

doi:10.11751/ISSN.1002-1280.2023.09.11

禽蛋和禽肉中兽药残留检测技术研究进展

洪璐^{1,2}, 刘书余^{1,2}, 郭亚文^{1,2}, 高鹏飞^{1,2}, 朱雅丽^{1,2}, 谢恺舟^{1,2*}

(1. 扬州大学动物科学与技术学院, 江苏扬州 225009; 2. 扬州大学, 教育部农业与农产品安全国际合作联合实验室, 江苏扬州 225009)

[收稿日期] 2023-04-07 [文献标识码] A [文章编号] 1002-1280 (2023) 09-0077-10 [中图分类号] S859.84

[摘要] 随着我国家禽产业的规模不断扩大, 兽药残留问题也更加严峻。兽药残留对人体与环境危害重大。现对目前禽蛋和禽肉中常见的兽药残留种类及最大残留限量进行综述, 探讨了(超)高效液相色谱法、(超)高效液相色谱-质谱法、气相色谱-质谱法和免疫学检测法、分子印迹技术、生物芯片技术、生物传感器检测法在禽蛋和禽肉中的应用价值, 以期兽药残留检测和监管提供依据。

[关键词] 禽蛋; 禽肉; 兽药残留; 前处理技术; 检测技术

Research Progress in the Detection Technology of Veterinary Drug Residues in Poultry Eggs and Meat

HONG Lu^{1,2}, LIU Shu-yu^{1,2}, GUO Ya-wen^{1,2}, GAO Peng-fei^{1,2}, ZHU Ya-li^{1,2}, XIE Kai-zhou^{1,2*}

(1. College of Animal Science and Technology, Yangzhou University, Yangzhou, Jiangsu 225009, China;

2. Joint International Research Laboratory of Agriculture & Agri-Product Safety, Yangzhou University, Yangzhou, Jiangsu 225009, China)

Corresponding author: XIE Kai-zhou, E-mail: yzxkz168@163.com

Abstract: With the continuous expansion of the domestic poultry industry, the problem of veterinary drug residue is more serious. Veterinary drug residues do great harm to the human body and environment. The types and maximum residue limits of veterinary drugs commonly found in poultry eggs and poultry meat were reviewed, and the application value of (ultra) high-performance liquid chromatography, (ultra) high-performance liquid chromatography-mass spectrometry, gas chromatography-mass spectrometry, immunological detection, molecular imprinting technology, biochip technology and biosensor detection in poultry eggs and poultry meat was discussed. To provide the basis for the detection and supervision of veterinary drug residues.

Key words: poultry eggs; poultry meat; veterinary drug residue; pretreatment technology; detection technology

近几年我国肉制品的需求增长很快, 随着人均收入的提高及肉产品成本的下降, 人们对于日常所

基金项目: 国家现代农业产业技术体系专项(CARS-41); 江苏高校优势学科建设工程资助项目(PAPD); 江苏省(扬州大学)研究生科研与实践创新计划项目(KYCX22_3526); 江苏省科协青年科技人才托举工程(TJ-2023-093)

作者简介: 洪璐, 硕士研究生, 从事畜产品质量安全与营养品质评价研究。

通讯作者: 谢恺舟, E-mail: yzxkz168@163.com

需肉制品的数量及质量增高明显,其中,禽类产品是优质蛋白的重要来源之一^[1],其含有丰富的蛋白质、维生素及矿物元素,容易被人体吸收利用,鸡蛋中更是富含卵磷脂,有营养大脑神经以及减轻肝损害等的作用,是人们日常饮食中不可缺少的一部分。同时,伴随而来的食品安全问题也就越加严峻。在养殖业中,兽药是畜禽疾病防治过程中最基础且最关键的一道环节,它可以保证动物健康生长和生命安全,同时决定着一个企业的兴衰以及消费者的健康。合理、科学地使用兽药是每一个养殖企业经营的基本原则。但随着人们对禽类产品的需求日渐增长,部分养殖企业,尤其是小型养殖户为了谋取利益,不遵守休药期、不按规定用药以及在饲料中过度添加某些药物而导致禽类产品中兽药残留超标问题日益加重^[2]。为了监测和控制禽蛋和禽肉中有害物质的残留,发展了不同的样品前处理技术及兽药残留检测技术,为大众和环境的安全作保障。综上所述,本文综述了禽蛋和禽肉中兽药残留常用的前处理方法和测定方法,并对兽药残留检测技术未来的发展进行了展望。

1 我国禽蛋和禽肉的兽药残留现状

兽药残留种类主要包括抗生素类、磺胺类、呋喃类、抗寄生虫类、激素和β-兴奋剂等药物的残留^[3]。其中,以促进禽类生长的激素、抗生素、磺胺类等药物的残留最为常见^[4]。兽药残留的超标,可能引发慢性中毒和肠道菌群失调,甚至会产生“三致”(致畸形、致癌变、致突变)作用^[5]。

禽蛋、禽肉中兽药残留主要来自家禽促生长时期和疾病防控时期,在这两个期间,很多养殖户因未按规定用药,未严格执行休药期等原因,导致动物源性食品中的兽药残留问题愈演愈烈,从而使药物原型及其代谢物蓄积在家禽体内,并转移到禽肉及禽蛋产品中^[6]。

2022 年,在我国农业农村部组织开展了的农产品质量安全监测工作中,抽检了 31 个省份的屠宰场和养殖场共 833 个、农产品批发市场 1191 个。抽检结果显示,畜禽产品的合格率为 99.1%。其中,禽肉和禽蛋类的抽检合格率分别为 98.7% 和 98.1%,合格率较其他的农产品低。

禽蛋、禽肉中的兽药残留种类繁多,问题不断加剧的原因还包括养殖规模持续扩大、兽药成分问题、检测水平不够及市场监管不到位等几个方面^[7]。本文结合 GB 31650-2019、GB 31650-2022 对禽蛋、禽肉中残留兽药及药物的最大残留限量进行了总结,如表 1。

表 1 GB 31650-2019、GB 31650-2022 中规定的禽蛋和禽肉中兽药残留的最大残留限量

Tab 1 MRLs of veterinary drug residues in poultry eggs and poultry meat in GB 31650-2019 GB、31650-2022

兽药种类 Types of veterinary drugs	兽药名称 Category of veterinary drugs	禽蛋/ (μg·kg ⁻¹) Poultry eggs	禽肉/ (μg·kg ⁻¹) Poultry meat
抗生素	阿莫西林	4	50
	氨苄西林	4	50
	青霉素/普鲁卡因青霉素	4	50
	氯唑西林	4	300
	苯唑西林	4	300
	多西环素	10	100
	土霉素/金霉素/四环素	400	200
	杆菌肽	—	500
	黏菌素	—	150
	维吉尼亚霉素	—	100
	阿维拉霉素	10	200
	红霉素	50	100
	吉他霉素	—	200
	螺旋霉素	—	200
	替米考星	10	150
	泰乐菌素	300	100
	泰万菌素	200	—
	赛杜霉素	—	130
	氟苯尼考	10	100
	甲砜霉素	10	50
	庆大霉素	—	100
	卡那霉素	10	100
	新霉素	500	500
	大观霉素	2000	500
	链霉素/双氢链霉素	—	600
	林可霉素	50	200
	磺胺二甲嘧啶	10	100
	磺胺类	10	100
合成抗菌药	泰妙菌素	1000	100
	甲氧苄啶	10	50
	达氟沙星	10	200
	二氟沙星	10	300
	恩诺沙星	10	100
	氟甲喹	10	500
	噁喹酸	10	100
	沙拉沙星	5	10
	氨苯肿酸/洛克沙肿	500	500

续表			
兽药种类 Types of veterinary drugs	兽药名称 Category of veterinary drugs	禽蛋/ ($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$) Poultry eggs	禽肉/ ($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$) Poultry meat
抗寄生虫药	阿苯达唑	—	100
	越霉素 A	—	2000
	芬苯达唑	1300	50
	氟苯达唑	400	200
	左旋咪唑	5	10
	哌嗪	2000	—
	氨丙啉	—	500
	氯羟吡啶	—	5000
	癸氧喹酯	—	1000
	地克利珠	10	500
	二硝托胺	—	3000
	乙氧酰胺苯甲酯	—	500
	常山酮	—	100
	马度米星铵	—	240
	莫能菌素	—	10
	甲基盐霉素	—	15
	尼卡巴嗪	—	200
	氯苯胍	—	100
	盐霉素	—	600
	托曲珠利	10	100
	环丙氨嗪	—	50
	溴氰菊酯	30	30
	倍硫磷	—	100
	马拉硫磷	—	4000

“—”代表未规定。
“—” means no regulations.

2 样品前处理方法

禽类产品中蛋白质含量较高,尤以鸡蛋中蛋白质含量最为丰富,在检测过程中会对目标物的萃取净化造成干扰,因此,选择适宜的样品前处理方法对残留药物的定性和定量至关重要^[8]。前处理的步骤主要包括萃取、纯化、分离、浓缩和复溶等。萃取和纯化是最为关键的两步。

目前,在禽类产品中运用较多的有液-液萃取(LLE)、固相萃取(SPE)、加速溶剂萃取(ASE)、QuEChERS^[9]和基质固相分散萃取(MSPDE)等。

2.1 液-液萃取 液-液萃取,也称两相溶液提取,因样品中各成分在两种互不相容的溶液中存在分配系数差异而能达成分离效果的萃取方法。萃取基本过程是将萃取液加入到样品溶液中充分混合后,因浓度高低促使这些成分从样品溶液中向萃取液中扩散,从而达到分离效果。曲良娇等^[10]

用5%三氯醋酸来萃取鸡肉中的五氯酚,经过五氯酚钠(SLC)专用柱进化后,再用气相色谱-质谱内标法进行样品分析。五氯酚在5.05~202 $\mu\text{g}/\text{L}$ 浓度内线性良好, $r=1.000$,检出限为0.06 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。Wang等^[11]利用乙酸乙酯提取鸡蛋中喹诺酮类和磺胺类药物,经过两次浓缩过滤后,再用超高效液相色谱-质谱联用法对样品进行检测分析,结果显示,线性相关系数均在0.9990以上,检出限为2~10 $\mu\text{g}/\text{kg}^{-1}$ 。该法具有分离效果好、回收率高和适用性高等优点,但繁琐费时,萃取溶剂易挥发,因此常与其他前处理方法配合应用。

2.2 固相萃取 固相萃取是一种液相色谱分离技术,是采用固体吸附剂将液体样品中的目标物与干扰物分离,从而达到目标物的分离和集合。此方法已被许多领域广泛应用。傅红雪等^[12]运用1:1的乙腈-1%三氯乙酸溶液混合液为提取剂,经Hilic Plus亲水色谱柱净化后,运用全自动固相萃取结合液相色谱-串联质谱法测定了鸡肉中7种抗病毒药物残留。秦宇等^[13]建立了用1%甲酸乙腈为萃取剂,经新型固相萃取柱净化后结合超高效液相色谱-串联质谱法测定了鸡蛋中克伦特罗、恩诺沙星和金刚烷胺等12种禁用兽药的残留量,为鸡蛋中多种兽药残留分析检测提供了规范的依据。该法具备简单、快速和通量高等优点,但固相萃取柱成本高且对环境有一定的污染。

2.3 加速溶剂萃取 加速溶剂萃取是一种只需利用少量基质,在一定的高温和压力下自动萃取基质中有机物的技术^[14]。张健威等^[15]建立了一种以甲醇和0.1 mol/L McIlvaine缓冲液为萃取溶剂,利用加速溶剂萃取-固相萃取-超高效液相色谱/三重四极杆质谱法测定沉淀物中10种磺胺类抗生素的分析方法,结果表明,该方法检出限为0.034~0.396 ng/g;平均回收率67.8%~109.8%之间,可应用于沉淀物中磺胺类抗生素的残留检测。该法具有操作简单、省时、回收率显著和对基质破坏度小等优点^[16],但设备价格昂贵,成本较高^[17]。

2.4 QuEChERS QuEChERS是由美国农业部开发的一种样品前处理方法,广泛应用于农畜产品的

检测,具有快速、高效和安全等特点^[18],但过程中易受基质干扰。QuEChERS 法净化的基本过程是向水溶液中的固体样品加盐后经过乙腈萃取,接着经过液固萃取(也称分散机制萃取)去除乙腈中存在的大部分干扰物,将萃取后的样品直接进行质谱分析。吕警^[19]以 QuEChERS 法萃取和净化鸡肉样品,并结合液相色谱-串联质谱法(LC-MS/MS)对样品进行检测分析,建立了一种可以快速测定鸡肉中 8 种喹诺酮类药物残留量的方法。该法简单、高敏、净化效果明显、所得平均回收率为 89.7%~97.7%。图雅等^[20]用 QuEChERS 前处理法,结合超高效液相色谱-质谱法,建立了一种能够快速筛查禽蛋(鸡蛋、鸭蛋和鹅蛋等)中 2 种四环素类药物残留的方法,该方法灵敏度及准确度良好,所得平均回收率为 80.5%~104.2%。

表 2 不同样品前处理方法优缺点对比

Tab 2 Comparison of advantages and disadvantages of different sample pretreatment methods methods		
前处理方法 Pretreatment method	优点 Advantage	缺点 Disadvantage
液-液萃取法	分离效果好;回收率高;适用性高	操作繁琐;费时;萃取溶剂易挥发
固相萃取法	操作方便;分离时间短;溶剂用量少	固相萃取柱成本高;对环境的污染
凝胶渗析萃取法	效果好;操作简单;操作条件温和	成本高,过程时间较长,易挥发
QuEChERS 法	回收率高,试剂消耗低;分析范围广;污染小	净化效果不足;易受基质干扰
基质固相分散萃取	操作简单;高效;消耗试剂少	局限性高;固相萃取柱成本高

2.6 其他样品前处理方法 现今,随着兽药残留检测技术的不断发展,已广泛应用的样品前处理方法还包括震荡萃取(OE)、超声萃取(UE)、旋涡混合萃取和沉淀法等^[24]。这些方法都有精确度高,耗时短及成本低的优点。

3 常用检测方法

目前,禽蛋、禽肉中兽药残留常用的传统检测方法有(超)高效液相色谱法[(U)HPLC]、(超)高效液相色谱-质谱法[(U)HPLC-MS]、气相色谱-质谱法(GC-MS)等^[25]。

3.1 (超)高效液相色谱法 (超)高效液相色谱对于分子量高、气化难度大、热波动不稳定及高沸点兽药的测定效果好。该法具备灵敏度高、分离效果好和对温度变化不敏感等优点。高效液相色谱

2.5 基质固相分散萃取 基质固相分散萃取(MSPDE)是一种将萃取物与待测样品置于同一容器内研磨为半干状态的混合物后作为材料装柱,然后用不同的溶剂洗脱待测的残留物^[21]。该法是美国Barker教授提出并进行了理论解释的一种样品前处理技术^[22]。Zhang等^[23]以分子印迹基质固相分散萃取技术并结合高效液相色谱(HPLC)法对样品进行检测分析,建立了一种可以系统监测鸡肉中奥拉喹多克的便捷有效的分析技术,该法具有很好的识别性和选择性,奥拉喹多司在1.0和2.0 μg/g⁻¹水平的回收率范围在85.3%~93.2%之间。该法具有操作简单,高效和试剂消耗少等优点,在处理过程中可有效的减少样品损失,但成本高、局限性高。表2总结了以上五种前处理方法的优缺点对比。

谱-检测器主要有紫外线检测器(UV)、荧光检测器(FD)、化学发光检测器(CD)和蒸发光散射检测器(ELSD)等,可根据检测目标选择合适的检测器。我国《食品安全国家标准鸡可食性组织中地克珠利残留量的测定高效液相色谱法》(农业部1927号公告-21-2013)^[26]、《食品安全国家标准鸡可食性组织中尼卡巴嗪残留量的测定高效液相色谱法》(农业部1927号公告-11-2013)^[27]中规定对鸡蛋中氟喹诺酮类药物、磺胺喹噁啉和泰乐菌素的残留测定运用高效液相色谱法。刘畅等^[28]以三氯乙酸-乙腈为提取剂,运用固相萃取结合高效液相色谱测定了禽类可食性组织和蛋中氨丙啉残留,该方法精准度高,可用于禽肉及禽蛋中氨丙啉残留的检测。

3.2 (超)高效液相色谱-质谱法 近年来,(超)高效液相色谱-质谱法的发展很快,具有灵敏度高、分析速度快、样品用量少和专属性强等优点^[29],因此,应用领域越来越广泛,随着该技术的发展,我国相关标准中对兽药残留的检测大多运用液质联用。随着动物源性食品中的兽药残留越发复杂,出现多种或未被发现的化学物质残留,我国需要发展更加全面的检测技术和仪器,提升识别手段。陈涛等^[30]建立了一种基于超高效液相色谱-质谱法同时测定鸡蛋、鸡肉、猪肉中酰胺醇类药物残留量的方法。晏亮等^[31]运用 5% 甲酸乙腈溶液为提取剂,运用 QuEChERS 法结合超高效液相色谱四极杆飞行时间质谱法,建立了同时测定蛋及蛋制品中 5 大类 49 种药物残留的方法。该方法快速又简便,大大提高了工作效率。奚照寿等^[32]以乙酸乙酯-乙腈-氨水为提取剂结合高效液相色谱-串联质谱法,建立了鹌鹑蛋和鸽蛋中氯霉素、甲砒霉素、氟苯尼考及其代谢产物氟苯尼考胺多残留的同时检测方法。

3.3 气相色谱-质谱法 气相色谱-质谱法结合了气相色谱和质谱的不同特性以鉴别样品中不同物质,其原理是将待测样本分子电离成不同质量电荷比的带电离子进行分离^[33]。目前,该法主要用于检测食品中易挥发的小分子痕量化合物,其在兽药残留方面的应用没有上述两种方法广泛。我国《食品安全国家标准 鸡肌肉组织中氯羟吡啶残留量的测定 气相色谱-质谱法》(GB 29699 -

2013)^[34]规定了鸡肌肉组织中氯羟吡啶残留量的检测标准。邢银英等^[35]以三重四极杆气相色谱-串联质谱法结合 QuEChERS 法,建立了禽源类肉及其肉制品中氟虫腈及 3 种代谢药物残留的分析方法,该法准确度和灵敏度均很高。

4 其他检测方法

常用的检测方法所需仪器较大,耗费高且检测环境有很大的局限性。如今,兽药残留检测技术不断的向着新的方向发展,国内外已广泛应用于食品中的快速检测技术包括免疫学检测法、分子印迹技术、生物芯片技术、生物传感器检测法等。

4.1 免疫学检测法 免疫学检测法是一种广泛应用于农药残留的检测的方法,该法包括联酶免疫检测法、荧光免疫检测法、胶体金免疫检测法和免疫传感器技术^[36]。以酶联免疫检测法为例,其检测原理如图 1,该法具有操作简单、省时和准确率高等特点^[37]。何方洋等^[38]运用化学发光免疫分析法、酶联免疫分析法和胶体金免疫层析法三种免疫学检测法对动物源性食品(鸡肉等)中的呋喃唑酮进行检测,结果表明,发光免疫分析法、酶联免疫分析法、胶体金免疫层析法对呋喃唑酮代谢物的检测限分别为 0.01、0.02、50 ng/L,发光免疫分析法和酶联免疫分析法添加回收试验的变异系数范围分别为小于 15.0% 和小于 8.0%。因此,不论是实验室检测还是户外的批量样本检测,不同的免疫学检测法在不同的应用条件下各有优势。

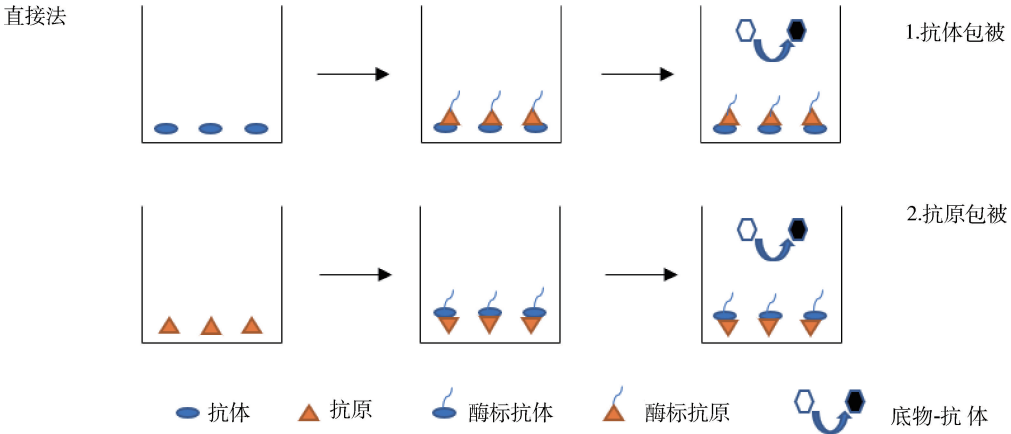


图 1 酶联免疫检测法原理图

Fig 1 Schematic diagram of enzyme-linked immunosorbent assay

4.2 分子印迹技术 分子印迹技术(MIT)是指用化学方法合成对目标物具有特异选择性聚合物的过程^[39],是利用模板记忆在聚合物基质中形成选择性位点创建分子印迹聚合物(MIPs)的技术^[40]。其检测原理如图 2,该法具有灵敏度高、操作便捷、成本低、稳定性好等特点^[41]。李桥^[42]等运用分子印迹技术,以金属有机骨架为稳定离子,通过皮克林乳液法制备了分子印迹中空微球,可用于检测动物性食品中的阿莫西林,结果表明,分子印迹中空微球对阿莫西林有较大的吸附容量,吸附

容量在 318 K,100 mg/L 的阿莫西林溶液中达到 0.1376 mmol/g。Ma 等^[43]用二甲胺四环素的分子印迹纳米聚合物聚合在金属有机骨架材料表面,以该种新型复合材料为吸附剂,建立了分散固相微萃取方法,用于鸡肉中 7 种四环素的超高效液相色谱测定方法。该复合材料对 7 种四环素具有较高的吸收能力,回收率可达 92% 以上,可重复使用 8 次。7 种药物的检出限为 0.2 ~ 0.6 ng/g,因此,该方法可用于肉类中四环素残留量的多重检测。

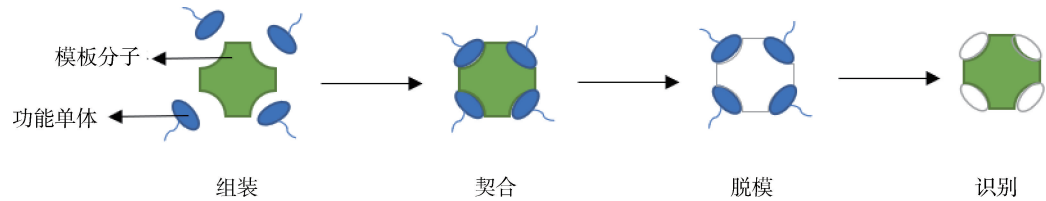


图 2 分子印迹技术原理图

Fig 2 Schematic diagram of molecular imprinting technology

4.3 生物芯片技术 生物芯片技术是一种利用杂交技术对食品基因进行检测的方法^[44],此项技术实现了便携微型自动化处理^[45],已广泛的应用于食品安全检测领域中。生物芯片的种类包括基因芯片、蛋白质芯片、组织芯片和细胞芯片等^[46]。以蛋白质芯片为例,其检测步骤如图

3,相比其他生物技术,生物芯片技术具有消耗试剂少、结果可比性高等特点^[47]。郭志红^[48]运用蛋白芯片技术检测了鸡肉中盐酸克仑特罗、恩诺沙星、磺胺二甲嘧啶等的残留,结果表明每种药物在鸡肉中的回收率均在 60% ~ 120%,变异系数在 25% 以内。

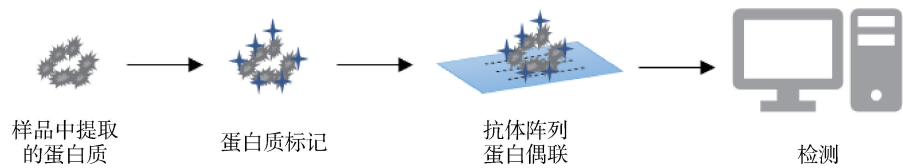


图 3 蛋白质芯片检测流程图

Fig 3 Protein chip detection flowchart

4.4 生物传感器检测法 生物传感器主要是由识别元件(如抗原抗体)和信号转换器组成^[49],可形象的如图 4 所示。该法具有准确性高、处理时间短和成本低等特点,该技术在国外发展很快,基本已广泛应用到各行各业中^[50]。刘卫华^[51]等运用氟苯尼考多克隆抗体成功构建了一种基于石墨烯-壳

聚糖复合修饰材料的电化学免疫传感器技术检测鸡肉、鸡蛋中的氟苯尼考残留,结果表明,每次的回收率均在 76.90% ~ 94.30% 之间。由此可见,生物传感器检测法可应用于大批量的样本检测,且检测的地域局限小。

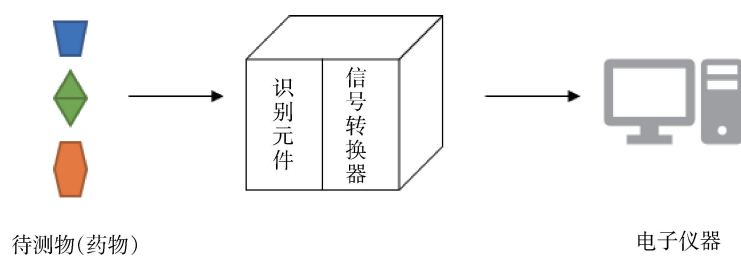


图 4 生物传感器检测法原理图

Fig 4 Schematic diagram of biosensor detection method

5 展 望

兽药残留种类和途径十分复杂,目前已广泛应用于兽药残留检测的技术中,不论是前处理技术,还是样品的检测技术,都存在着一些如仪器体积大,造价高,检测地受限等缺点。我国虽已逐渐开始普及生态养殖,但现下这些绿色养殖法因成本、时间和技术等问题还未完全普及,应用并不广泛。因此,规范养殖、严格按规定使用兽药、加强市场监管和发展兽药残留检测技术手段仍然十分重要。微型、高通量、低耗材、低成本的兽药残留快速检测技术亟待完善,应用的领域也将更加广泛。

参考文献:

[1] 曾 勇,董文婷,周 青,等.液相色谱-串联质谱法测定鸡蛋和鸡肉中酰胺醇类药物残留[J].农产品质量与安全,2019,(03):35-38.

Zeng Yong, Dong Wenting, Zhou Qing, *et al*. Determination of amphenicols drugs residues in poultry eggs and meat by LC-MS/MS[J]. Quality and security of agricultural products, 2019, (03):35-38.

[2] 冯慧慧,杨亚琴,余明霞,等.高效液相色谱-串联质谱法快速测定鸡肉中多种兽药残留[J].现代食品,2021,(11):180-185.

Feng Huihui, Yang Yaqin, Yu Mingxia, *et al*. Rapid Determination of Veterinary Drug Residues in Chicken by High Performance Liquid Chromatography Tandem Mass Spectrometry[J]. Modern food, 2021, (11):180-185.

[3] Parmar Jagdish Kumar, Chaubey Kundan Kumar, Gupta Vikas, *et al*. Assessment of various veterinary drug residues in animal originated food products[J]. Veterinary World, 2021, 6 (14): 1650-1664.

[4] 赵云峰.固相萃取-超高效液相色谱-串联质谱法测定畜产

品中残留的 22 种磺胺类药物[J].中国食品卫生杂志,2018, 30(01):28-34.

Zhao Yunfeng. Determination of 22 sulfonamides in livestock products by ultra high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry coupled with solid phase extraction[J]. Chinese Journal of Food Hygiene, 2018, 30(01):28-34.

[5] 陆必科.胶体金免疫层析技术在兽药残留检测中的应用及发展前景[J].饲料博览,2014,(07):46-50.

Lu Bike. Immune Colloidal Gold Technique in the Application and Development Prospect in the Detection of Veterinary Drug Residues[J]. Feed Expo, 2014, (07):46-50.

[6] 马颖清,王 敏,丰东升,等.我国禽蛋兽药残留限量标准和检测标准现状分析[J].上海农业科技,2022,(06):37-39.

Ma Yingqing, Wang Min, Feng Dongsheng, *et al*. Analysis of the status quo of poultry and egg veterinary drug residue limit standards and detection standards in China[J]. Shanghai Agricultural Science and Technology, 2022, (06):37-39.

[7] 侯红英.鸡蛋中兽药残留现状及检测技术[J].食品安全导刊,2022,(06):157-159.

Hou Hongying. Current Situation and Detection Technology of Veterinary Drug Residues in Eggs[J]. Safety Guide, 2022, (06): 157-159.

[8] 王 娇,李庆霞,韵小娟,等. QuEChERS-高效液相色谱-串联质谱法测定鸡蛋中 38 种药物残留[J].食品安全质量检测学报,2020,(08):2503-2510.

Wang Jiao, Li Qingxia, Yun Xiaojuan, *et al*. Determination of 38 kinds of veterinary drugs in eggs by QuEChERS and high performance liquid chromatography tandem mass spectrometry[J]. Journal of Food Safety and Quality Testing, 2020, (08):2503-2510.

[9] 马颖清,丰东升,王 敏,等.禽蛋产品中兽药残留检测技术的研究发展[J].食品安全导刊,2022,(18):161-164.

Ma Yingqing, Feng Dongsheng, Wang Min, *et al*. Research Progress on Detection Technology of Veterinary Drug Residues in Eggs Products[J]. Safety Guide, 2022, (18):161-164.

- [10] 曲良娇,凌莉,梁素丹. 液液萃取-气相色谱-质谱内标法测定鸡肉中五氯酚及其钠盐残留[J]. 中国卫生检验杂志, 2022,32(11):1311-1314.
- Qu Liangjiao, Ling Li, Liang Sudan. Determination of pentachlorophenol and its sodium residue in chicken by liquid-liquid extraction-gas chromatography-mass spectrometry internal standard method[J]. Chinese Journal of Health Laboratory, 2022,32(11):1311-1314.
- [11] Wang Rui, Zhang Chenxi, Li ZhuoYang, *et al.* Detection of fluoroquinolone and sulfonamide residues in poultry eggs in Kunming city, southwest China[J]. Poultry Science, 2022,101(6):101892-101899.
- [12] 傅红雪,陈万勤,陈碧莲,等. 全自动固相萃取-液相色谱-串联质谱法测定鸡肉中 7 种抗病毒药物残留量[J]. 理化检验-化学分册, 2021,57(12):1082-1088.
- Fu Hongxue, Chen Wanqin, Chen Bilian, *et al.* Determination of 7 Antiviral Drugs Residues in Chicken by Automatic Solid Phase Extraction-Liquid Chromatography-Tandem Mass Spectrometry[J]. Physical and chemical testing-chemical fascicles, 2021, 57(12):1082-1088.
- [13] 秦宇,葛宇. 固相萃取-超高效液相色谱-串联质谱法同时测定禽蛋中 12 种禁用兽药残留[J]. 食品安全质量检测学报, 2022,13(7):2258-2266.
- Qin Yu, Ge Yu. Simultaneous determination of 12 kinds of banned veterinary drugs residues in poultry eggs by solid phase extraction-ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry[J]. Journal of Food Safety and Quality Testing, 2022,13(7):2258-2266.
- [14] 程嘉雯,田永,李春欣,等. 加速溶剂萃取技术应用于二噁英检测的研究进展[J]. 环境化学, 2021, 40(9):2736-2746.
- Cheng Jiawen, Tian Yong, Li Chunxin, *et al.* Accelerate the research progress of solvent extraction technology in dioxin detection[J]. Environmental Chemistry, 2021,40(9):2736-2746.
- [15] 张健威,梁延鹏,覃礼堂,等. 加速溶剂萃取-固相萃取-超高效液相色谱/三重四极杆质谱法测定沉积物中 10 种磺胺类抗生素残留[J]. 分析科学学报, 2023,39(01):54-60.
- Zhang Jianwei, Liang Yanpeng, Qin Litang, *et al.* Determination of 10 Sulfonamide Antibiotics in Sediments by Accelerated Solvent Extraction-Solid Phase Extraction-Ultra Performance Liquid Chromatography-Tandem Mass Spectrometry[J]. Journal of Analytical Sciences, 2023,39(01):54-60.
- [16] Kinross A D, Hageman K J, Doucette W J, *et al.* Comparison of Accelerated Solvent Extraction (ASE) and Energized Dispersive Guided Extraction (EDGE) for the analysis of pesticides in leaves[J]. Chromatogr A. 2020,(1627):461414.
- [17] 马蕊,叶明良,郜洪文. 环境样品中有机磷农药测定方法研究进展[J]. 化学工程师, 2023,37(03):60-64.
- Ma Rui, Ye Ming-liang, Gao Hong-wen. Research progress in determination of organophosphate pesticides in environmental samples[J]. Chemical Engineer, 2023,37(03):60-64.
- [18] Nho-Eul Song, Jun Young Lee, Ahmad Rois Mansur, *et al.* Determination of 60 pesticides in hen eggs using the QuEChERS procedure followed by LC-MS/MS and GC-MS/MS[J]. Food Chemistry, 2019,(298):125050.
- [19] 吕警. QuEChERS 结合液相色谱-串联质谱法快速测定鸡肉中喹诺酮类残留[J]. 食品界, 2021,(08):108-109.
- Lu Jing. QuEChERS combined with liquid chromatography-tandem mass spectrometry for rapid determination of quinolone residues in chicken[J]. Food industry, 2019,(298):125050.
- [20] 图雅,田金凤,孙卓然,等. QuEChERS-液质联用法测定鸡蛋中 2 种四环素类残留[J]. 食品工业, 2021,42(05):441-444.
- Tu Ya, Ting Jinfeng, Sun Zhuoran, *et al.* Determination of 2 Kinds of Tetracycline Residues in Eggs by QuEChERS-LC/MS[J]. Food industry, 2021,42(05):441-444.
- [21] 申佳璐,王梁,赵青余,等. 畜禽肉及鸡蛋中多种兽药残留前处理技术研究进展[J]. 食品安全质量检测学报, 2022,13(15):4840-4849.
- Shen Jialu, Wang Liang, Zhao Qingyu, *et al.* Research progress on pretreatment technology of multiple veterinary drug residues in meat and eggs[J]. Journal of Food Safety and Quality Testing, 2022,13(15):4840-4849.
- [22] 邓龙,周思,黄佳佳,等. 食品中农兽药残留检测样品前处理方法[J]. 食品工业, 2023,44(02):231-234.
- Deng Long, Zhou Si, Huang Jiajia, *et al.* The Sample Pretreatment Techniques for Detection of Pesticide and Veterinary Drug Residues in Food[J]. food industry, 2023,44(02):231-234.
- [23] Zhang Hongyan, Wei Yuwei, Zhou Jianhua, *et al.* Preparation and Application of a Molecular Imprinting Matrix Solid Phase Dispersion Extraction for the Determination of Olaquinox in Chicken by High Performance Liquid Chromatography[J]. Food Analytical Methods, 2013,3(06):915-921.
- [24] 李艳,李彤,张丹娜. 水产品中兽药残留现状及检测方法[J]. 养殖与饲料, 2022,21(04):129-130.
- Li Yan, Li Tong, Zhang Danna. Status quo and detection methods of veterinary drug residues in aquatic products[J]. breeding and feed, 2022,21(04):129-130.

- [25] Min Jia, Zhongbo E, Fei Zhai, *et al.* Rapid Multi – Residue Detection Methods for Pesticides and Veterinary Drugs [J]. *Molecules*, 2020, 25 (16) : 3590.
- [26] 中华人民共和国农业部. 食品安全国家标准鸡可食性组织中地克珠利残留量的测定高效液相色谱法: 农业部 1927 号公告 – 21 – 2013 [S].
Ministry of Agriculture of the People's Republic of China. Determination of Deculide residue in chicken edible tissues of national food safety standard High – performance liquid chromatography: Announcement No. 1927 of the Ministry of Agriculture – 21 – 2013 [S].
- [27] 中华人民共和国农业部. 食品安全国家标准鸡可食性组织中尼卡巴嗪残留量的测定高效液相色谱法: 农业部 1927 号公告 – 11 – 2013 [S].
Ministry of Agriculture of the People's Republic of China. Determination of procarbazine residue in chicken edible tissues according to the national food safety standard High – performance liquid chromatography: Announcement No. 1927 of the Ministry of Agriculture – 11 – 2013 [S].
- [28] 刘畅, 王蓓, 李康, 等. 固相萃取 – 高效液相色谱法测定禽类可食性组织和蛋中氨丙啉残留 [J]. *现代食品科技*, 2023, 06 (39) : 1 – 10.
Liu Chang, Wang Bei, Li Kang, *et al.* Determination of Amprolium Residue in Poultry Edible Tissues and Eggs by Solid Phase Extraction Combined with High Performance Liquid Chromatography [J]. *Modern Food Science and Technology*, 2023, 06 (39) : 1 – 10.
- [29] 汪辉. 液相色谱串联质谱法在食品中有毒有害物质分析中的应用研究 [D]. 湖南大学, 2013.
Wang Hui. Application research of analyzing toxic and harmful substances in food by high performance liquid chromatography – tandem mass spectrometry (HPLC – MS/MS) [D]. Hunan University, 2013.
- [30] 陈涛, 倪建秀, 陈桂芳, 等. 超高效液相色谱 – 串联质谱检测鸡蛋、鸡肉和猪肉中酰胺醇类药物残留 [J]. *畜牧与兽医*, 2020, 52 (06) : 66 – 75.
Chen Tao, Ni Jianxiu, Chen Guifang, *et al.* Simultaneous determination of amphenicol residues in eggs, chicken and pork by liquid chromatography – tandem mass spectrometry [J]. *Animal husbandry and veterinary medicine*, 2020, 52 (06) : 66 – 75.
- [31] 晏亮, 易路遥, 章红, 等. 蛋及蛋制品中多药物残留快速检测技术研究 [J]. *食品安全质量检测学报*, 2020, 11 (11) : 3473 – 3481.
Yan Liang, Yi Luyao, Zhang Hong, *et al.* Studies of rapid determination for multi – residues of drugs in eggs and egg products [J]. *Journal of Food Safety and Quality Inspection*, 2020, 11 (11) : 3473 – 3481.
- [32] 奚照寿, 陈长宽, 袁华根, 等. 高效液相色谱 – 串联质谱法检测鹌鹑蛋及鸽蛋中氯霉素类药物残留 [J]. *扬州大学学报 (农业与生命科学版)*, 2019, 06 (40) : 86 – 92.
Xi Zhaoshou, Chen Changkuan, Yuan Huagen, *et al.* Study on determination of chloramphenicol residues in quail eggs and pigeon eggs by high performance liquid chromatography – tandem mass spectrometry [J]. *Journal of Yangzhou University (Agriculture and Life Sciences)*, 2019, 06 (40) : 86 – 92.
- [33] 王睿, 方菁. 禽蛋中农药残留检测方法研究进展 [J]. *中国家禽*, 2021, 43 (02) : 82 – 88.
Wang Rui, Fang Jing. Research Progress on Laboratory Analytical Methods of Pesticide Residues in Poultry Eggs [J]. *China Poultry*, 2021, 43 (02) : 82 – 88.
- [34] 中华人民共和国农村部, 中华人民共和国国家卫生和计划生育委员会. 食品安全国家标准 鸡肌肉组织中氯羟吡啶残留量的测定气相色谱 – 质谱法: GB 29699—2013 [S].
Ministry of Rural Affairs of the People's Republic of China, National Health and Family Planning Commission of the People's Republic of China. National food safety standard Determination of chloropyridine residue in chicken muscle tissue by gas chromatography – mass spectrometry: GB 29699—2013 [S].
- [35] 邢银英, 陈建, 张碧宇, 等. GC – MS/MS 测定禽源类肉及其肉制品中氟虫腈和 3 种代谢物残留 [J]. *农产品加工*, 2022, (10) : 74 – 78.
Xing Yinying, Chen Jian, Zhang Biyu, *et al.* Determination of Fipronil and Three Metabolite Residues in Poultry Meat and Meat Products by GC – MS/MS [J]. *Agricultural product processing*, 2022, (10) : 74 – 78.
- [36] 郝洪丹. 鸡蛋中兽药残留现状及其检测方法研究进展 [J]. *家禽科学*, 2022 (10) : 54 – 60.
HAo Hongdan. Research Progress on Veterinary Drug residues in Eggs and Detection Methods [J]. *Poultry Science*, 2022 (10) : 54 – 60.
- [37] Wang Bo, Xie Kaizhou, Lee Kiho. Veterinary Drug Residues in Animal – Derived Foods: Sample Preparation and Analytical Methods [J]. *Foods*, 2021, 3 (10) : 555.
- [38] 何方洋, 彭庆军, 吴小胜, 等. 三种免疫学检测方法对呋喃唑酮代谢物的检测 [J]. *黑龙江畜牧兽医*, 2018 (15) : 210 – 213.
He Fangyang, Peng Qingjun, Wu Xiaosheng, *et al.* Detection of furazolidone metabolites by three immunological methods [J]. *Hei-*

- longjiang Animal Husbandry and Veterinary Medicine, 2018 (15):210-213.
- [39] 马春慧,王晓静,孙莉寒,等. 低共熔溶剂在分子印迹技术中的应用研究进展[J]. 林产化学与工业, 2022, 42 (06): 123-135.
- Ma Chunhui, Wang Xiaojing, Sun Lihan, *et al.* Application of Deep Eutectic Solvents in Molecular Imprinting Separation Technology[J]. Chemistry and Industry of Forest Products, 2022, 42 (06):123-135.
- [40] 赵广丽,张悦,孙大妮,等. 分子印迹技术用于抗生素残留检测的研究进展[J]. 化学试剂, 2022, 44(09):1350-1359.
- Zhao Guangli, Zhang Yue, SUN Dani, *et al.* Research Advances of Molecular Imprinting Technology for the Detection of Antibiotics Residues [J]. Chemical reagents, 2022, 44(09):1350-1359.
- [41] 程杨,刘红弟,闫震,等. 分子印迹技术及其在农药残留检测中的研究进展[J]. 化学研究与应用, 2022, 34 (09): 1974-1984.
- CHENG Yang, LIU Hongdi, YAN Zhen, *et al.* Molecular imprinting technology and its research progress in the detection of pesticide residues[J]. Chemical research and application, 2022, 34(09):1974-1984.
- [42] 李桥,余沛霖,欧红香,等. 中空分子印迹微球的制备及其选择性吸附阿莫西林性能研究[J]. 环境化学, 2020, 39(06): 1617-1625.
- Li Qiao, Yu Peilin, Ou Hongxiang, *et al.* Fabrication and evaluation of hollow molecular-imprinted microspheres for selective adsorption of amoxicillin[J]. Environmental chemistry, 2020, 39 (06):1617-1625.
- [43] Man, Feng C, Qu P, *et al.* Determination of tetracyclines in chicken by dispersive solid phase microextraction based on metal-organic frameworks/molecularly imprinted nano-polymer and ultra performance liquid chromatography[J]. Food Analytical Methods, 2020, 13(5):1211-1219.
- [44] 于欣欣. 生物芯片技术及其在食品检测中的应用[J]. 食品安全导刊, 2020, (18):144.
- Yu Xinxin. Biochip technology and its application in food testing [J]. Food Safety Guide, 2020, (18):144.
- [45] 李裕. 生物芯片技术在保障食品安全中的应用[J]. 中国食品工业, 2021(24):52-53.
- Li Yu. Application of biochip technology in ensuring food safety [J]. China food industry, 2021(24):52-53.
- [46] 范金坪. 生物芯片技术及其应用研究[J]. 中国医学物理学杂志, 2009, 26(02):1115-1117.
- Fan Jinping. Biochip Technology and Its Application [J]. Chinese Journal of Medical Physics, 2009, 26(02):1115-1117.
- [47] 袁园. 论食品检测中生物技术的应用[J]. 现代食品, 2019, (21):37-39.
- Yuan Yuan. Application of Biotechnology in Food Inspection[J]. Modern food, 2019, (21):37-39.
- [48] 郭志红,王国青,王艳. 蛋白芯片检测鸡组织中磺胺二甲嘧啶等 4 种兽药的残留[J]. 中国兽药杂志, 2010, 44 (10): 42-45.
- Guo Zhihong, Wang Guoqing, Wang Yan. Residue Detection for Sulfadimidine and other 3 Veterinary Drugs by Protein Chip in Pork and Chicken Tissues[J]. Journal of Veterinary Medicine, 2010, 44(10):42-45.
- [49] 么亚男. 生物传感器在食品安全检测中的应用现状[J]. 现代食品, 2022, 28(19):33-35.
- Yao Yanan. Application Status of Biosensors in Food Safety Detection[J]. Modern food, 2022, 28(19):33-35.
- [50] 廖佳敏,杨华,孙鹏宇,等. 生物传感器发展研究综述[J]. 中国高科技, 2022, (12):118-120. LIAO Jiamin, YANG Hua, SuN Pengyu, *et al.* Review of biosensor development research [J]. China's high-tech technology, 2022, (12): 118-120.
- [51] 刘卫华,杨茜,刘敏轩,等. 动物性食品中氟苯尼考检测的电化学免疫传感器构建[J]. 食品科学, 2020, 41 (20): 307-313.
- Liu Weihua, Yang Xi, Liu Minxuan, *et al.* Development of an Electrochemical Immunosensor for Rapid Quantification of Florfenicol in Animal-Derived Foods[J]. Food science, 2020, 41 (20):307-313.

(编辑:侯向辉)