

# 高效液相色谱法同时检测蜂蜜中的5类抗生素残留

卢坤<sup>1</sup>, 童群义<sup>2\*</sup>

(1. 江南大学 食品科学与技术国家重点实验室, 江苏 无锡 214122; 2. 江南大学 食品学院, 江苏 无锡 214122)

**摘要:** 建立了蜂蜜中氯霉素类、硝基咪唑类、喹诺酮类、磺胺类、四环素类5类共15种抗生素残留同时检测的高效液相色谱分析方法。蜂蜜经pH 2.0的磷酸水溶液溶解后直接用PCX固相萃取小柱净化富集,以乙腈-磷酸溶液(pH 2.5)作流动相,梯度洗脱,紫外检测器在274、315 nm波长下进行检测。15种抗生素在0.2~20.0 mg/L范围内呈良好线性,平均加标回收率为60%~105%,相对标准偏差为1.3%~6.9%。方法的检出限为9.70~12.54 μg/kg,定量下限为32.34~41.80 μg/kg。该方法快速高效,样品前处理简单,选择性好,灵敏度高,适用于蜂蜜中抗生素多残留的检测。

**关键词:** 固相萃取; 高效液相色谱; 抗生素; 蜂蜜; 多残留

中图分类号: O657.72; S859.796 文献标识码: A 文章编号: 1004-4957(2011)11-1320-05

doi: 10.3969/j.issn.1004-4957.2011.11.022

## Simultaneous Determination of 5 Classes of Antibiotics Residues in Honey Using High Performance Liquid Chromatography

LU Kun<sup>1</sup>, TONG Qun-yi<sup>2\*</sup>

(1. The National Key Laboratory of Food Science and Technology in Jiangnan University, Wuxi 214122, China; 2. College of Food Science, Jiangnan University, Wuxi 214122, China)

**Abstract:** A high performance liquid chromatographic method was established for the simultaneous determination of 5 classes of antibiotics such as chloramphenicols, nitroimidazoles, quinolones, sulfonamides and tetracyclines including 15 antibiotics residues in honey. The honey sample was dissolved in phosphoric acid solution at pH 2.0 and then purified and enriched directly with PCX solid phase extraction small column. The target compounds were separated on HPLC using acetonitrile-phosphoric acid solution (pH 2.5) as mobile phase by gradient elution, and detected with ultraviolet detector at 274 nm and 315 nm. The calibration curves of 15 antibiotics (chloramphenicol, metronidazole, ornidazole, oxytetracycline, chlorotetracycline, doxycycline, sulfapyridine, ciprofloxacin, lomefloxacin, ofloxacin, gatifloxacin, sparfloxacin, sulfadiazine, sulfamerazine, sulfamethoxazole) were linear in the range of 0.2-20.0 mg/L. The average spiked recoveries ranged from 60% to 105% with relative standard deviations of 1.3%-6.9%. The limits of detection of this method were in the range of 9.70-12.54 μg/kg and the limits of quantitation were 32.34-41.80 μg/kg. The method showed the advantages of simple sample preparation, good selectivity and high sensitivity, and was suitable for the simultaneous determination of antibiotics in honey.

**Key words:** solid phase extraction; high performance liquid chromatography; antibiotics; honey; multi-residues

抗生素残留的分析检测是动物源性食品中药物残留分析的重要研究课题。目前蜂蜜中抗生素残留检测的主要方法有微生物法<sup>[1]</sup>、酶联免疫法<sup>[2]</sup>、薄层色谱法<sup>[3]</sup>、毛细管电泳法<sup>[4]</sup>、高效液相色谱法<sup>[5-10]</sup>、液相色谱质谱联用法<sup>[11-14]</sup>等。其中高效液相色谱法和液相色谱质谱联用法以灵敏度高的优点在残留分析中得到了极为广泛的应用。但这些方法通常一次只能检测某一种或某一类抗生素。为提高检测通量、缩短分析时间,多种药物残留的同时检测成为近年来较受关注的课题。目前关于多残留检测的报道较少<sup>[15-16]</sup>,对氯霉素类、硝基咪唑类、喹诺酮类、磺胺类、四环素类5类抗生素同时检测

收稿日期: 2011-06-22; 修回日期: 2011-07-11

\* 通讯作者: 童群义, 博士, 教授, 研究方向: 碳水化合物科学与工程, Tel: 13861715020, E-mail: qytong@263.net

的方法尚未见报道。本研究选取最大紫外吸收波长相近的 5 类抗生素, 采用紫外检测器进行检测, 建立了蜂蜜中这 5 类共 15 种抗生素残留同时检测的高效液相色谱方法。本方法的样品前处理过程比已报道的方法简单快捷, 将蜂蜜样品溶解后直接过柱, 省却了繁琐的液液萃取步骤, 能够保证对目标分析物的高回收率且样品基质干扰小。方法的选择性好, 灵敏度高, 可一次性检测蜂蜜中多种抗生素残留且检出限和精密度符合药物残留的分析要求, 可用于蜂蜜中抗生素的多残留检测。

## 1 实验部分

### 1.1 仪器与试剂

岛津 20AT 高效液相色谱仪, 配有紫外检测器(日本岛津公司); Welch Ultimate AQ-C<sub>18</sub> 色谱柱(250 mm × 4.6 mm, 5 μm, 美国 Welch 公司); 氮吹仪(上海申顺生物科技有限公司); SK-1 型漩涡混匀器(常州中捷实验仪器制造有限公司); Oasis HLB 固相萃取小柱(100 mg/3 mL, Waters 公司), Cleanert PCX 固相萃取小柱(100 mg/3 mL, 安捷伦公司), C<sub>18</sub> 固相萃取小柱(100 mg/3 mL, 苏州科盛公司)。

氯霉素(CAP)、甲硝唑(MNZ)、奥硝唑(ONZ)、土霉素(OTC)、金霉素(CTC)、多西环素(DOX)、磺胺吡啶(SP)、环丙沙星(CIP)、洛美沙星(LOM)、氧氟沙星(OFL)、加替沙星(GTF)、司帕沙星(SPA) 标准品均购自中国药品生物制品检定所; 磺胺嘧啶(SDZ)、磺胺甲噁啉(SM1)、磺胺甲噁啉(SMZ) 标准品均购自德国 Dr. Ehrenstorfer 公司; 甲醇、乙腈均为色谱纯; 氨水、磷酸均为分析纯; 实验用水为超纯水。

标准溶液的配制: 准确称取每种抗生素各 10.0 mg, 用甲醇溶解并定容至 100 mL, 配制成 0.1 g/L 的标准储备液, 于 4 °C 冰箱中避光保存。混合标准工作溶液由各种抗生素的标准储备液逐级稀释而成。

### 1.2 色谱条件

色谱柱: Welch Ultimate AQ-C<sub>18</sub> 柱(250 mm × 4.6 mm, 5 μm); 流动相: 乙腈 - 磷酸溶液(pH 2.5); 流动相流速: 1 mL/min; 柱温: 35 °C; 进样量: 10 μL; 紫外检测波长: 274、315 nm(双波长模式); 流动相梯度: 0 ~ 5 min, 12% 乙腈; 5 ~ 30 min, 12% ~ 40% 乙腈; 30 ~ 35 min, 40% ~ 12% 乙腈。

### 1.3 样品预处理

准确称取 5.00 g 蜂蜜于 10 mL 离心管中, 加入 5 mL pH 2.0 的磷酸溶液, 在漩涡混匀器上溶解混匀。分别用 3 mL 甲醇和 3 mL 水活化 PCX 固相萃取小柱, 保持柱体湿润, 上样, 将上述提取液以 1 mL/min 过柱。待样液全部流出后, 用 5 mL 水和 5 mL 甲醇淋洗小柱, 弃去淋洗液, 减压抽干 5 min, 用 9 mL 5% 的氯化甲醇以 1 mL/min 洗脱, 收集洗脱液于 10 mL 离心管中, 氮吹至干后用甲醇定容至 1 mL, 过 0.45 μm 滤膜后进样检测。

## 2 结果与讨论

### 2.1 紫外检测波长的确定

应用紫外检测器进行多残留检测时, 所检测的抗生素必须在相同的波长附近具有最大紫外吸收。相关研究表明<sup>[5, 17]</sup>, 氯霉素类、喹诺酮类、磺胺类以及四环素类抗生素在相近波长处有最大紫外吸收。对 15 种抗生素分别进行紫外光谱扫描, 所得最大紫外吸收波长见表 1。氯霉素类、喹诺酮类、磺胺类和四环素类在

274 nm 波长附近均有最大吸收, 硝基咪唑类抗生素在 315 nm 附近有最大吸收。综合考虑, 本实验采用双波长检测模式, 紫外检测波长为 274 nm 和 315 nm。

### 2.2 流动相组成及 pH 值的选择

在初始实验中, 采用乙腈 - 纯水体系作为流动相, 发现只有部分抗生素的峰形良好, 其余抗生素均出现色谱峰展宽且拖尾严重。这是由次级保留效应所致。反相色谱分析时非极性和弱极性化合物的

表 1 5 类抗生素的最大紫外吸收波长

| Antibiotic             | Maximum absorption wavelength λ/nm |
|------------------------|------------------------------------|
| Chloramphenicols(氯霉素类) | 225, 278                           |
| Quinolones(喹诺酮类)       | 274                                |
| Sulfonamides(磺胺类)      | 190, 270                           |
| Nitromidazoles(硝基咪唑类)  | 315                                |
| Tetracyclines(四环素类)    | 210, 270, 365                      |

峰形较好,对于极性和碱性化合物,由于硅胶表面残留有硅羟基,易产生次级保留效应,造成带有羧基、氨基等极性基团的化合物峰形拖尾。反相填料表面残余的硅羟基的  $pK_a$  约为 4.5~4.7。根据电离规律,流动相的  $pH - pK_a > 2$  即  $pH > 6.7$  时,99% 以上的硅羟基呈离子状态,而  $pK_a - pH > 2$  即  $pH < 2.5$  时,酸性环境抑制了硅羟基的电离,99% 以上的硅羟基呈分子状态,此时可以有效抑制次级保留效应。因此,在选择流动相  $pH$  值时,既需考虑流动相能否有效抑制填料表面残余硅羟基的解离,又应使目标物尽量保持分子状态。结果表明,将流动相的  $pH$  值调至比弱酸性目标物的  $pK_a$  小 2 以上,且比弱碱性目标物  $pK_a$  大 2 以上时,可有效抑制易离子化待测物的电离,从而获得良好峰形。

本研究所用 5 类抗生素中,氯霉素类、四环素类、硝基咪唑类抗生素分子中含有氨基和羟基,喹诺酮类抗生素分子中含氨基和羧基,磺胺类抗生素分子中有芳香胺和磺酰氨基,其解离状态以及在流动相中的溶解性与流动相的  $pH$  值密切相关,因此控制流动相  $pH$  值使其在色谱柱上获得合适的保留十分重要。

抗生素属于两性化合物,在实验中控制流动相  $pH$  值为酸性可获得较为满意的峰形及分离效果。本研究考察了流动相  $pH$  值分别为 2.5、3.0、3.5、4.0 时对 15 种抗生素分离的影响。实验发现, $pH$  值为 2.5 时的分离效果较好。在此条件下,15 种抗生素混合标准溶液的色谱图如图 1 所示。

### 2.3 样品前处理条件的优化

由于蜂蜜的水溶性较好,提取时可将蜂蜜溶解后直接过 SPE 小柱进行净化,从而省略了繁琐的液液萃取步骤。实验考察了用于抗生素净化的 PCX 柱、HLB 小柱、 $C_{18}$  小柱 3 种 SPE 小柱对蜂蜜中 15 种抗生素的提取效率,图 2 为 3 种小柱的回收率比较图。结果显示,HLB 柱对硝基咪唑类、氯霉素、磺胺类抗生素的回收率较好,但对喹诺酮和磺胺四环素类抗生素的回收率很低; $C_{18}$  柱对各种抗生素的回收率普遍较低;PCX 小柱对少数几种抗生素的回收率相对较低,但对各种抗生素的整体回收效果最好。因此选择 PCX 柱净化。经 PCX 柱净化后,空白蜂蜜样品及样品加标的色谱图见图 3。

用 PCX 小柱萃取时,分别用 1%、3%、5%、7%、9% 的氨化甲醇对吸附在 SPE 小柱上的目标组分进行洗脱,发现氨水体积分数为 5% 时,洗脱效果最好;分别用 3、6、9、12 mL 氨化甲醇进行洗脱,发现洗脱液用量为 9 mL 时的效果最好。对 1、2、3、4 mL/min 4 个洗脱速率进行比较,确定最佳洗脱速率为 1 mL/min。

用 PCX 萃取小柱对蜂蜜样品进行净化时,在加水溶解蜂蜜的过程中,用磷酸调节溶液的  $pH$  值来控制目标组分在样品基质中的解离状态,考察了  $pH$  值为 2.0、3.0、4.0、5.0、6.0 时 PCX 小柱对各抗生素的回收效果,发现  $pH$  值为 2.0 时的回收效果最好。优化的样品前处理条件见“1.3”。

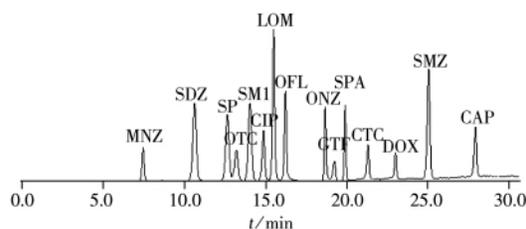


图 1 15 种抗生素混合标准溶液的色谱图

Fig. 1 Chromatogram of 15 antibiotics standards solution

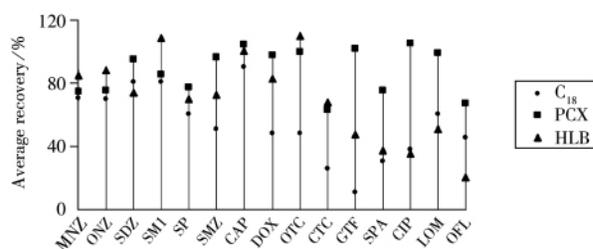


图 2 3 种 SPE 小柱对 15 种抗生素的回收率比较

Fig. 2 Comparison of recoveries of three types of SPE for 15 antibiotics

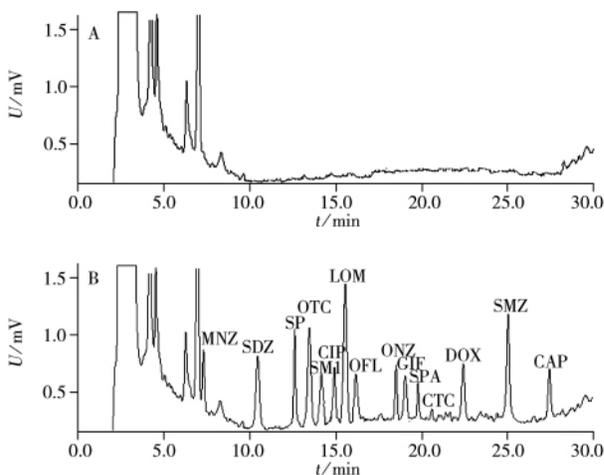


图 3 空白蜂蜜样品(A)及加标样品(B)的色谱图

Fig. 3 Chromatograms of a drug-free honey sample(A) and a honey sample spiked with mixed standards(B)

## 2.4 方法的标准曲线、线性范围、检出限与定量下限

配制一系列浓度的混合标准工作液,按“1.2”条件进行检测,将峰面积( $y$ )与抗生素的质量浓度( $x$ )进行线性拟合,结果见表 2。15 种抗生素在 0.2 ~ 20.0 mg/L 范围内线性良好,相关系数均大于 0.997。

采用 HPLC 对 15 种抗生素的标准工作液进行检测,分别以 3 倍信噪比( $S/N$ )和 10 倍信噪比计算方法的检出限与定量下限。得到 15 种药物的检出限为 48.50 ~ 62.07  $\mu\text{g/L}$ ,定量下限为 161.7 ~ 209.0  $\mu\text{g/L}$ 。将其代入所称取的蜂蜜样品质量(5.00 g)及净化后浓缩的体积(1 mL)中进行换算,得到蜂蜜中 15 种药物的检出限为 9.70 ~ 12.54  $\mu\text{g/kg}$ ,定量下限为 32.34 ~ 41.80  $\mu\text{g/kg}$ (见表 2),可满足定量分析的要求。

## 2.5 方法的回收率与精密度

称取 5.00 g 蜂蜜样品做 0.05、0.20、0.50 mg/kg 3 个水平的加标回收实验,按“1.3”方法对样品进行处理后,按“1.2”色谱条件进行测定,每个加标水平重复 5 次,结果见表 2。15 种抗生素的回收率为 60% ~ 105%,相对标准偏差为 1.3% ~ 6.9%,符合抗生素残留分析要求。

表 2 15 种抗生素的标准曲线、线性范围、检出限、定量下限、回收率及相对标准偏差( $n=5$ )  
Table 2 Regression equations, linear ranges, LODs, LOQs, recoveries and RSDs of 15 antibiotics( $n=5$ )

| Antibiotic                  | Linear range<br>$\rho/(\text{mg} \cdot \text{L}^{-1})$ | Regression equation   | $r^2$  | LOD $w/$<br>( $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ ) | LOQ $w/$<br>( $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ ) | Added<br>$w/(\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1})$ | Recovery<br>$R/\%$ | RSD<br>$s_r/\%$ |
|-----------------------------|--|-----------------------|--------|--|--|---|--------------------|-----------------|
| Metronidazole<br>(MNZ)      | 0.2 ~ 20.0   | $y = 45.74x + 0.7196$ | 0.9998 | 11.03  | 36.77  | 0.05 0.20 0.50                                | 76 74 71           | 2.3 1.5 1.9     |
| Ornidazole<br>(ONZ)         | 0.2 ~ 20.0   | $y = 20.41x + 0.4584$ | 0.9994 | 12.16  | 40.53  | 0.05 0.20 0.50                                | 78 75 73           | 4.6 3.4 1.8     |
| Sulfadiazine<br>(SDZ)       | 0.2 ~ 20.0   | $y = 37.51x - 1.306$  | 0.9990 | 10.98  | 36.60  | 0.05 0.20 0.50                                | 94 95 93           | 3.7 2.6 5.0     |
| Sulfamerazine<br>(SMI)      | 0.2 ~ 20.0   | $y = 39.47x - 1.140$  | 0.9993 | 12.04  | 40.13  | 0.05 0.20 0.50                                | 87 85 85           | 3.4 6.2 4.5     |
| Sulfapyridine<br>(SP)       | 0.2 ~ 20.0   | $y = 28.58x - 1.294$  | 0.9981 | 10.58  | 35.27  | 0.05 0.20 0.50                                | 79 77 79           | 1.9 3.8 4.3     |
| Sulfamethoxazole<br>(SMZ)   | 0.2 ~ 20.0   | $y = 39.64x + 6.729$  | 0.9974 | 9.98   | 33.27  | 0.05 0.20 0.50                                | 99 96 95           | 5.8 4.1 3.2     |
| Chloramphenicol<br>(CAP)    | 0.2 ~ 20.0   | $y = 16.79x - 0.0025$ | 0.9983 | 11.25  | 37.50  | 0.05 0.20 0.50                                | 100 104 99         | 6.4 5.3 1.4     |
| Doxycycline<br>(DOX)        | 0.2 ~ 20.0   | $y = 12.05x + 0.9997$ | 0.9992 | 10.98  | 36.60  | 0.05 0.20 0.50                                | 99 97 96           | 5.6 2.2 4.4     |
| Oxytetracycline<br>(OTC)    | 0.2 ~ 20.0   | $y = 12.81x - 0.8704$ | 0.9986 | 10.73  | 35.77  | 0.05 0.20 0.50                                | 97 100 95          | 1.3 5.1 3.2     |
| Chlorotetracycline<br>(CTC) | 0.2 ~ 20.0   | $y = 10.64x + 1.524$  | 0.9982 | 12.54  | 41.80  | 0.05 0.20 0.50                                | 66 63 60           | 2.0 4.6 1.9     |
| Gatifloxacin<br>(GTF)       | 0.2 ~ 20.0   | $y = 20.32x + 1.456$  | 0.9995 | 11.46  | 38.20  | 0.05 0.20 0.50                                | 99 102 97          | 3.7 6.9 4.6     |
| Sparfloxacin<br>(SPA)       | 0.2 ~ 20.0   | $y = 29.90x + 2.925$  | 0.9987 | 12.02  | 40.07  | 0.05 0.20 0.50                                | 79 75 73           | 1.8 3.8 4.0     |
| Ciprofloxacin<br>(CIP)      | 0.2 ~ 20.0   | $y = 20.90x - 0.2205$ | 1.0000 | 12.23  | 40.77  | 0.05 0.20 0.50                                | 103 105 98         | 5.3 5.7 4.8     |
| Lomefloxacin<br>(LOM)       | 0.2 ~ 20.0   | $y = 41.46x - 3.401$  | 0.9981 | 9.70   | 32.34  | 0.05 0.20 0.50                                | 99 99 96           | 2.6 3.4 6.1     |
| Ofloxacin (OFL)             | 0.2 ~ 20.0   | $y = 12.80x + 0.5353$ | 0.9996 | 11.34  | 37.80  | 0.05 0.20 0.50                                | 90 87 85           | 4.5 2.7 3.8     |

### 参考文献:

- [1] Li Y H, Wang W J, Zhang L W, Ma W, Chen L A. *Chin. J. Antibiot.* (李延华, 王伟军, 张兰威, 马微, 陈丽安. 中国抗生素杂志), 2009, 34(1): 63 - 68.
- [2] Jiang K, Chen Y P, Jin Y F, Huang J F, Chen X Z, Zhang D L. *China Dairy Ind.* (姜侃, 陈宇鹏, 金燕飞, 黄建锋, 陈小珍, 张东雷. 中国乳品工业), 2010, 38(1): 51 - 56.

(下转第 1328 页)

- [7] Liu X, Wang W, Shi Y L, Cai Y Q, Mou S F. *Chin. J. Environ. Chem.* (刘肖, 王碗, 史亚利, 蔡亚岐, 牟世芬. 环境化学), **2007**, 26(4): 541–543.
- [8] Duan Z K, Zeng H Y, Zhou G P, Luo A W, Zeng Z D. *J. Instrum. Anal.* (段正康, 曾红艳, 周国平, 罗爱文, 曾志丁. 分析测试学报), **2010**, 29(5): 493–496.
- [9] Ding H D, Hu R Z, Huang W X, Dong R, Liu Z M. *Electron. Components Mater.* (丁昊冬, 胡荣宗, 黄维雄, 董瑞, 刘志铭. 电子元件与材料), **2006**, 25(3): 30–32.
- [10] Li T, Jiang T. *Phys. Test. Chem. Anal.: Chem. Anal.* (黎涛, 江涛. 理化检验: 化学分册), **2008**, 44: 1089–1090, 1093.
- [11] Kong Y, Wang T, Chen Z D, Wang W C, Shen L R. *Chin. J. Anal. Lab.* (孔泳, 王婷, 陈智栋, 王文昌, 沈力人. 分析实验室), **2008**, 27(9): 79–81.
- [12] Liu Y J, Mou S F, Du B, Lin A W. *Chin. J. Chromatogr.* (刘勇建, 牟世芬, 杜兵, 林爱武. 色谱), **2002**, 20(2): 129–132.
- [13] Cui Z W. *J. Packaging & Food Machinery*(崔政伟. 包装与食品机械), **2003**, 21(4): 1–4, 27.
- [14] Shi Y L, Cai Y Q, Liu J S, Mou S F, Wen M J. *Chin. J. Anal. Chem.* (史亚利, 蔡亚岐, 刘京生, 牟世芬, 温美娟. 分析化学), **2005**, 33(8): 1077–1080.
- [15] Zhang P, Shi Y L, Cai Y Q, Mou S F. *Chin. J. Anal. Chem.* (张萍, 史亚利, 蔡亚岐, 牟世芬. 分析化学), **2006**, 34(11): 1575–1578.
- [16] Ji M. *J. Inner Mongolia Petrochem. Ind.* (纪敏. 内蒙古石油化工), **2005**, (11): 18–20.

(上接第1323页)

- [3] Husain S W, Ghoulipour V, Sepahrian H. *Acta Chromatogr.*, **2004**, 14(2): 102–109.
- [4] Liu B J. *Chin. J. Prevent. Med.* (刘波静. 中华预防医学杂志), **2003**, 37(4): 270–273.
- [5] Chen H H, Dai J, Wang H X, Chen S W, Zhu S, Niu W M. *J. Instrum. Anal.* (陈辉华, 戴军, 王洪新, 陈尚卫, 朱松, 钮伟民. 分析测试学报), **2008**, 27(9): 951–955.
- [6] Marilyn J S, Ahemed M D, Donald E F. *Anal. Chim. Acta*, **2007**, 586(1/2): 269–274.
- [7] Vidal J L M, Aguilera – Luiz M, Romero – Gonzalez R. *J. Agric. Food Chem.*, **2009**, 57(2): 1760–1767.
- [8] Paschoal J A R, Reyes F G R, Rath S. *Food Addit. Contam.: Part A*, **2009**, 26(10): 1331–1332.
- [9] McClure E L, Wong C S. *J. Chromatogr. A*, **2007**, 1: 53–62.
- [10] Turnipseed S B, Andersen W C, Roybal J E. *Lab. Inf. Bull.*, **2009**, 21(2): 21–34.
- [11] Christian T, Schneider R J, Farber H A, Skutlarek D, Meyer M T, Goldbach H E. *Acta Hydrochim. Hydrobiol.*, **2003**, 31(1): 36–44.
- [12] Becker M, Zittlau E, Petz M. *Eur. Food Res. Technol.*, **2003**, 217: 449–456.
- [13] Ramirez A, Gutierrez R, Diaza G, Gonzalez C, Perez N. *J. Chromatogr. B*, **2003**, 784: 315–322.
- [14] Garces A, Zerzanova A, Kucera R, Barron D. *J. Chromatogr. A*, **2006**, 1137: 22–29.
- [15] Guo L M, Zhu K, Jiang H Y. *Chin. J. Chromatogr.* (郭黎明, 朱奎, 江海洋. 色谱), **2009**, 27(4): 412–416.
- [16] He Q, Kong X H, Li J H. *Chin. J. Anal. Lab.* (何强, 孔祥虹, 李建华. 分析实验室), **2010**, 8(29): 61–64.
- [17] Tan J H, Tang C M, Yu Y Y, Peng X Z. *Chin. J. Chromatogr.* (谭建华, 唐才明, 余以义, 彭先知. 色谱), **2007**, 25(4): 546–549.