

高效液相色谱-电感耦合等离子体质谱联用技术 测定畜禽肉制品中八种砷形态化合物

陈绍占^{1,2}, 刘丽萍¹, 杜振霞², 马辉³

(1. 北京市疾病预防控制中心, 北京 100013; 2. 北京化工大学理学院, 北京 100029;
3. 石家庄市疾病预防控制中心, 河北 石家庄 050011)

摘要:建立了畜禽肉制品中三价砷[As(III)]、一甲基砷(MMA)、二甲基砷(DMA)、五价砷[As(V)]、阿散酸(*p*-ASA)、洛克沙砷(ROX)、4-羟基苯砷酸(4-HPAA)和4-硝基苯砷酸(4-NPAA)等砷形态化合物的高效液相色谱-电感耦合等离子体质谱(HPLC-ICP-MS)分析方法。以甲醇-水(1:1, V/V)作为提取剂,采用超声水浴对样品进行前处理,选取 Dionex IonPac AS14 阴离子交换柱作为分析柱,50 mmol/L (NH₄)₂HPO₄ (pH 7.3)为流动相,对畜禽肉制品中的砷形态化合物进行分析测定。结果表明,8种砷形态化合物的线性范围为1~300 μg/L,相关系数(*R*²)均大于0.999,检出限为0.1~0.5 μg/L。以精密度考察方法重现性,相对标准偏差(RSD)均小于5%,方法加标回收率在80.8%~105.7%之间。通过对实际样品的分析测定,发现在畜禽肉制品中的有机砷制剂主要为三价砷阿散酸和洛克沙砷,另外还有一种未知的砷化合物,有待进一步研究确认。

关键词:高效液相色谱-电感耦合等离子质谱(HPLC-ICP-MS); 畜禽肉制品; 砷形态

中图分类号: O 657.63

文献标志码: A

文章编号: 1004-2997(2015)01-0033-07

doi: 10.7538/zpxb.youxian.2014.0049

Determination of Eight Arsenic Species Compounds in Livestock and Poultry Meat Products by HPLC-ICP-MS

CHEN Shao-zhan^{1,2}, LIU Li-ping¹, DU Zhen-xia², MA Hui³

(1. Beijing Center for Disease Prevention and Control, Beijing 100013, China;

2. Science Faculty, Beijing University of Chemical Technology, Beijing 100029, China;

3. Shijiazhuang Center for Disease Prevention and Control, Shijiazhuang 050011, China)

Abstract: As (III), MMA, DMA, As (V), *p*-ASA, ROX, 4-HPAA and 4-NPAA in livestock and poultry meat products were determined by high performance liquid chromatography-inductively coupled plasma mass spectrometry(HPLC-ICP-MS). Ultrasonic water bath was used to pretreat the samples with methanol-water (1:1, V/V) as extraction agent. Dionex IonPac AS14 anion exchange column was used as analytical column, 50 mmol/L (NH₄)₂HPO₄ (pH 7.3) was used as mobile phase, and the method was used to detect arsenic species compounds in livestock and poultry meat products.

收稿日期:2014-02-25;修回日期:2014-04-21

作者简介:陈绍占(1987—),男(汉族),河北邯郸人,硕士研究生,从事无机元素分析及形态研究。E-mail: csz1987buct@163.com

通信作者:刘丽萍(1965—),女(汉族),北京人,主任技师,从事元素及形态分析研究。E-mail: llp9312@163.com

网络出版时间:2014-08-20;网络出版地址: <http://www.cnki.net/kcms/doi/10.7538/zpxb.youxian.2014.0049.html>

The results show that the linear range of eight arsenic compounds is 1-300 $\mu\text{g/L}$, the correlation coefficient (R^2) is greater than 0.999, the detection limit is 0.1-0.5 $\mu\text{g/L}$. The reproducibility of this method was inspected by precision, RSD is less than 5%, the recovery is between 80.8% and 105.7%. Through the analysis of actual samples, As (III), *p*-ASA and ROX are checked out in livestock and poultry meat products, and an unknown arsenic compounds is also checked out.

Key words: high performance liquid chromatography-inductively coupled plasma mass spectrometry (HPLC-ICP-MS); livestock and poultry meat product; arsenic species compounds

1996年,我国农业部批准了有机砷制剂的使用,随后逐渐开始大量生产,并广泛用于畜禽饲养业^[1]。阿散酸(*p*-ASA)、洛克沙砷(ROX)、4-羟基苯砷酸(4-HPAA)和4-硝基苯砷酸(4-NPAA)等有机砷制剂作为饲料添加剂,可以促进畜禽生长、提高饲料转化率、提高产蛋量并增加色素沉着^[2]。但是,有机砷制剂具有一定的毒性,过量添加可使动物中枢神经系统失调,促使脑病和视神经萎缩的发病率升高;而且在动物体内的代谢过程中,有机砷制剂可能产生残留或降解为其他砷形态化合物,对动物产生毒害作用,残留了这些药物的畜禽肉制品如果进入到食物链,将会对人体健康^[1,3]造成威胁。因此,检测畜禽肉制品中有机砷制剂残留及其他砷形态化合物的含量具有重要的意义。

日本肯定列表规定,禽肉产品中洛克沙砷和硝基苯砷酸的允许残留量分别为0.15 mg/kg和0.20 mg/kg^[4]。Lasky等^[5]研究发现,美国市场上仔鸡肉中砷的平均残留量为0.39 mg/kg。而我国由于检测方法的局限性,对有机砷制剂的残留量还没有明确规定。

砷形态化合物的检测方法主要有高效液相色谱法^[1,6-9]、气相色谱-质谱法^[10]、液相色谱-质谱法^[11]、液相色谱-氢化物发生-原子荧光法^[12-14]和高效液相色谱-电感耦合等离子体质谱(HPLC-ICP-MS)法^[3,15]。目前,最常用的检测方法是HPLC-ICP-MS法,主要采用阴离子交换色谱柱检测As(III)、As(V)、DMA、MMA和AsB等砷形态。Liu等^[17]建立了阴离子交换色谱柱同时分离As(III)、As(V)、DMA、MMA、*p*-ASA和ROX 6种砷化合物的方法。

本实验拟采用Dionex IonPac AS14阴离子交换柱,建立一种有效分离检测畜禽肉制品

中As(III)、As(V)、DMA、MMA、*p*-ASA、ROX、4-HPAA和4-NPAA等8种砷形态化合物的HPLC-ICP-MS方法,旨为相关食品的监督检查提供方法参考。

1 实验部分

1.1 主要仪器与装置

1200型高效液相色谱仪,7500a型电感耦合等离子体质谱仪;美国Agilent公司产品;Dionex IonPac AS14阴离子交换柱(250 mm \times 4 mm \times 10 μm);美国Thermo-Fisher公司产品;Millipore 2150超纯水处理系统;美国Millipore公司产品;数控超声清洗器;昆山禾创超声仪器有限公司产品;高速冷冻离心机;美国贝克曼公司产品;冷冻干燥机;德国Marin Christ公司产品;电热板;LabTech公司产品。

1.2 主要材料与试剂

超纯水(电阻率18.2 M Ω ·cm):由超纯水处理系统制备;(NH₄)₂HPO₄(ACS 98%):Alfa Aesar(天津)化学有限公司产品;(NH₄)₂CO₃(分析纯),氨水和冰醋酸(优级纯):国药集团化学试剂有限公司产品;甲醇(HPLC级):北京迪马科技有限公司产品;亚砷酸根离子[As(III)]、砷酸根离子[As(V)]、一甲基砷(MMA)和二甲基砷(DMA):由中国计量科学研究院提供;洛克沙砷(ROX,99.0%)、4-硝基苯砷酸(4-NPAA,98%):德国Dr. Ehrenstorfer公司产品;阿散酸(*p*-ASA,99%):美国United States Pharmacope公司产品;4-羟基苯砷酸(4-HPAA,98%):日本东京株式会社产品。

1.3 实验条件

1.3.1 色谱条件 Dionex IonPac AS14阴离子交换柱(250 mm \times 4 mm \times 10 μm);流动相:

A 为 H_2O , B 为 $50 \text{ mmol/L } (\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ (pH 7.3); 柱温为室温; 进样体积 $25 \mu\text{L}$ 。梯度洗脱程序列于表 1。

表 1 梯度洗脱程序

Table 1 Gradient elution program

时间/min	流动相 A/%	流动相 B/%	流速/(mL/min)
0.00	100	0	1
2.00	100	0	1
4.00	80	20	1.2
8.99	80	20	1.2
9.00	0	100	1.5
18.99	0	100	1.5
19.00	100	0	1
22.00	100	0	1

1.3.2 质谱条件 入射功率 1450 W , 载气(高纯氦气)流速 0.65 L/min , 辅助气流速 0.45 L/min , 射频电压 1.72 V , 采样深度 7.8 mm , 泵速 0.3 r/s , 监测离子 $m/z 75(\text{As})$ 、 $m/z 35(\text{Cl})$ 。

1.4 样品的制备和前处理方法

在当地超市随机购买鸡胗、猪腰、猪肝等样品, 冷冻干燥后, 存放于干燥处。

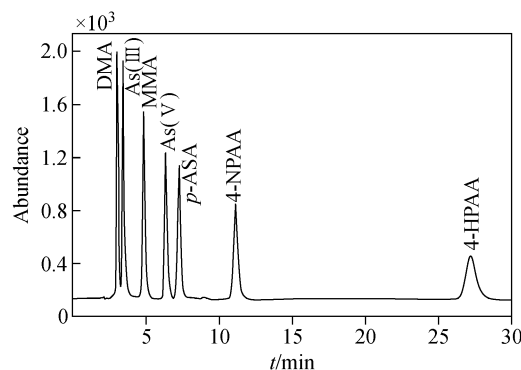
称取 0.4 g (精确到 0.001 g) 冻干样品于 15 mL 离心管中, 用 10 mL 甲醇-水溶液 ($1:1, \text{V/V}$) 作为提取液, $60 \text{ }^\circ\text{C}$ 水浴超声 2 h , 以 9000 r/min 离心 5 min , 将上清液转移至 100 mL 烧杯中。向残渣中加入 5 mL 甲醇-水溶液 ($1:1, \text{V/V}$), $60 \text{ }^\circ\text{C}$ 水浴超声 0.5 h , 以 9000 r/min 离心 5 min , 合并上清液, 此操作重复 2 次。然后, 用电热板于 $60 \text{ }^\circ\text{C}$ 蒸至近干, 再用超纯水复溶至 10 mL , 过 $0.45 \mu\text{m}$ 滤膜后, 上机测定。

2 结果与讨论

2.1 色谱条件的优化

2.1.1 色谱柱的选择 选用 Dionex IonPac-AS19、AS16 及 AS14 阴离子交换柱进行实验条件优化, 以 $50 \text{ mmol/L } (\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$ (pH 9.2) 作流动相, 1 mL/min 等度洗脱。选用 AS19 作分析柱时, 在 35 min 内, 7 种待测砷形态化合物可完全分离, 但 ROX 未能被洗脱出来, 其色谱图示于图 1; 以 $1.2, 1.5 \text{ mL/min}$ 流速洗脱时, 仍不能将 ROX 洗脱出来。选用 AS16 作分析柱时, 在 40 min 内, 6 种待测砷形态化合物可完全分离, 但 4-HPAA 和 ROX 未

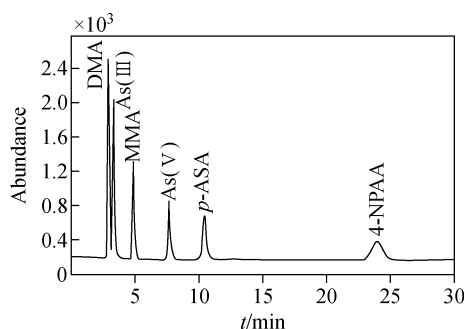
能被洗脱出来, 其色谱图示于图 2; 尝试加大流速, 仍不能将 4-HPAA 和 ROX 洗脱出来。选用 AS14 作分析柱时, 在 14 min 内, 8 种待测砷形态均被洗脱出来, 但 As(III)、DMA 和 MMA 不能达到基线分离, 且 *p*-ASA 和 As(V) 的出峰位置重叠。因此, 选择 AS14 阴离子交换柱作为分析柱, 并进一步优化实验条件。



注: 流动相流速为 1 mL/min 等度洗脱

图 1 Dionex IonPac AS19 作为分析柱, 7 种砷形态化合物的色谱图 ($10 \mu\text{g/L}$)

Fig. 1 Chromatogram of 7 arsenic species compounds with Dionex IonPac AS19 as analytical column



注: 流动相流速为 1 mL/min 等度洗脱

图 2 Dionex IonPac AS16 作为分析柱, 6 种砷形态化合物的色谱图 ($10 \mu\text{g/L}$)

Fig. 2 Chromatogram of 6 arsenic species compounds with Dionex IonPac AS16 as analytical column

2.1.2 流动相的选择 选用 AS14 作为分析柱, 以 $50 \text{ mmol/L } (\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$ (pH 9.2) 作为流动相, 采用梯度洗脱不能实现目标物的分离; 选用 $20 \text{ mmol/L } (\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ 作为流动相, 以 1 mL/min 流速等度洗脱, 30 min 内可完全洗脱 8 种砷形态化合物, 但 As(III)、DMA 和

MMA 不能达到基线分离,且 *p*-ASA 和 As(V) 的出峰位置重叠。为了实现目标化合物的分离,并缩短分析时间,采用 50 mmol/L (NH₄)₂HPO₄ (pH 7.3) 和 H₂O 作为流动相,梯度洗脱,优化后的洗脱程序已于表 1 中列出。此时,8 种砷形态化合物可完全分离,其色谱图示于图 3。

2.2 样品前处理条件的选择

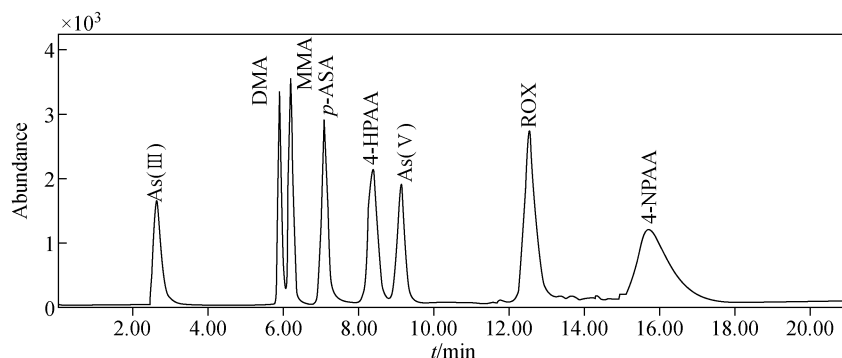
目前,分析砷形态化合物常用的提取剂为水、甲醇、甲醇-水溶液(1:1,V/V)等。水作为提取剂可用于简单基质样品的前处理,不适用于脂肪或蛋白含量高的样品。甲醇可用于提取有机砷形态和沉淀蛋白,适合高效液相色谱法,但若仪器无加氧装置,则不能直接用于 HPLC-ICP-MS 分析。甲醇-水溶液(1:1,V/V)可保持各化合物形态,避免形态之间的转化,提取后一般需采用旋转蒸发法、氮吹法或电热板蒸干法去除甲醇,稀释后上机测定。

本实验参考文献[16]进行实验条件优化,

选择甲醇-水溶液(1:1,V/V)作为提取液,于 60 °C 水浴中超声提取,提取液用电热板蒸干法去除甲醇。结果表明,提取液澄清,蛋白沉淀较好,可满足实验要求。

2.3 方法的线性范围及检出限

分别配制 0.5、1、5、10、25、50、100、200、300 μg/L 的 8 种砷形态化合物混合标准系列溶液,在优化的实验条件下进行分析,在 1~300 μg/L 范围内,相关系数(R^2)均大于 0.999。采用逐级稀释法,在 0.2 μg/L 时,As(III) 的信噪比(S/N) 大于 3;在 0.1 μg/L 时,DMA, MMA 和 As(V) 的信噪比大于 3;在 0.3 μg/L 时,*p*-ASA,4-HPAA 和 ROX 的信噪比大于 3;在 0.5 μg/L 时,4-NPAA 的信噪比大于 3。因此,确定 8 种砷形态化合物的检出限分别为 0.1~0.5 μg/L;如果称样量为 0.4 g,定容体积为 10 mL,8 种砷形态化合物的线性范围、检出限、最低检出浓度等数据列于表 2。



注:50 mmol/L (NH₄)₂HPO₄ (pH 7.3) 作为流动相梯度洗脱

图 3 Dionex IonPac AS14 作为分析柱,8 种砷形态化合物的色谱图 (10 μg/L)

Fig. 3 Chromatogram of 8 arsenic species compounds with Dionex IonPac AS14 as analytical column

表 2 方法的线性范围与检出限

Table 2 Linear range and detection limit of the method

分析物	线性范围/(μg/L)	线性方程	相关系数(R^2)	检出限 LOD/(μg/L)	最低检出浓度/(mg/kg)
As(III)	0.5~300	$y=17\ 852x-526.2$	0.999 8	0.2	0.005
DMA	0.5~300	$y=25\ 004x-5\ 947.9$	0.999 7	0.1	0.003
MMA	0.5~300	$y=26\ 875x+306.1$	0.999 5	0.1	0.003
As(V)	0.5~300	$y=31\ 355x-6\ 486.7$	0.999 8	0.1	0.003
<i>p</i> -ASA	0.5~300	$y=34\ 102x+2\ 527.5$	0.999 7	0.3	0.008
4-HPAA	0.5~300	$y=29\ 363x+7\ 356.4$	0.999 8	0.3	0.008
ROX	0.5~300	$y=61\ 057x-13\ 657$	0.999 8	0.3	0.008
4-NPAA	1.0~300	$y=62\ 370x-55\ 869$	0.999 4	0.5	0.013

2.4 方法的精密度及加标回收率

以精密度考察方法重现性。由于未检测到同时存在8种砷形态化合物的畜禽肉样品,因此向一市售猪肝样品中分别加入3个质量浓度水平的8种砷形态混合标准溶液,制成6个模拟样品进行精密度实验,同时进行加标回收率实验,结果列于表3。在3个质量浓度水平下,8种砷形态化合物的加标回收率在80.8%~105.7%之间,相对标准偏差(RSD)

均小于5%。

2.5 实际样品的测定

按照所建立的方法对猪肝、猪肾、猪心、鸡胗等实际样品进行测定,结果列于表4。结果表明,从畜禽肉样品中检出有机砷制剂主要为As(Ⅲ)、DMA、*p*-ASA和ROX,另外还有一种未知的砷形态化合物,而4-HPAA和4-NPAA均未检出。其中,猪肾2样品中砷形态的色谱图示于图4。

表3 方法的加标回收率与精密度

Table 3 Spike recoveries and precision of eight arsenic species compounds($n=6$)

砷形态	本底值/($\mu\text{g/L}$)	加入值/($\mu\text{g/L}$)	测定值/($\mu\text{g/L}$)	RSD/%	回收率/%
As(Ⅲ)	ND	5	4.4~4.9	4.9	88.9~98.2
		50	40.4~41.8	1.7	80.8~83.7
		100	81.3~87.8	4.3	81.3~87.8
DMA	0.8	5	5.5~5.7	2.4	94.4~98.7
		50	48.9~51.8	1.5	96.3~101.9
		100	94.0~99.9	2.4	93.2~99.1
MMA	ND	5	4.9~5.2	2.9	97.6~103.3
		50	50.6~51.3	0.7	101.3~102.6
		100	97.5~105.7	4.1	93.5~105.7
As(V)	ND	5	4.3~4.5	3.0	85.7~90.7
		50	48.1~49.7	4.2	99.5~104.6
		100	92.0~94.8	1.5	92.0~94.8
<i>p</i> -ASA	0.3	5	4.4~4.8	2.5	81.5~85.7
		50	47.5~50.5	3.2	94.3~100.5
		100	89.1~92.2	1.7	88.8~91.9
4-HPAA	ND	5	4.3~4.8	4.9	86.1~95.5
		50	50.6~51.1	0.5	101.2~102.2
		100	91.5~95.6	2.2	91.5~95.6
ROX	ND	5	4.3~4.5	1.9	85.7~89.0
		50	47.4~50.0	3.0	94.8~99.9
		100	86.3~92.7	4.0	86.3~92.7
4-NPAA	ND	5	4.1~4.5	4.8	81.8~90.9
		50	45.8~46.4	0.6	91.7~92.7
		100	84.7~91.0	3.6	84.7~91.0

表4 实际样品中砷形态化合物的测定结果

Table 4 Analysis results of arsenic species in the real samples ($n=3$)

样品编号	样品名称	As(Ⅲ)/($\mu\text{g/kg}$)	DMA/($\mu\text{g/kg}$)	MMA/($\mu\text{g/kg}$)	<i>p</i> -ASA/($\mu\text{g/kg}$)	ROX/($\mu\text{g/kg}$)	未知
1	猪肝1	ND	ND	7.2±1.9	8.5±1.2	24.7±0.7	YES
2	猪肝2	30.5±2.1	ND	ND	ND	19.2±1.5	YES
3	猪肾1	14.4±1.7	16.1±0.6	ND	7.9±1.5	ND	ND
4	猪肾2	ND	ND	23.7±1.5	71.0±0.9	ND	YES
5	酱猪肝	10.7±1.2	ND	ND	16.8±1.6	ND	ND
6	鲜猪肾	8.5±0.9	5.7±1.1	ND	8.5±1.1	ND	ND
7	鲜猪肝2	ND	4.8±0.4	ND	ND	ND	YES
8	猪心	ND	12.6±0.9	ND	ND	ND	ND
9	鸡胗1	ND	39.9±2.1	ND	13.7±2.4	ND	ND
10	鸡胗2	ND	24.9±1.6	ND	ND	ND	ND

注:ND为未检出;YES为检出

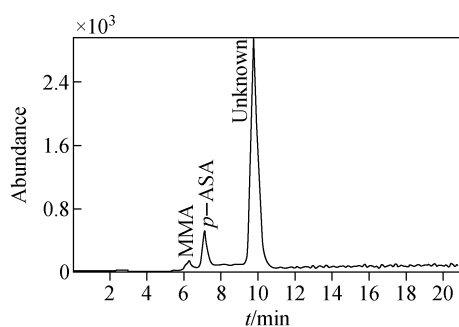


图4 猪肾2样品中砷形态化合物的色谱图
Fig. 4 Chromatogram
of arsenic species compounds in kidney 2 sample

3 结论

本实验建立了 HPLC-ICP-MS 联用技术同时测定畜禽肉制品中 As(Ⅲ)、MMA、DMA、As(V)、*p*-ASA、ROX、4-HPAA 和 4-NPAA 等 8 种砷形态化合物的分析方法。采用甲醇-水溶液(1:1, V/V)作提取剂超声提取样品,以 Dionex IonPac AS14 阴离子交换柱作为分析柱, 50 mmol/L(NH₄)₂HPO₄(pH 7.3)为流动相, 8 种砷形态化合物的检出限为 0.1~0.5 μg/L, 方法 RSD 均小于 5%, 加标回收率在 80.8%~105.7% 之间。通过对实际样品的分析, 发现畜禽肉样品中残留的砷形态化合物主要为三价砷、阿散酸和洛克沙砷, 另外还有一种未知砷形态化合物, 有待进一步研究确认。

参考文献:

[1] 陈冬梅,陶燕飞,王玉莲,等. 猪饲料中有机砷类药物残留检测方法[J]. 中国农业科技导报, 2008,10(增刊2):1-4.
CHEN Dongmei, TAO Yanfei, WANG Yulian, et al. Residue determination of organic arsenic in pig feeds using high performance liquid chromatography[J]. Journal of Agricultural Science and Technology, 2008, 10 (Suppl 2): 1-4 (in Chinese).

[2] CHAPMAN H D, MARSLER P, LAVORGNA M W. The effects of salinomycin and roxarsone on the performance of broileraw hen included in the feed for four, five, or six weeks and infected with eimeria species during the starter or grower phase of production[J]. Poultry Science, 2004, 83(5): 761-764.

[3] 杨丽君,刘玉敏,崔凤杰,等. 高效液相色谱-电感耦合等离子体质谱同时分析鸡肉中洛克沙砷,阿散酸和硝苯砷酸[J]. 食品科学,2011,32(18): 202-204.
YANG Lijun, LIU Yumin, CUI Fengjie, et al. Simultaneous determination of roxarsone, arsenilic and nitarosone in chicken by high performance liquid chromatography/inductively coupled plasma mass spectrometry [J]. Food Science, 2011, 32(18): 202-204(in Chinese).

[4] 食品中农业化学品残留限量编委会. 食品中农业化学品残留限量[M]. 北京:中国标准出版社, 2006:893,1 108.

[5] LASKY T, SUN W, KADRY A, et al. Mean total arsenic concentrations in chicken 1989—2000 and estimated exposures for consumers of chicken[J]. Environmental Health Perspectives, 2004, 112(1): 18.

[6] 徐锦萍,何珩,徐梦依,等. 反相高效液相色谱法测定饲料添加剂阿散酸中的阿散酸及掺假物质对氨基苯磺酸[J]. 色谱,2010,28(2):218-220.
XU Jinping, HE Heng, XU Mengyi, et al. Determination of arsenilic acid and sulfanilic acid as adulterant in feed additives by reversed-phase high performance liquid chromatography [J]. Chinese Journal of Chromatography, 2010, 28 (2): 218-220(in Chinese).

[7] 肖亚兵,韦玮,高健会,等. 固相萃取/高效液相色谱法对饲料中阿散酸、硝苯砷酸和洛克沙砷的同时测定[J]. 分析测试学报,2008,27(9):964-967.
XIAO Yabing, WEI Wei, GAO Jianhui, et al. Simultaneous determination of arsenilic, nitarosone and roxarsone in animal feed by solid-phase extraction and high performance liquid chromatography[J]. Journal of Instrumental Analysis, 2008, 27(9): 964-967(in Chinese).

[8] 曹庆云,颜惜玲,周武艺,等. 高效液相色谱测定鸡肝中洛克沙砷的方法研究[J]. 应用化学, 2005,34(10):640-643.
CAO Qingyun, YAN Xiling, ZHOU Wuyi, et al. Determination of roxarsone in chicken livers by high performance liquid chromatography[J]. Applied Chemical Industry, 2005, 34(10): 640-643 (in Chinese).

[9] CHEN D, ZHANG H, TAO Y, et al. Development of a high-performance liquid chromatogra-

- phy method for the simultaneous quantification of four organoarsenic compounds in the feeds of swine and chicken[J]. *Journal of Chromatography B*, 2011, 879(11): 716-720.
- [10] ROERDINK A R, ALDSTADT III J H. Sensitive method for the determination of roxarsone using solid-phase microextraction with multi-detector gas chromatography[J]. *Journal of Chromatography A*, 2004, 1 057(1): 177-183.
- [11] PERGANTIS S A, WINNIK W, BETOWSKI D. Determination of ten organoarsenic compounds using microbore high-performance liquid chromatography coupled with electrospray mass spectrometry-mass spectrometry[J]. *J Anal At Spectrom*, 1997, 12(5): 531-536.
- [12] SÁNCHEZ-RODAS D, GÓMEZ-ARIZA J L, OLIVEIRA V. Development of a rapid extraction procedure for speciation of arsenic in chicken meat[J]. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 2006, 385(7): 1 172-1 177.
- [13] LIU J, YU H, SONG H, et al. Simultaneous determination of p-arsanilic acid and roxarsone in feed by liquid chromatography-hydride generation online coupled with atomic fluorescence spectrometry[J]. *Journal of Environmental Monitoring*, 2008, 10(8): 975-978.
- [14] MONASTERIO R P, LONDONIO J A, FARIAS S S, et al. Organic solvent-free reversed-phase ion-pairing liquid chromatography coupled to atomic fluorescence spectrometry for organoarsenic species determination in several matrices[J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2011, 59(8): 3 566-3 574.
- [15] 肖亚兵,高健会,曾宇,等. HPLC-ICP-MS法对动物源性食品中阿散酸,硝苯砷酸与洛克沙砷残留量的同时测定[J]. *分析测试学报*, 2008, 27(11): 1 206-1 209.
- XIAO Yabing, GAO Jianhui, ZENG Yu, et al. Simultaneous determination of arsanilic, nitarsone and roxarsone residues in foods of animal origin by HPLC-ICP-MS[J]. *Journal of Instrumental Analysis*, 2008, 27(11): 1 206-1 209 (in Chinese).
- [16] NAM S H, OH H J, MIN H S, et al. A study on the extraction and quantitation of total arsenic and arsenic species in seafood by HPLC-ICP-MS[J]. *Microchemical Journal*, 2010, 95(1): 20-24.
- [17] LIU X P, ZHANG W F, HU Y N, et al. Extraction and detection of organoarsenic feed additives and common arsenic species in environmental matrices by HPLC-ICP-MS[J]. *Microchemical Journal*, 2013, 108: 38-45.