限的配对 t 检验结果

Table 4 Paired t test analysis result of LODs and LOQs of illegally added chemical drugs in jelly samples

	检出限(LODs)	定量限(LOQs)
t 值	1.0130	1.0129
df	8	8
P 值(双尾)	0.3407	0.3408
t 双尾值	2.306	2.306
95%置信区间	-2.431~0.9471	-8.178~3.186

由表 5 可知, 常规加热处理下的样品中非法添加化合物的回收率为 31.27%~135.5%, 粉碎离心一体化法的回收率为 51.60%~116.9%。粉碎离心一体化法明显提高了化合物的回收率, 将方法的最低回收率由

31.27%提高到 51.60%。结合图 1 中化合物回收率散点分布图可知, 经粉碎离心处理的目标化合物的回收率值相对加热处理而言更集中分布于 60%~110%之间, 离散程度较小, 没有较为极端的低值和高值, 且高中低 3 个加标浓度下的回收率值差异也较加热处理小。

由表 6 的数据可知, 虽然 16、5 mg/kg 添加浓度下某些非法添加化学药物加热处理下的精密度优于粉碎处理, 但 1 mg/kg 阳性样中各化合物经离心粉碎处理下的精密度均明显优于加热处理, 且从图 1 中的精密度分布散点图可见, 经离心粉碎法处理高中低 3 个浓度下的精密度值分布相对更为集中, 离散程度显著低于加热处理。

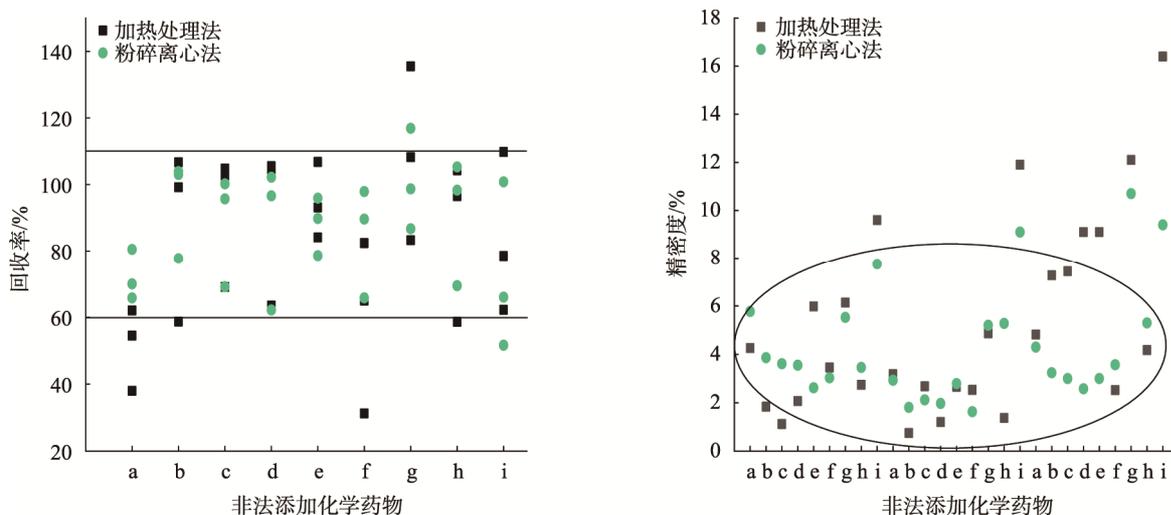
因食品及保健食品中非法添加化合物多采用多成分同时检测, 故基于样品各非法添加物的整体回收率和精密度出发, 粉碎离心一体化处理法是一个更为优异的样品前处理方法。

表5 2种样品前处理方法下的非法添加化学药物在明胶果冻样品中的回收率($n=6$)
Table 5 Recoveries of illegally additives in jelly sample processed by 2 different methods ($n=6$)

化合物	加热处理法			粉碎离心处理法		
	16 mg/kg	5 mg/kg	1 mg/kg	16 mg/kg	5 mg/kg	1 mg/kg
格列喹酮	62.00	54.46	38.01	80.50	69.92	65.73
格列齐特	99.20	106.70	58.68	103.00	103.90	77.68
西布曲明	102.70	104.80	69.03	100.20	95.70	69.09
N-单去甲基西布曲明	104.00	105.50	63.44	102.20	96.60	62.13
N,N-双去甲基西布曲明	93.10	106.80	84.10	89.80	95.90	78.60
N-苯甲酰基西布曲明	82.40	64.93	31.27	97.90	89.60	65.75
氢氯噻嗪	108.20	135.50	83.30	98.70	116.90	86.70
氯噻嗪	104.30	96.50	58.61	105.30	98.30	69.39
呋塞米	109.80	78.51	62.17	100.80	65.94	51.60

表6 2种样品前处理方法下的非法添加化学药物在明胶果冻样品中的精密度($n=6$)
Table 6 Precision of illegally additives in jelly sample processed by 2 different methods ($n=6$)

化合物	加热处理法			粉碎离心处理法		
	16 mg/kg	5 mg/kg	1 mg/kg	16 mg/kg	5 mg/kg	1 mg/kg
格列喹酮	4.26	3.18	4.82	5.77	2.93	4.30
格列齐特	1.84	0.75	7.27	3.86	1.81	3.24
西布曲明	1.12	2.68	7.44	3.61	2.12	3.00
N-单去甲基西布曲明	2.07	1.20	9.10	3.55	1.97	2.58
N,N-双去甲基西布曲明	5.98	2.66	9.10	2.62	2.79	3.00
N-苯甲酰基西布曲明	3.46	2.53	2.52	3.03	1.63	3.57
氢氯噻嗪	6.14	4.87	12.10	5.53	5.20	10.70
氯噻嗪	2.74	1.37	4.18	3.46	5.28	5.30
呋塞米	9.60	11.9	16.40	7.75	9.10	9.40



注: a. 格列喹酮; b. 格列齐特; c. 西布曲明; d. N-单去甲基西布曲明; e. N,N-双去甲基西布曲明; f. N-苯甲酰基西布曲明; g. 氢氯噻嗪; h. 氯噻嗪; i. 呋塞米。

图1 2种样品前处理方法下明胶果冻样品中各非法添加化合物回收率和精密度的散点分布图

Fig.1 The scatter plot of recovery and precision for illegally added chemical drugs in jelly sample processed by 2 different methods

2.4 基质效应

取 3 个添加浓度的阳性明胶果冻样品, 按 2 种处理方法各平行制备 6 份供试溶液, 以定性和定量离子对进行监测得各化合物的色谱图和峰高, 以阳性样中各非法添加化合物的峰高与相当浓度下标准溶液中的各化合物峰高比值来评价此 2 种样品前处理方法的基质效应, 结果如表 7 所示。由表 7 中数据可知, 格列喹酮和 N-苯甲酰基西布曲明在经加热处理后基质效应明显, 明胶果冻样品中此 2 种化合物的峰高仅占标准溶液的 47.65%和 48.81%, 而粉碎离心处理下该两者的样品峰高/标准溶液峰高比值达到了 71.46%和 75.62%, 较加热处理基质抑制效应明显较低。而对于其他 7 种非法添加化合物, 2 种样品前处理方法并未存在较为明显的基质效应差异。

表 7 2 种样品前处理方法下的明胶果冻样品的基质效应 (%) $(n=6)$

Table 7 Matrix effect of jelly sample processed by 2 different methods(%)($n=6$)

化合物	加热处理法 /%	粉碎离心处理法 /%
格列喹酮	47.65	71.46
格列齐特	77.11	85.81
西布曲明	89.22	86.47
N-单去甲基西布曲明	89.67	83.72
N,N-双去甲基西布曲明	91.49	86.48
N-苯甲酰基西布曲明	48.81	75.62
氢氯噻嗪	118.12	109.62
氯噻嗪	98.70	104.53
呋塞米	96.30	92.79

3 结论与讨论

本研究分析比较了常规加热方法和粉碎离心一体化法对明胶类果冻样品中非法添加物质进行样品前处理的提取效果。就同时检测 9 种非法添加物质的整体效果而言, 粉碎离心一体化法的回收率、精密度和基质效应都较常规加热法好, 此法将目标化合物的提取与超微粉碎相结合, 不仅简化了样品前处理步骤、降低了基质效应、提高回收率和精密度, 还拓宽了检测范围, 可用于某些热稳定较差化合物的分析检测。今后将进一步比较研究其他风险物质在胶质类样品中的提取检测, 为食品风险物质的灵敏检测提供参考。

参考文献

[1] 章连香. 食品中重金属元素检测方法研究进展[J]. 中国无机分析化学, 2017, 7(1): 13-18.

ZHANG LX. Research progress on determination of heavy metal elements in food [J]. Chin J Inorg Anal Chem, 2017, 7(1): 13-18.

[2] 王磊, 胡晓飞, 邢广旭, 等. 食品中重金属检测方法研究进展[J]. 中国公共卫生, 2012, 28(10): 1390-1392.

WANG L, HU XF, XING GX, *et al.* Research progress on determination of heavy metal elements in food [J]. Chin J Public Health, 2012, 28(10): 1390-1392.

[3] 苏建峰, 林谷园, 连文浩, 等. 两种水产品中农药多残留分析的样品前处理方法及其在 111 种农药和相关化学品残留同时检测中的应用[J]. 色谱, 2008, 26(3): 292-300.

SU JF, LIN GY, LIAN WH, *et al.* Two sample pretreatment methods and their applications in the determination of 111 pesticides and related chemicals in aquatic products [J]. Chin J Chromatogr, 2008, 26(3): 292-300.

[4] 崔丽丽, 闫梅霞, 朴向民, 等. QuEChERS-气相色谱-质谱联用法快速测定人参中农药多残留[J]. 色谱, 2018, 36(11): 111-118.

CUI LL, YAN MX, PIAO XM, *et al.* Rapid determination of pesticide multiresidues in panax ginseng by QuEChERS-gas chromatography-mass spectrometry [J]. Chin J Chromatogr, 2018, 36(11): 111-118.

[5] 陈振桂. 水产品中磺胺类和氯霉素类兽药残留分析方法研究[D]. 南昌: 南昌大学, 2007.

CHEN ZG. Study on the analysis method of sulfonamide and chloramphenicol residues in aquatic products [D]. Nanchang: Nanchang University, 2007.

[6] 宋利军, 付倩, 刘瑞弘, 等. QuEChERS 提取-气相色谱质谱法测定蔬菜中的 21 种有机磷类、氨基甲酸酯类和拟除虫菊酯类农药残留量[J]. 中国卫生检验杂志, 2017, 27(15): 2135-2139.

SONG LJ, FU Q, LIU RH, *et al.* Residues determination of 21 organophosphorus, carbamate and pyrethroid pesticides in vegetables by QuEChERS-gas chromatography-mass spectrometry [J]. Chin J Health Lab Technol, 2017, 27(15): 2135-2139.

[7] 戎江瑞. 3 种不同前处理方法在 HPLC 测定果冻中苯甲酸、山梨酸和糖精钠的实验比较[J]. 中国卫生检验杂志, 2005, 15(7): 885.

RONG JR. Experimental comparison of three different pretreatment methods for the determination of benzoic acid, sorbic acid and sodium saccharin in jelly by HPLC [J]. Chin J Health Lab Technol, 2005, 15(7): 885.

[8] 丁芳林, 卢亚玲, 陈波. HPLC-MS 联用测定果冻等食品中的 3 种甜味剂和苯甲酸[J]. 食品与机械, 2008, 24(4): 111-114.

DING FL, LU YL, CHEN B. Determination of three sweeteners and benzoic acid in jelly and other foods by HPLC-MS [J]. Food Mach, 2008, 24(4): 111-114.

[9] 周小洲, 于晨. 高效液相色谱检测果冻中 4 种色素、糖精钠和苯甲酸的前处理优化研究[J]. 中国食品添加剂, 2017, (5): 194-198.

ZHOU XZ, YU C. Pretreatment optimization in detecting four pigments, saccharin sodium and benzoic acid in jelly by HPLC [J]. China Food Addit, 2017, (5): 194-198.

[10] 陈艳, 刘思洁, 李皓. 高效液相色谱法测定果冻中的合成色素[J]. 食品科学, 2007, 28(9): 487-490.

CHEN Y, LIU SJ, LI H. Determination of synthetic colour in Jelly by high performance liquid chromatography [J]. Food Sci, 2007, 28(9): 487-490.

[11] 翟增运, 王家保. HPLC 法同时测定果冻中的防腐剂、甜味剂[J]. 中国卫生检验杂志, 2009, 19(4): 806-807.

- ZHAI ZY, WANG JB. Simultaneous determination of preservatives and sweetenings in fruit jelly by HPLC [J]. *Chin J Health Lab Technol*, 2009, 19(4): 806–807.
- [12] 凌海燕, 朱宁, 杨军, 等. HPLC-Q-TOF-MS/MS 法检测降压类中成药中非法添加的 24 种化学物质[J]. *中国药房*, 2016, 27(33): 4712–4715.
- LING HY, ZHU N, YANG J, *et al.* Detecion of 24 chemical substances that illegally added into antihypertensive traditional Chinese patent medicines by HPLC-Q-TOF-MS/MS [J]. *Chin Pharm*, 2016, 27(33): 4712–4715.
- [13] 张喆, 高青, 车宝泉, 等. 中药和保健食品中非法添加降脂类药物的检测方法研究[J]. *药物分析杂志*, 2008, 28(12): 2069–2072.
- ZHANG Z, GAO Q, CHE BQ, *et al.* HPLC-MS/MS determination of ten chemicals in traditional Chinese medicine and health food [J]. *China J Pharm Anal*, 2008, 28(12): 2069–2072.
- [14] 胡青, 孙健, 于泓, 等. 超高效液相色谱-三重四极杆质谱法测定保健食品中 28 种降糖类非法添加化合物[J]. *食品安全质量检测学报*, 2018, 9(1): 93–101.
- HU Q, SUN J, YU H, *et al.* Determination of 28 anti-diabetic compounds in health foods by ultra performance liquid chromatography-triple quadrupole mass spectrometry [J]. *J Food Saf Qual*, 2018, 9(1): 93–101.
- [15] 祝伟霞, 刘亚风, 孙转莲, 等. 超高效液相色谱-串联质谱法同时测定保健品中 26 种非法添加物[J]. *理化检验:化学分册*, 2016, 52(11): 1286–1291.
- ZHU WX, LIU YF, SUN ZL, *et al.* Simultaneous determination of 26 illegal additives in health-care food by UPLC-MS/MS [J]. *Phys Test Chem Anal Part B*, 2016, 52(11): 1286–1291.
- [16] 车宝泉, 赵明. 近几年中药及保健食品中非法添加化学物质的检测现状[C]. 北京地区药学会学术年会, 北京药学会, 北京执业药师协会, 2006.
- CHE BQ, ZHAO M. The recent detection status of illegally mixed chemical substances in traditional Chinese medicine and health food [C]. *Annual Conference of Pharmaceutical Sciences in Beijing*, Beijing Pharmaceutical Association, Beijing Pharmacist Association, 2006.
- [17] 徐慧, 郭小鹏, 王超, 等. 芦荟保健食品中蒽醌类成分及非法添加化学药物的测定[J]. *中国卫生检验杂志*, 2019, 29(22): 2703–2706.
- XU H, GUO XP, WANG C, *et al.* Determination of anthraquinones in aloe health food and illegal addition of chemical drugs [J]. *Chin J Health Lab Technol*, 2019, 29(22): 2703–2706.
- [18] 宗杨. 中成药非法添加化学药物的情况分析与对策[J]. *中国现代药物应用*, 2013, 7(22): 227–228.
- ZONG Y. Analysis and countermeasures of illegal addition of chemical drugs in Chinese patent medicines [J]. *Chin J Mod Drug Appl*, 2013, 7(22): 227–228.
- [19] 温家欣, 陈林, 赖宇红, 等. 高效液相色谱法同时快速测定凉茶中 11 种非法添加化学药物[J]. *分析测试学报*, 2016, 35(3): 285–291.
- WEN JX, CHEN L, LAI YH, *et al.* The recent detection status of illegally mixed chemical substances in traditional Chinese medicine and health food [J]. *J Instrum Anal*, 2016, 35(3): 285–291.
- [20] 高华敏, 李秀明. 中成药中非法添加化学药物有关问题原因分析与对策[J]. *淮海医药*, 2007, 25(2): 165–166.
- GAO HM, LI XM. Analysis and countermeasures of problems related to illegal addition of chemical drugs in Chinese patent medicines [J]. *J Huaihai Med*, 2007, 25(2): 165–166.

(责任编辑: 张晓寒)

作者简介

贺鑫鑫, 硕士, 主要研究方向为食品化妆品安全性评价。
E-mail: 18865672252@163.com

王钢力, 博士, 研究员, 主要研究方向为食品化妆品安全检测。
E-mail: dunner@163.com

曹进, 博士, 研究员, 主要研究方向为食品安全性评价。
E-mail: caojin@nifdc.org.cn