

通过式固相萃取/超高效液相色谱-串联质谱法快速测定动物源性食品中安乃近代谢物残留量

张婧雯¹, 张海超^{1*}, 范斌², 艾连峰¹, 王敬¹, 李玮¹, 康维钧³

(1. 石家庄海关技术中心, 河北 石家庄 050051; 2. 河北省食品检验研究院, 河北 石家庄 050000;
3. 河北医科大学 公共卫生学院, 河北 石家庄 050017)

摘要:建立了通过式固相萃取/超高效液相色谱-串联质谱(UPLC-MS/MS)快速测定动物源性食品中4-甲氨基安替比林(MAA)、4-氨基安替比林(AA)、4-甲酰氨基安替比林(FAA)和4-乙酰氨基安替比林(AAA) 4种安乃近代谢物的方法。样品采用乙腈提取, PRiME HLB固相萃取柱净化, 在ACQUITY BEH C₁₈色谱柱上以乙腈和0.1%甲酸水溶液为流动相梯度洗脱, 超液相色谱-串联质谱MRM方式进行定量分析。结果表明, 4种化合物在0.5~50 μg/L范围内线性关系良好, 相关系数(*r*)大于0.996, 方法的检出限(LOD)为2 μg/kg, 定量下限(LOQ)为5 μg/kg。4种化合物在3个加标水平(5、10和50 μg/kg)下的回收率为75.1%~115%, 相对标准偏差(RSD)为1.6%~7.4%。该方法简单、快速、准确, 可实现动物源性食品中安乃近代谢物的快速测定。

关键词:安乃近代谢物; 通过式固相萃取; PRiME HLB; 超高效液相色谱-串联质谱; 动物源性食品
中图分类号: O657.63; TQ460.72 **文献标识码:** A **文章编号:** 1004-4957(2019)09-1114-06

Rapid Determination of Dipyrone Metabolite Residues in Foods of Animal Origin by Ultra Performance Liquid Chromatography - Tandem Mass Spectrometry with a Through-type Solid-phase Extraction

ZHANG Jing-wen¹, ZHANG Hai-chao^{1*}, FAN Bin², AI Lian-feng¹, WANG Jing¹,
LI Wei¹, KANG Wei-jun³

(1. Shijiazhuang Customs Technology Center, Shijiazhuang 050051, China; 2. Hebei Food Inspection and Research Institute, Shijiazhuang 050000, China; 3. School of Public Health, Hebei Medical University, Shijiazhuang 050017, China)

Abstract: A method was developed for the rapid detection of 4-methylaminoantipyrine (MAA), 4-aminoantipyrine (AA), 4-formylaminoantipyrine (FAA) and 4-acetylaminoantipyrine (AAA) in foods of animal origin by ultra performance liquid chromatography - tandem mass spectrometry (UPLC - MS/MS) with a through-type solid-phase extraction. Samples were extracted with acetonitrile, then cleaned up with a PRiME HLB column, finally quantified by UPLC - MS/MS in MRM mode after gradient elution on an ACQUITY BEH C₁₈ column with acetonitrile and 0.1% formic acid as mobile phases. Results showed that the calibration curves for four analytes were linear in the range of 0.5 - 50 μg/L with correlation coefficients (*r*) larger than 0.996. The limits of detection (LODs) and the limits of quantitation (LOQs) were 2 μg/kg and 5 μg/kg, respectively. The average recoveries at three spiked levels of 5, 10 and 50 μg/kg ranged from 75.1% to 115%, with relative standard deviations (RSD) of 1.6% - 7.4%. The proposed method is simple, rapid and accurate, and could be applied in the simultaneous determination of dipyrone metabolite residues in foods of animal origin.

Key words: dipyrone metabolite; through-type solid-phase extraction; PRiME HLB; ultra performance liquid chromatography - tandem mass spectrometry (UPLC - MS/MS); foods of animal origin

安乃近是一种吡唑酮类非甾体抗炎药, 有着较长的应用历史。安乃近在体内可几乎全部迅速水解

成活性产物4-甲氨基安替比林(MAA),其药理作用主要由MAA产生。MAA在体内代谢为4-甲酰氨基安替比林(FAA)和4-氨基安替比林(AA),AA可以继续代谢为4-乙酰氨基安替比林(AAA)。安乃近解热镇痛效果显著,对多种炎症具有很好的疗效,常用于治疗急性关节炎、头痛、风湿性痛、牙痛及肌肉痛等,广泛应用于动物和人类多种炎症的治疗。但是安乃近的毒副作用极大,会导致肾毒性、皮疹、粒细胞减少等多种不良反应,甚至还可能导致自身免疫性溶血、血小板减少性紫癜、再生障碍性贫血等^[1]。为此,瑞典、美国在70年代就已禁止该药物用于食源性动物中,2013年印度也禁止使用此类药物,如今安乃近已被30多个国家禁用^[2]。然而,安乃近由于价格低廉,在法国、德国和中国仍被广泛用于兽医领域,因此对消费者的健康造成了一定威胁。以MAA含量计算,欧盟对安乃近在牛奶中的限量为50 μg/kg,在食源性动物组织中的限量为100 μg/kg^[3]。在我国,安乃近在食源性动物组织中的限量为200 μg/kg^[4]。

因此,研究和建立一种快速、高效的动物源食品中安乃近代谢物的检测方法,对于保障畜牧业健康发展、促进我国农牧产品出口、维护人民身体健康具有重要意义。目前关于安乃近代谢物的检测方法主要有液相色谱法^[5-7]和液相色谱-串联质谱法^[8-11]。液相色谱法因定性能力差、灵敏度低,不适用于复杂基质中低含量目标物的分析。液相色谱-质谱法因其高灵敏度和高专属性,对动物源食品中安乃近代谢物残留的分析具有明显优势。由于动物源食品基质复杂,含有较多的蛋白、脂肪和磷脂,为保证数据的准确性,减少对色谱柱和仪器的污染,多采用固相萃取进行净化。但这些固相萃取方式需经过活化、上样、淋洗和洗脱,且整个前处理过程要经过氮吹、浓缩等多个步骤,大大影响了数据的稳定性和工作效率。

PRiME HLB固相萃取柱对动物组织中蛋白、脂肪和磷脂具有特异性吸附能力,净化效果显著,近年来被广泛用于食品基质的净化^[12-17]。本研究以猪肉、羊肉、牛肉和牛奶为研究对象,利用PRiME HLB固相萃取柱进行净化,超高效液相色谱-串联质谱仪直接测定了动物源性食品中安乃近代谢物残留量。该方法无需活化和洗脱等步骤,可直接将提取液上样,操作简便、快速,为动物源食品中安乃近代谢物残留的测定提供了新途径。

1 实验部分

1.1 仪器与试剂

UPLC 8050超高效液相色谱-串联质谱仪(日本Shimadzu公司);Sigma 3K-15型离心机(美国Sigma公司);PT2100型均质器(瑞士Kinematica公司);N-EVAP112氮吹仪(美国Organomation公司);涡旋混合器(美国Scientific Industries公司);Milli-Q纯化系统(美国Millipore公司);Waters ACQUITY UPLC BEH C₁₈色谱柱(2.1 mm × 100 mm, 1.7 μm);PRiME HLB固相萃取柱(200 mg, 6 mL, 美国Waters公司)。

乙腈、甲醇(色谱纯,德国Merck公司);甲酸(色谱纯,德国Fluka公司);氯化钠(分析纯,国药集团化学试剂有限公司),实验用水为Milli-Q高纯水。

4-甲氨基安替比林(MAA, CAS号:519-98-2)、4-氨基安替比林(AA, CAS号:83-07-8)、4-甲酰氨基安替比林(FAA, CAS号:1672-58-8)和4-乙酰氨基安替比林(AAA, CAS号:83-15-8)标准品购于德国Dr. Ehrenstorfer公司,纯度大于98%。

1.2 标准溶液的配制

1.2.1 标准储备液的配制 分别精密称取MAA、AA、FAA和AAA各10 mg(精确至0.01 mg),用乙腈溶解并定容至100 mL,配制成质量浓度均为100 mg/L的标准储备液。

1.2.2 标准工作液的配制 分别准确移取1 mL上述储备液置于100 mL容量瓶中,用乙腈定容配制成1.0 mg/L的混合标准中间液;根据需要移取适量混合标准中间液,分别用乙腈稀释成质量浓度为0.5、2、5、10、20、50 μg/L的标准工作溶液。

1.3 样品预处理

准确称取5 g样品(精确至0.01 g)于50 mL塑料离心管中。加入20 mL乙腈,于均质器上均质1 min,加入4 g无水硫酸钠,摇匀。以8 000 r/min离心5 min,取约2 mL上清液于PRiME HLB固相萃

取柱, 前 1 mL 流出液弃去, 接收后 1 mL 流出液于玻璃试管中, 过 0.22 μm 有机滤膜后供 UPLC-MS/MS 测试。

1.4 仪器分析条件

色谱条件: Waters ACQUITY UPLC BEH C_{18} 色谱柱 (2.1 mm \times 100 mm, 1.7 μm); 流动相: 含 0.1% 甲酸的水溶液 (A) 和乙腈 (B); 流速: 0.4 mL/min; 柱温: 35 $^{\circ}\text{C}$; 进样量: 1 μL ; 梯度洗脱程序: 0~1.0 min, 10%~50% B; 1.0~4.0 min, 50%~90% B; 4.0~6.0 min, 90% B; 6.0~6.1 min, 90%~10% B; 6.1~8.0 min, 10% B。

质谱条件: 电喷雾电离源 ESI(+), 采用多反应监测模式 (MRM)。离子源温度为 400 $^{\circ}\text{C}$, 毛细管温度为 250 $^{\circ}\text{C}$, 加热模块温度为 350 $^{\circ}\text{C}$, 氮气流速 3.0 L/min, 干燥气流速 10.0 L/min, 加热气流速 10.0 L/min, 其他参数见表 1。

表 1 4 种安乃近代代谢物的质谱分析参数
Table 1 MS parameters of 4 dipyrone metabolites

Compound	Parent ion (m/z)	Product ion (m/z)	Q1 (V)	Q3 (V)	Collision energy (eV)
4-Methylaminoantipyrine (MAA)	218	56*, 97, 187	10, 11, 28	23, 13, 11	23, 13, 11
4-Formylaminoantipyrine (FAA)	232	214*, 83, 104	30, 11, 29	13, 22, 22	21, 14, 18
4-Acetylaminoantipyrine (AAA)	246	228*, 104, 204	23, 27, 30	14, 23, 14	23, 17, 21
4-Aminoantipyrine (AA)	204	56*, 111, 159	30, 24, 30	25, 12, 14	23, 10, 30

* quantitation ion

2 结果与讨论

2.1 提取溶液的选择

4 种安乃近代代谢物是一类吡唑酮类的碱性化合物, 在中性和碱性条件下稳定。目前对安乃近代代谢物常用的提取溶剂有乙腈^[5,7,9]、5% 氨水乙腈^[8,10] 和 0.1 mol/L Na_2SO_4 + 0.02 mol/L Na_2SO_3 溶液 (pH 7.0)^[6,11]。实验对比了这 3 种溶剂以及甲醇的提取效果, 发现采用 Na_2SO_4 + Na_2SO_3 提取溶液直接进样时离子化效果不好, 需进行溶液的转换才可进行仪器分析, 实验步骤繁琐。采用甲醇提取的提取液颜色较浑浊, 给净化过程带来一定困难。而采用乙腈和 5% 氨水乙腈提取时, 两者均可与样品中的蛋白形成致密沉淀, 使得上清液更为澄清且提取效率更高。由于乙腈和 5% 氨水乙腈在提取效率上无明显差异, 综合考虑整个前处理过程的简便性, 最终选乙腈作为提取溶液。

2.2 净化方式的选择及净化效果的评价

动物源性食品中含有较多的蛋白和脂肪等亲脂类杂质, 为减少这些杂质对测定目标物的干扰和降低对色谱柱及仪器的损耗, 需采取有效的净化方式对提取溶液进行净化。已有文献通常采用固相萃取、氮吹浓缩等净化步骤, 但这些步骤在实际操作中极易造成 MAA 和 AA 损失和回收率偏低^[5-8,10-11]。本文采用 PRiME HLB 固相萃取柱净化, 在净化过程中先用 1 mL 提取液润洗小柱, 然后将样品溶液加载至固相萃取柱以吸附蛋白、脂肪和磷脂等杂质, 不仅有效净化了样品, 而且不损失目标组分, 显著提高了工作效率。实验进一步通过采取净化前后对基质效应的影响来评价净化效果, 即采用净化前后牛肉、羊肉、猪肉和牛奶空白基质样品配制的 5 $\mu\text{g/L}$ 标准溶液与乙腈配制的 5 $\mu\text{g/L}$ 标准溶液峰面积响应值进行比较, 利用以下公式评价基质效应的影响^[17]: 基质效应 (ME) = (B/A), 其中: B 为样品基质中添加的相同含量 4 种化合物的响应值; A 为相同含量标准溶液的响应值; ME > 1, 说明存在基质增强效应; ME < 1, 说明存在基质减弱效应。由表 2 可看出, 经 PRiME HLB 净化后, 基质效应的影响明显减弱, 净化前 ME 为 0.29~1.24, 净化后 ME 为 0.92~1.13。表明采用 PRiME HLB 的净化效果显著, 可忽略基质效应对定量结果的影响。

表2 经 PRiME HLB 净化前后 4 种安乃近代谢物基质效应的比较

Table 2 Comparison of matrix effects for four dipyrone metabolites before and after purification with a PRiME HLB

Analyte	Beef (ME)		Pork (ME)		Goat (ME)		Milk (ME)	
	Before purifying	After purifying	Before purifying	After purifying	Before purifying	After purifying	Before purifying	After purifying
MAA	0.32	0.93	0.65	1.03	0.29	0.97	0.88	0.94
FAA	1.16	1.13	1.24	0.98	1.08	1.05	0.95	0.95
AAA	1.13	1.02	1.17	1.10	1.23	1.03	1.06	1.03
AA	0.42	1.09	0.58	1.04	0.45	1.06	0.74	0.92

2.3 质谱条件的优化

采用不接分析柱的方式向质谱系统注入 1 mg/L 标准溶液, 进样量为 1 μ L。确定各化合物的最佳质谱条件, 包括离子源温度、毛细管温度、加热模块温度、加热气流速、干燥气流速、氮气流速、选择特征离子对、Q1 和 Q3 电压、碰撞能量等质谱分析条件。各化合物的标准溶液和 UPLC 的流动相溶液混合进入 ESI 电离源, 在正负离子同时扫描方式下进行一级全扫描质谱分析, 其分子离子峰 $[M+H]^+$ 的响应值最高。在正离子模式下对 $[M+H]^+$ 峰进行子离子扫描, 得到主要子离子, 并选择响应值高的子离子进行碰撞能量的优化, 最终确定多反应监测的离子对及碰撞能量, 建立的质谱参数如表 1 所示。

2.4 色谱条件的优化

安乃近代谢物的极性较强, 采用乙腈直接进样易造成溶剂效应, 引起化合物在色谱柱上提前流出。本实验通过减少进样量的方式降低溶剂效应, 以 AA 为例, 考察了进样量分别为 0.5、1、2、5 μ L 时该化合物的色谱图, 发现随着进样量的增加, 化合物在色谱上的保留越来越差, 当进样量增至 2 μ L 时, 甚至有部分化合物随流动相流出。综合考虑, 最终采用进样量为 1 μ L, 以保证化合物的灵敏度和峰形。同时, 本实验分别选取 0.1% 甲酸溶液、5 mmol/L 乙酸铵水溶液 (pH 4.5) 作为水相 (A), 甲醇和乙腈分别作为有机相 (B), 对流动相进行优化。结果发现, 以 0.1% 甲酸溶液为水相, 乙腈为有机相, 采用时间梯度洗脱条件时, 4 种化合物的峰形较好 (见图 1)。

2.5 线性范围、检出限与定量下限

取适量 4 种化合物混合标准溶液用乙腈配制成不同质量浓度的标准工作液, 在“1.4”条件下依次测定, 以各组分的峰面积为纵坐标 (y), 质量浓度为横坐标 (x , μ g/L) 进行线性分析。在空白样品中添加低浓度的标准溶液, 按“1.3”步骤进行样品前处理后进样测定, 以信噪比 $S/N \geq 3$

和 $S/N \geq 10$ 确定检出限 (LOD) 和定量下限 (LOQ)。结果显示, 4 种化合物均在 0.5 ~ 50 μ g/L 范围内呈良好线性关系, 相关系数 (r) 均大于 0.996, LOD 和 LOQ 分别为 2、5 μ g/kg, 其线性方程、相关系数、检出限和定量下限如表 3 所示。方法的灵敏度适用于安乃近代谢物的定量分析。

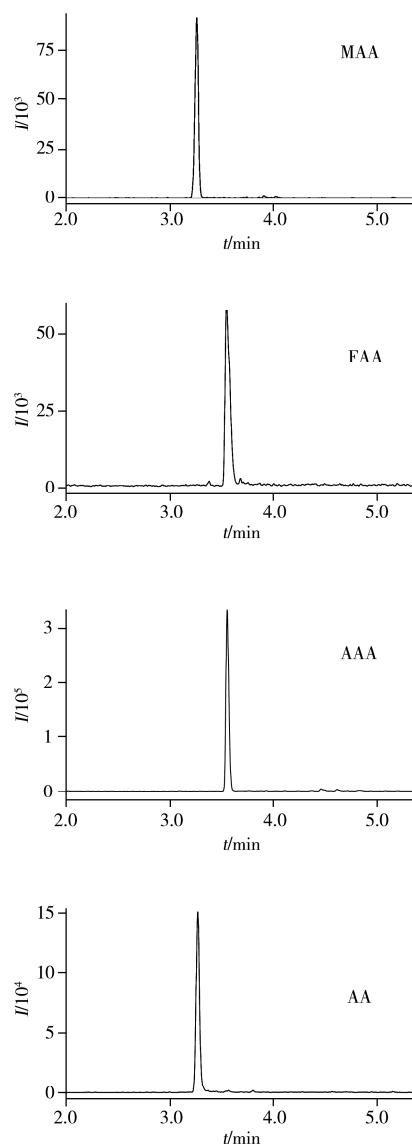


图1 4种安乃近代谢物的标准MRM色谱图
Fig. 1 MRM chromatograms of four dipyrone metabolites mixture standard

表 3 4 种安乃近代代谢物的线性范围、线性方程、相关系数(r)、检出限(LOD)及定量下限(LOQ)
Table 3 Linear ranges, linear equations, correlation coefficients(r), limits of detection (LOD) and limits of quantitation(LOQ) of four dipyrone metabolites

Analyte	Linear range($\mu\text{g/L}$)	Linear equation	r	LOD($\mu\text{g/kg}$)	LOQ($\mu\text{g/kg}$)
MAA	0.5~50	$Y = 86\ 267.8X - 44\ 603.2$	0.999 4	2	5
FAA	0.5~50	$Y = 25\ 599.8X + 35\ 787.5$	0.996 7	2	5
AAA	0.5~50	$Y = 80\ 506.8X + 103\ 144$	0.998 8	2	5
AA	0.5~50	$Y = 35\ 625.0X + 29\ 637.7$	0.999 1	2	5

2.6 回收率与相对标准偏差

选取了猪肉、牛肉、羊肉和牛奶空白基质样品,分别添加相当于 5、10 和 50 $\mu\text{g/kg}$ 3 个质量浓度的混合标准溶液,进行加标回收实验,每个水平测定 6 次,其回收率及相对标准偏差(RSD)见表 4。由表可知,方法的回收率为 75.1%~115%,RSD 为 1.6%~7.4%。

表 4 方法的加标回收率及相对标准偏差($n=6$)
Table 4 Spiked recovery and RSD of the method($n=6$)

Compound	Spiked ($\mu\text{g/kg}$)	Pork(猪肉)		Beef(牛肉)		Goat(羊肉)		Milk(牛奶)	
		Recovery(%)	RSD(%)	Recovery(%)	RSD(%)	Recovery(%)	RSD(%)	Recovery(%)	RSD(%)
MAA	5	80.5~94.8	4.5	82.4~97.4	6.1	75.1~92.5	6.7	89.4~106	4.9
	10	79.6~93.2	5.2	85.7~98.9	3.0	86.4~109	5.4	88.2~108	3.6
	50	88.4~95.5	2.1	83.2~111	5.8	81.5~103	5.5	92.1~110	2.9
FAA	5	79.4~93.6	4.8	80.8~115	7.4	83.6~105	4.7	84.6~105	4.8
	10	85.9~101	4.4	88.1~103	3.8	84.8~99.5	3.9	81.9~95.2	3.0
	50	77.4~96.6	4.2	89.3~96.3	1.7	87.5~98.4	1.9	84.6~99.0	3.8
AAA	5	86.5~104	5.2	76.9~96.2	7.2	87.6~104	4.4	85.3~96.8	2.8
	10	82.2~97.4	3.9	90.2~108	5.9	84.6~98.0	2.8	80.9~94.5	4.0
	50	96.4~103	2.0	87.6~104	4.2	91.0~98.2	1.6	89.4~102	3.0
AA	5	80.8~97.6	5.2	85.3~107	4.8	88.4~100	3.9	92.4~104	3.7
	10	84.1~106	4.9	87.2~104	4.2	93.4~106	3.4	90.6~103	3.7
	50	89.6~98.4	2.0	92.1~104	3.2	82.6~95.8	4.1	87.4~97.9	2.3

2.7 本方法与传统方法的比较

动物源食品中安乃近代代谢物的传统净化方式多采用固相萃取。将本方法与传统检测安乃近代代谢物的分析方法在测定基质类型、预处理过程中有机试剂用量、实验所需时间三方面进行了对比。由表 5 可知,本方法的前处理消耗试剂量较少、耗时短、成本低、适用基质范围广,且该种净化方式步骤简单,减少了人为操作误差。同时该方法还显著消除了基质对测定结果的影响,大大提高了方法的简便性。

表 5 本方法与文献方法的对比
Table 5 Comparison of the present method with the previously reported methods

SPE	Type of matrix	Amount of organic reagent(mL)	Time(min)	Reference
C_{18}	Beef, pork	76	120	[6]
MCX	Pork	39	150	[5]
MAX	Goat	17.5	120	[8]
PRiME HLB	Beef, pork, goat, milk	20	15	This method

2.8 实际样品的分析

采用本方法对送检的 15 份新鲜屠宰的猪肉样品进行测定,均未发现阳性样品。

3 结论

本研究应用 PRiME HLB 净化技术,以超高效液相色谱-串联质谱联用方法建立了动物源食品中 4 种安乃近代代谢物残留的检测方法。此方法的前处理净化效果显著,消除了基质效应对定量结果的影响。与传统净化方式相比,该净化技术简化了前处理过程,操作简单、快速,提高了工作效率。该方法的建立为动物源食品中安乃近代代谢物的残留检测提供了新的技术手段。

参考文献:

- [1] Gómez M J, Sirtori C, Mezcua M, Fernández-Alba A R, Agüera A. *Water Res.*, **2008**, 42(10): 2698–2706.
- [2] Szabó Z, Szoboszlai N, Jámbor E, Gulyás G, Lóránd T, Ohmacht R, Zúray G, Mihucz V G. *Microchem. J.*, **2013**, 107: 152–157.
- [3] European Agency for the Evaluation of Medicinal Products. EMEA/MRL/878/03 – FINAL, Metamizole Summary Report. European; The European Agency for the Evaluation of Medicinal Products, **2003**.
- [4] Maximum Residue Limit of Veterinary Drugs in Animal Derived Foods. Announcement No. 235 of the Ministry of Agriculture of the People's Republic of China (动物性食品中兽药最高残留限量. 中华人民共和国农业部 235 号公告), **2002**.
- [5] Li D, Wang H J, Zhang Y J, Shen X, Li Q. *Chin. J. Veter. Drug.* (李丹, 王鹤佳, 张玉洁, 沈昕, 李倩. 中国兽医杂志), **2018**, 52(6): 40–45.
- [6] Shen J C, Pang G F, Xie L Q, Chen P J, Han R Y. *Chin. J. Chromatogr.* (沈金灿, 庞国芳, 谢丽琪, 陈沛金, 韩瑞阳. 色谱), **2007**, 25(6): 844–847.
- [7] Li D, Zhang Y J, Shen X, Huang Y L, Li Q, Wang H J. *J. Food Saf. Qual.* (李丹, 张玉洁, 沈昕, 黄耀凌, 李倩, 王鹤佳. 食品安全质量检测学报), **2018**, 23(9): 6188–6194.
- [8] Zhang C, Xue F Q, Zhang L F, Zhang X X, Wang X Y, Jiang S X. *Food Sci.* (张崇, 薛飞群, 张丽芳, 张晓晓, 王霄畅, 江善祥. 食品科学), **2014**, 35(10): 158–162.
- [9] Shen J C, Xiao C G, Xie L Q, Xiong B B, Lin Y K, Pang G F. *Food Sci.* (沈金灿, 肖陈贵, 谢丽琪, 熊贝贝, 林燕奎, 庞国芳. 食品科学), **2010**, 31(4): 161–165.
- [10] Zhang C, Zhang L F, Cao S Q, Jiang Z L, Wu H, Yan M, Zhang X X, Jiang S X, Xue F Q. *Food Chem.*, **2016**, 196: 83–89.
- [11] Shen J C, Pang G F, Xie L Q, Lin Y K, Chen P J, Han R Y. *Chin. J. Anal. Chem.* (沈金灿, 庞国芳, 谢丽琪, 林燕奎, 陈沛金, 韩瑞阳. 分析化学), **2007**, 35(11): 1565–1569.
- [12] Zhang M M, Chen K, Hu Z Y, Shen Q, Wang H X. *J. Chromatogr. B*, **2018**, 1093/1094: 128–133.
- [13] Liang J J, Xu X Y, Ding Y Q, Chen W Q, Liu Z, Luo J W. *J. Instrum. Anal.* (梁晶晶, 徐潇颖, 丁宇琦, 陈万勤, 刘柱, 罗金文. 分析测试学报), **2018**, 37(2): 224–230.
- [14] Fu X Y, Zhang L, Kong X H, He Q, Li Y, Zhu Z B, Zou Y, Li J H, Shi Y J. *Chin. J. Anal. Lab.* (付晓燕, 张璐, 孔祥虹, 何强, 李莹, 朱振宝, 邹阳, 李建华, 施妍婧. 分析实验室), **2018**, 37(3): 338–342.
- [15] Wang J F, Du Z X, Wang Y, Cao Y, Ma L L, Feng Y C, Jia L, Fan X J. *Chin. J. Anal. Lab.* (王建凤, 杜振霞, 王颖, 曹沅, 马立利, 冯月超, 贾丽, 范筱京. 分析实验室), **2018**, 37(5): 599–603.
- [16] Guo M M, Li Z X, Wang Z, Pan M X, Wu H Y, Xing L H, Sun X. *J. Instrum. Anal.* (郭萌萌, 李兆新, 王智, 潘明轩, 吴海燕, 邢丽红, 孙晓. 分析测试学报), **2017**, 36(3): 337–342.
- [17] Wang Z, Shi Z W, Xi C X, Cao S R, Wang G M, Tang B B, Zheng J, Mu Z D. *J. Instrum. Anal.* (王智, 施宗伟, 郝存显, 曹淑瑞, 王国民, 唐柏林, 郑佳, 母昭德. 分析测试学报), **2017**, 36(10): 1219–1223.

(责任编辑: 龙秀芬)