

doi:10.11751/ISSN.1002-1280.2024.04.08

液相色谱 - 串联质谱法测定牛肉中 加替沙星残留量的研究

邵兵, 杨修镇*, 刘霄飞, 时川

(山东省畜产品质量安全中心, 济南 250010)

[收稿日期] 2024-01-09 [文献标识码] A [文章编号] 1002-1280 (2024) 04-0062-07 [中图分类号] S859.84

[摘要] 建立牛肉中加替沙星残留量检测的液相色谱 - 串联质谱 (liquid chromatography - tandem mass spectrometry, LC - MS/MS) 方法。牛肉样品经 80% (V/V) 乙腈溶液提取, Prime HLB 固相萃取柱净化。采用 0.1% 甲酸 (V/V) - 甲醇溶液和 0.1% 甲酸 (V/V) - 水溶液进行梯度洗脱, 电喷雾离子源正离子扫描模式 (ESI⁺), 多反应监测 (MRM), 内标法定量。结果表明, 加替沙星进样浓度在 1 ~ 100 ng/mL 范围内与峰面积呈良好的线性关系 ($r^2 = 0.999$); 方法检出限和定量限分别为 1.0 和 2.0 $\mu\text{g}/\text{kg}$; 在 2.0、4.0、50 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 3 个添加水平上, 回收率在 64.2% ~ 114.6% 之间, 相对标准偏差为 5.5% ~ 9.7% ($n = 6$)。本方法快速、准确、灵敏, 适用于牛肉中加替沙星残留量检测。

[关键词] 液相色谱 - 串联质谱法; 牛肉; 加替沙星; 残留量

Determination of Gatifloxacin Residues in Beef by Liquid Chromatography - tandem Mass Spectrometry

SHAO Bing, YANG Xiu - zhen*, LIU Xiao - fei, SHI Chuan

(Shandong Livestock Product Quality and Safety Center, Jinan 250010, China)

Corresponding author: YANG Xiu - zhen, E - mail: yangxiuzhenaaa@126.com

Abstract: To establish a method for determination of gatifloxacin in beef by liquid chromatography - tandem mass spectrometric (LC - MS/MS), beef samples were extracted with 80% (V/V) acetonitrile solution and then the extracts were purified by the Prime HLB solid phase extraction. The gradient elution was carried out with 0.1% (V/V) formic acid methanol and 0.1% (V/V) formic acid water. Positive ion scanning mode of electric spray ion source (ESI⁺), multiple reaction monitoring (MRM), internal standard method were applied for quantitative analysis. There was a good linear correlation between the peak areas and the concentrations of gatifloxacin at the range of 1 - 100 ng/mL ($r^2 = 0.999$), the limit of detection and limit of quantification was 1.0 and 2.0 $\mu\text{g}/\text{kg}$. The recovery rates were 64.2% - 114.6% and the relative standard deviations were 5.5% - 9.7% ($n = 6$) at the

作者简介: 邵兵, 高级兽医师, 从事兽药和畜产品质量检测工作。

通讯作者: 杨修镇。E - mail: yangxiuzhenaaa@126.com

addition levels of 2.0, 4.0 and 50.0 $\mu\text{g}/\text{kg}$. This method is fast, accurate and sensitive, can be used for determination of gatifloxacin residues in beef.

Key words: liquid chromatography – tandem mass spectrometric; beef; gatifloxacin; residues

牛肉营养价值高,具有高蛋白、低脂肪、低胆固醇的优点,在我国需求与日俱增,市场供求紧张^[1-2]。恩诺沙星注射液是治疗牛细菌性疾病和支原体感染的常用药,有研究表明^[3]恩诺沙星注射液存在非法添加加替沙星的风险。加替沙星又译作甲替沙星是第四代喹诺酮类药物,对肺炎衣原体、肺炎克雷伯杆菌、肺炎链球菌、大肠杆菌等有较强的抗菌活性,与血清蛋白结合率及生物利用度均较高^[4]。原农业部 560 号公告^[5]指出甲替沙星等人医临床控制使用的最新抗菌药物用于食品动物,会产生耐药性问题,影响动物疫病控制、食品安全和人类健康,将其列入《兽药地方标准废止目录》中。用于检测加替沙星的方法主要有高效液相色谱法^[6-9],液相色谱 – 串联质谱法^[10-12],高效液相色谱法主要用于药物制剂的含量测定,不适用于基质复杂样品的痕量分析,本研究采用液相色谱 – 串联质谱法建立了牛肉中加替沙星残留量检测方法,以期对肉牛养殖过程中使用加替沙星情况进行监控,减少因加替沙星使用带来的食品安全隐患,为有关工作者提供参考。

1 材料与方法

1.1 仪器与材料

1.1.1 仪器 Xevo TQ – S 超高效液相色谱 – 串联质谱仪(配电化学喷雾离子源,美国 Waters 公司); YP – 5002 电子天平(感量 0.01 g, 上海佑科仪器仪表公司); VMV – 5 多管漩涡振荡器(北京优晟联合科技有限公司); Syncore 离心机(赛默飞世尔科技公司); XDNS – 24 氮吹仪(上海析达仪器有限公司); Prime HLB 固相萃取柱(6cc, 200 mg, 美国 Waters 公司); 针头式滤器(PTFE, 0.20 μm , 默克 Millipore 公司)。

1.1.2 试剂与样品 加替沙星标准溶液(批号 s128697, 100 $\mu\text{g}/\text{mL}$)和环丙沙星 – D₈ 标准溶液(批号 s130823, 100 $\mu\text{g}/\text{mL}$)均购自天津阿尔塔科技有限公司。乙腈、甲醇(色谱纯, 法国 Cleman 公

司); 甲酸(质谱级, 法国 Cleman 公司); 水为一级水。牛肉试料购自山东省内超市及农贸市场。

1.2 实验方法

1.2.1 溶液配制 加替沙星标准溶液配制: 用移液器移取 100 μL 加替沙星溶液(100 $\mu\text{g}/\text{mL}$)至 10 mL 容量瓶中, 用甲醇定容至刻度, 摇匀, 作为 1 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 标准溶液, 4 $^{\circ}\text{C}$ 保存, 有效期 7 d。

环丙沙星 – D₈ 内标溶液配制: 用移液器移取 100 μL 环丙沙星 – D₈ 溶液(100 $\mu\text{g}/\text{mL}$)至 10 mL 容量瓶中, 用甲醇定容至刻度, 摇匀, 作为 1 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 内标溶液, 4 $^{\circ}\text{C}$ 保存, 有效期 7 d。

1.2.2 样品前处理 称取绞碎后的牛肉样品: (2.5 \pm 0.01) g, 置于 50 mL 离心管中, 加入 1 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 环丙沙星 – D₈ 内标溶液 25 μL , 涡旋混匀, 放置 5 min, 准确加入 80% (V/V) 乙腈溶液 10 mL, 振荡提取 10 min, 8000 r/min 离心 5 min。取上清液 6 mL 置 Prime HLB 固相萃取柱上, 收集全部流出液, 涡旋混匀后准确移取 4 mL 于 15 mL 离心管中, 氮吹(不超过 50 $^{\circ}\text{C}$)至干, 准确加入 10% (V/V) 甲醇 1 mL, 涡旋 1 min, 过针头式滤器, 供上机测试。

1.2.3 仪器条件

1.2.3.1 色谱条件 Waters BEH C₁₈ 色谱柱(50 mm \times 2.1 mm, 1.7 μm), 流动相 A: 0.1% (V/V) 甲酸 – 甲醇溶液; 流动相 B: 0.1% (V/V) 甲酸 – 水溶液, 流速: 0.3 mL/min, 进样体积: 5 μL , 柱温: 30 $^{\circ}\text{C}$ 。液相色谱梯度洗脱程序见表 1。

表 1 液相色谱梯度洗脱程序

Tab 1 Liquid chromatography gradient elution program

时间/min Time	流速/(mL · min ⁻¹) Flow rate	A/%	B/%
0	0.3	10	90
0.5	0.3	10	90
1	0.3	30	70
3	0.3	30	70
3.5	0.3	90	10
4	0.3	90	10
4.5	0.3	10	90
5.5	0.3	10	90

1.2.3.2 质谱条件 电喷雾离子源正离子扫描模式 (ESI⁺); 多反应监测 (MRM); 离子源温度: 150 ℃; 毛细管电压: 3.0 kV; 脱溶剂气和锥孔反吹气均为氮气, 流速分别为 1000、150 L/h; 脱溶剂温度: 450 ℃; 碰撞气为氩气。

1.2.4 标准曲线绘制 为降低基质效应的影响, 采用内标法进行定量, 将加替沙星浓度为 1、2、4、10、20、50、100 ng/mL 其中环丙沙星 - D₈ 浓度均为 10 ng/mL 的系列标准工作液注入液相色谱 - 串联质谱仪。以相应加替沙星定量离子峰面积与环丙沙星 - D₈ 峰面积的比值为纵坐标 (Y), 加替沙星浓

度与环丙沙星 - D₈ 浓度的比值为横坐标 (X), 进行线性回归分析。

2 结果与分析

2.1 质谱条件优化 在正离子模式下, 以 5 μL/min 的流速将 300 ng/mL 加替沙星和环丙沙星 - D₈ 溶液直接注入串联质谱仪, 进行母离子和子离子扫描, 确定母离子质荷比和最佳响应时的锥孔电压, 调节碰撞能量, 加替沙星选取丰度较高的 2 个子离子为定量和定性离子, 环丙沙星 - D₈ 选取丰度较高的 1 个子离子为定量离子, 优化后的参数见表 2。

表 2 加替沙星和环丙沙星 - D₈ 的 MRM 检测参数表

Tab 2 Parameters of multiple reaction monitoring ion determination of gatifloxacin and Ciprofloxacin - D₈

化合物 Compound	定性离子对 (<i>m/z</i>) Qualitative ion pair	定量离子对 (<i>m/z</i>) Quantitative ion pair	锥孔电压/V Cone voltage	碰撞能量/eV Collision energy
加替沙星	376.10 > 261.00	376.10 > 332.00	35	30
	376.10 > 332.00		35	17
环丙沙星 - D ₈	340.10 > 322.05	340.10 > 322.05	48	20

2.2 色谱条件优化 基于参考文献^[10-13], 氟喹诺酮类检测的色谱系统主要有甲醇 - 水系统和乙腈 - 水系统, 甲醇比乙腈毒性低且价格低廉, 故选用甲醇 - 水作为流动相, ESI⁺ 模式下在两相中均加入甲酸能促进化合物的离子化且相对稳定。基质

中在加替沙星附近有一干扰峰, 通过调整梯度洗脱程序在适当时间使用 A 相: B 相为 30: 70 等度洗脱可实现较好分离。添加样品色谱图在标准品相应位置出相同的色谱峰, 能与空白样品中的干扰物实现分离, 目标物峰形较好, 色谱图见图 1 ~ 图 3。

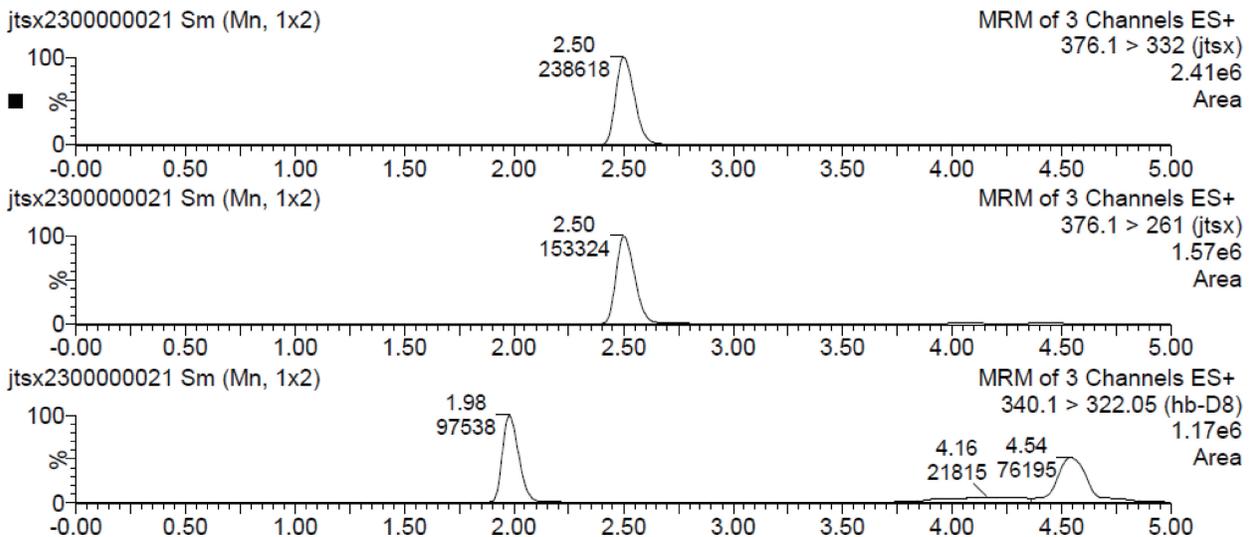


图 1 加替沙星标准品 (10 ng/mL) 的色谱图

Fig 1 Chromatogram of gatifloxacin (10 ng/mL)

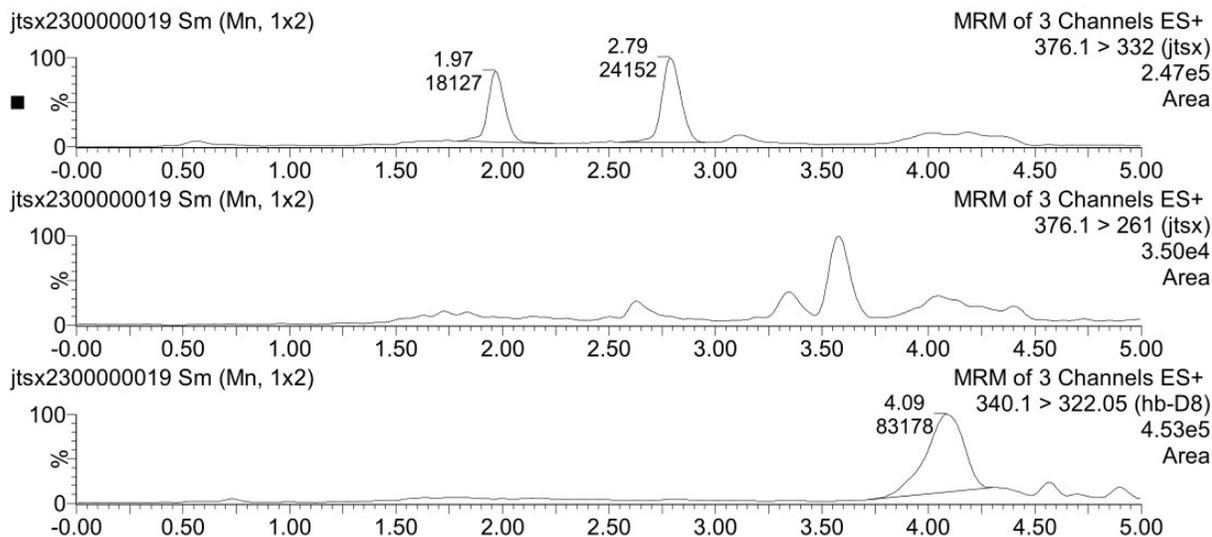


图 2 牛肉空白样品的色谱图

Fig. 2 Chromatogram of blank beef sample

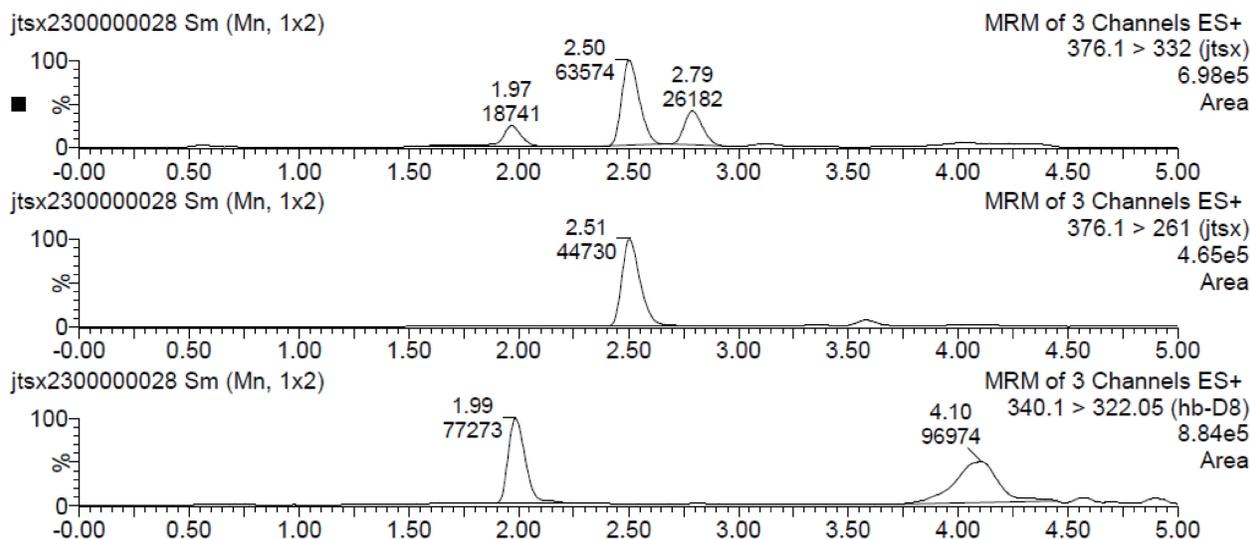


图 3 牛肉添加加替沙星样品的色谱图 (4.0 µg/kg)

Fig 3 Chromatogram of beef sample with added gatifloxacin (4.0 µg/kg)

2.3 样品前处理优化 加替沙星为喹诺酮类药物,含有酸碱两性基团,易溶于酸、碱溶液、甲醇、乙腈等极性有机溶剂^[14-15]。牛肉中的主要干扰物为蛋白质和脂肪,乙腈能够沉淀蛋白,故选择乙腈为提取溶剂。以纯乙腈为提取溶剂样品前处理振荡提取时难以分散,依据参考文献方法^[13]选择 80% 乙腈为提取溶剂满足前处理要求,提取液离心后透明清澈。已报道文献^[10-13]大多采用 SCX、HLB、

Prime HLB 固相萃取柱进行净化,Prime HLB 可以有效去除蛋白、盐、脂肪等且无需活化^[16-21],大大缩减了前处理步骤,处理后的样品回收率好,满足检测要求。

2.4 基质效应评估 称取空白牛肉样品 6 批,按前处理方法进行处理至“氮吹(不超过 50 °C)至干”,加入 10 ng/mL 加替沙星溶液 1 mL,涡旋 1 min 溶解残渣后进行检测,所得面积值与相同浓度对照

品溶液的峰面积进行比较,样品均有不同程度的基质增强作用,增强程度在 20% ~ 60% 不等且差异较大。选择基质匹配无法实现准确定量,加替沙星同位素内标难以获取,故选择结构与其相近的环丙沙星 - D₈ 为内标进行定量分析。

2.5 方法的线性关系、检出限及定量限 经检测,回归方程为: $Y = 2.3076X + 0.0394$ ($r^2 = 0.999$),结果表明加替沙星进样浓度在 1 ~ 100 ng/mL 范围内与定量离子峰面积呈良好的线性关系。称取空白牛肉,添加一定量加替沙星,按前处理方法进行处理,以定性、定量离子色谱峰的信噪比 (S/N) 均大于等于 3:1,且定性时相对离子丰度偏差符合规定^[22]的最低添加量为本方法的检出限。满足定性

条件且定量离子色谱峰的信噪比 (S/N) 满足 10:1 的最低添加量为本方法的定量限。本方法的检出限为 1.0 μg/kg,定量限为 2.0 μg/kg,满足牛肉中痕量加替沙星残留检测需求。

2.6 回收率和精密度 取 3 批空白牛肉样品,按 2.0、4.0、50 μg/kg 进行添加,每个浓度平行 6 份,在确定的前处理方法和仪器条件下进行检测,内标法定量,考察方法的回收率及相对标准偏差,结果见表 3。加替沙星在牛肉中的回收率为 64.2% ~ 114.6%,批内相对标准偏差 (relative standard deviation, RSD) 为 5.5% ~ 9.7%,批间 $RSD < 15%$,能够满足牛肉样品痕量残留检测要求。

表 3 回收率和精密度实验结果

Tab 3 Results of recovery and precision of the method

添加量/(μg · kg ⁻¹) Added concentration	批次 Batch	回收率/% Recovery						均值/% Average Recovery	批内 Inter-assay RSD /%	批间 Between-assay RSD /%
2.0	I	69.4	73.2	78.1	90.4	80.4	85.5	79.5	9.7	
	II	92.5	84.6	88.7	78.5	90.4	102.1	89.5	8.9	11.6
	III	78.7	70.6	64.2	75.2	76.8	80.5	74.3	8.1	
4.0	I	84.7	82.5	94.2	78.7	90.6	78.1	84.8	7.6	
	II	93.5	88.7	90.2	82.5	99.7	91.8	91.1	6.2	8.1
	III	90.4	84.4	79.6	88.2	70.6	85.4	83.1	8.6	
50	I	94.5	114.6	105.4	102.8	93.4	97.7	101.4	7.9	
	II	104.5	102.8	97.6	108.4	99.4	92.7	100.8	5.5	6.7
	III	89.2	96.4	106.8	95.2	94.7	106.5	98.1	7.2	

2.7 实际样品测定 用本方法对山东省内超市及农贸市场购买的 120 批牛肉样品进行检测,发现阳性样品 1 批,其残留量为 25 μg/kg。

3 结论

本研究建立了液相色谱 - 串联质谱法测定牛肉中加替沙星残留量的检测方法。研究采用 80% (V/V) 乙腈溶液提取,无需活化的 Prime HLB 固相萃取柱净化,大大简化了前处理过程,检出限为 1.0 μg/kg,定量限为 2.0 μg/kg,满足痕量检测要求。本方法快速、准确、灵敏,适用于大批量样品同时检

测,满足对食品安全隐患排查需求,能为相关研究人员提供参考。

参考文献:

- [1] 王海燕,高维新. 中国牛肉对外贸易状况及对策[J]. 北方经贸,2023(11):27-29+34.
Wang H Y, Gao W X. The status and countermeasures of China's beef foreign trade [J]. Beifang Jingmao, 2023, (11): 27-29+34.
- [2] 乌云塔娜,吕龙,刘维,等. 肉牛养殖关键技术要点[J]. 北方牧业,2023(23):22.

- Wu YTN, Lu L, Liu W, *et al.* Key technical points for beef cattle breeding [J]. *Beifang Muye*, 2023 (23) :22.
- [3] 宋慧敏,熊玥,汪云花,等. HPLC - PDA 联合 UPLC - Triple TOF MS 法确证恩诺沙星注射液中的非法添加物[J]. *中国兽药杂志*,2021,55(08) :54 - 59.
- Song H M, Xiong Y, Wang Y H, *et al.* Identification of illegal additive in enrofloxacin injection by UPLC - Triple TOF MS and HPLC - PDA Method [J]. *Chinese Journal of Veterinary Drug*, 2021,55(08) :54 - 59.
- [4] Pallo - Zimmerman LM, Byron JK, Graves TK. Fluoroquinolones; then and now [J]. *Compend Contin Educ, Vet*, 2010, 32 (7) : 1 - 9.
- [5] 农业部. 中华人民共和国农业部公告第 560 号[Z]. 2005. Ministry of Agriculture. Announcement No. 560 of the Ministry of Agriculture of the People's Republic of China[Z]. 2005.
- [6] 陈一凡,赵谢她. 高效液相色谱法测定加替沙星分散片中加替沙星的含量[J]. *广州化工*,2013,41(22) :116 - 117 + 148.
- Chen Y F, Zhao X T, Shi J Q, *et al.* Determination of Gatifloxacin in Gatifloxacin Dispersible Tablets by HPLC [J]. *Guangzhou Chemical Industry*, 2013,41(22) :116 - 117 + 148.
- [7] 杨阳. RP - HPLC 对加替沙星滴眼液含量测定研究[J]. *科技创业家*,2014(03) :214.
- Yang Y. Determination of gatifloxacin in Eye Drops by RP - HPLC [J]. *Technology Entrepreneurs*, 2014(03) :214.
- [8] 李昱. HPLC 法同时测定加替沙星醋酸地塞米松滴耳液中药物含量[J]. *中国药师*,2014,17(11) :1969 - 1971.
- Li Y. Determination of gatifloxacin and dexamethasone in Ear Drops by HPLC [J]. *China Pharmacist*, 2014, 17 (11) : 1969 - 1971.
- [9] 黄冬,马晓鹂,蔡伟明,等. RP - HPLC 法测定盐酸加替沙星胶囊含量[J]. *临床合理用药杂志*,2014,7(32) :29 - 30.
- Huang D, Ma X L, Cai W M, *et al.* Determination of gatifloxacin in Capsule by RP - HPLC [J]. *Journal of Clinical Rational Drug Use*, 2014, 7(32) : 29 - 30.
- [10] 赵建晖,吴文凡,郑香平,等. 超高效液相色谱 - 串联质谱法同时测定水产品中加替沙星、莫西沙星和左氧氟沙星[J]. *理化检验(化学分册)*,2011,47(06) :640 - 644.
- Zhao JH, Wu WF, Zheng XP, *et al.* Simultaneous UPLC - MS/MS determination of gatifloxacin, moxifloxacin and levofloxacin in aquatic products [J]. *PTCA (PART B:CHEM. ANAL)*, 2011, 47(06) : 640 - 644.
- [11] 刘洪斌,姚喜梅,蔡英华,等. 高效液相色谱 - 串联质谱检测鸡蛋中 5 种新型喹诺酮类药物[J]. *畜牧与兽医*,2018,50 (04) :50 - 54.
- Liu H B, Yao X M, Cai Y H, *et al.* Simultaneous determination of five new quinolones residues in eggs using liquid chromatography tandem mass spectrometry [J]. *Animal Husbandry & Veterinary Medicine*, 2018, 50(04) : 50 - 54.
- [12] 李明明. SPE - HPLC - MS/MS 检测地表水中的萘啶酸、吡哌酸、培氟沙星、氧氟沙星、司帕沙星和加替沙星残留[J]. *中国测试*,2021,47(04) :67 - 71.
- Li M M. Determination of nalidixic acid, pipemidic acid, pefloxacin, ofloxacin, sparfloxacin and gatifloxacin residues in surface water by SPE - HPLC - MS/MS [J]. *CHINA MEASUREMENT & TEST*, 2021, 47(04) : 67 - 71.
- [13] 尹伶灵,杨修镇,李有志,等. 基于 PRIME HLB 快速前处理技术的鸡蛋中 38 种药物残留快速检测方法研究及其在风险监控中的应用[J]. *中国兽药杂志*,2019,53(05) :17 - 25.
- Yin L L, Yang X Z, Li Y Z, *et al.* Rapid determination of 38 drug residues in eggs based on Prime HLB and its application in risk monitoring [J]. *Chinese Journal of Veterinary Drug*, 2019, 53(05) : 17 - 25.
- [14] 李佩佩,郭远明,陈雪昌,等. 色谱法检测动物源食品中喹诺酮类药物残留研究进展[J]. *食品科学*,2013,34(03) : 303 - 307.
- Li PP, Guo YM, Chen XC, *et al.* Chromatographic Detection of Quinolones Residues in Animal Tissues [J]. *Food Science*, 2013, 34(03) : 303 - 307.
- [15] Samanidou V, Evaggelou E, Trotsmuller, *et al.* Multiresidue determination of seven quinolones antibiotics in seabream using liquid chromatography - tandem mass spectrometry [J]. *J Chromatogra A*, 2008, 1203(2) : 115 - 123.
- [16] 刘新辉,王情情,张瑗,等. Oasis PRiME HLB 净化法测定动物源性食品中的兽药多残留[J]. *农产品质量与安全*,2019 (05) :15 - 20.
- Liu XH, Wang QQ, Zhang Y, *et al.* Determination of multiple veterinary drug residues in animal - original food by Oasis PRiME HLB purification method [J]. *Quality and Safety of Agro - products*, 2019(05) : 15 - 20.
- [17] 唐志理,侯思羽,邢东海,等. PRiME HLB - 超高效液相色谱 - 串联质谱法测定鸡蛋中硝基咪唑类药物残留量[J]. *食品安全质量检测学报*,2020,11(18) :6716 - 6723.
- Tang ZL, Hou SY, Xing DH, *et al.* Determination of nitroimidazoles residues in egg by PRiME HLB combined with ultra performance liquid chromatography - tandem mass spectrometry [J]. *Journal of Food Safety and Quality*, 2020, 11 (18) : 6716 - 6723.
- [18] 龚兰,赵航,栾枫婷,等. 改进的 PRiME HLB 法联合高效液

相色谱 - 串联质谱法快速测定鸡肉中 37 种兽药残留[J]. 农产品质量与安全, 2020(06):54 - 62 + 68.

Gong L, Zhao H, Luan FT, *et al.* Rapid determination of 37 multi - residue veterinary drugs in chicken by modified PRIME HLB combined with liquid chromatography - tandem mass spectrometry [J]. Quality and Safety of Agro - products, 2020(06): 54 - 62 + 68.

- [19] 马丽莎, 尹怡, 田斐, 等. PRIME HLB 固相萃取 - 超高效液相色谱 - 串联质谱法测定水产品中 5 种硝基咪唑[J]. 分析试验室, 2021, 40(11): 1304 - 1308.

Ma LC, Yin Y, Tian F, *et al.* Determination of five nitroimidazoles residues in aquatic products by ultra - high performance liquid chromatography tandem mass spectrometry coupled with PRIME HLB solid phase extraction [J]. Chinese Journal of Analysis Laboratory, 2021, 40(11): 1304 - 1308.

- [20] 李诗言, 柯庆青, 王鼎南, 等. PRIME HLB 固相萃取 - 超高效液相色谱 - 串联质谱法同时测定水产品中 11 种酰胺醇和抗病毒类药物残留[J]. 分析试验室, 2023, 42(04): 514 - 520.

Li SY, Ke QQ, Wang DN, *et al.* Simultaneous determination of

eleven amphenicols and antiviral drugs in aquatic products by ultra - high performance liquid chromatography - tandem mass spectrometry coupled with PRIME HLB solid phase extraction [J]. Chinese Journal of Analysis Laboratory, 2023, 42(04): 514 - 520.

- [21] 张丹, 刘柏林, 赵紫微, 等. PRIME HLB 柱净化 - 超高效液相色谱 - 串联质谱法快速测定果蔬制品中 5 种新型真菌毒素[J]. 分析化学, 2023, 51(08): 1343 - 1357.

Zhang D, Liu BL, Zhao ZW, *et al.* Rapid Determination of Five Kinds of Emerging Mycotoxins in Fruit and Vegetable Products by PRIME HLB Purification Coupled with Ultra - High Performance Liquid Chromatography - Tandem Mass Spectrometry [J]. Chinese Journal of Analytical Chemistry, 2023, 51(08): 1343 - 1357.

- [22] GB/T 21312 - 2007[S].

(编辑: 侯向辉)