

DOI: 10.19812/j.cnki.jfsq11-5956/ts.20240911002

引用格式: 丁雨春, 胡伟, 包智影, 等. 超高效液相色谱-串联质谱法测定食品中一种新型非法添加物伐地那非杂质 31[J]. 食品安全质量检测学报, 2025, 16(11): 193-199.

DING YC, HU W, BAO ZY, *et al.* Determination of a new illegal additive, vardenafil impurity 31 by ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Journal of Food Safety & Quality, 2025, 16(11): 193-199. (in Chinese with English abstract).

# 超高效液相色谱-串联质谱法测定食品中一种 新型非法添加物伐地那非杂质 31

丁雨春<sup>1</sup>, 胡伟<sup>1</sup>, 包智影<sup>1</sup>, 王梦颖<sup>1</sup>, 童晓婷<sup>1</sup>, 徐慧<sup>2</sup>, 程梦幸<sup>1\*</sup>

[1. 江西求实司法鉴定中心, 南昌 330000; 2. 安捷伦科技(中国)有限公司, 200000 上海]

**摘要:** **目的** 建立超高效液相色谱-串联质谱法(ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry, UPLC-MS/MS)测定食品中一种新型非法添加物伐地那非杂质 31 的定性定量检测方法。**方法** 运用 UPLC-MS/MS 对待测试样中 92 种那非类非法添加物质进行筛查, 运用超高效液相色谱-高分辨质谱法(ultra performance liquid chromatography-high resolution mass spectrometry, UPLC-HRMS)对待测试样进行结构解析, 推断出结构, 购入标准品经验证后, 确认待测试样中目标物为伐地那非杂质 31, 采用 UPLC-MS/MS 建立多反应监测(multiple reaction monitoring, MRM)方法, 定性定量测定食品中伐地那非杂质 31。**结果** 本方法伐地那非杂质 31 的检出限为 5  $\mu\text{g}/\text{kg}$ , 定量限为 10  $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。在 0.1~50.0 ng/mL 的线性范围内线性关系良好, 相关系数( $r$ )为 0.9976, 平均加标回收率在 85.33%~89.41%之间, 相对标准偏差(relative standard deviation, RSD)小于 10%。**结论** 所建立的检测方法简便准确, 可用于食品中新型非法添加物伐地那非杂质 31 的定性定量测定。**关键词:** 超高效液相色谱-串联质谱法; 高分辨质谱法; 非法添加物

## Determination of a new illegal additive, vardenafil impurity 31 by ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry

DING Yu-Chun<sup>1</sup>, HU Wei<sup>1</sup>, BAO Zhi-Ying<sup>1</sup>, WANG Meng-Ying<sup>1</sup>,  
TONG Xiao-Ting<sup>1</sup>, XU Hui<sup>2</sup>, CHENG Meng-Xing<sup>1\*</sup>

[1. Jiangxi Qiushi Judicial Identification Center, Nanchang 330000, China;  
2. Agilent Technologies Technology (China) Co., Ltd., Shanghai 200000, China]

**ABSTRACT: Objective** To establish a method for the qualitative and quantitative determination of a new illegal additive in foods, vardenafil impurity 31 by ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry (UPLC-MS/MS). **Methods** The UPLC-MS/MS was used to screen 92 kinds of substances of nafilis illegally added in foods. The ultra performance liquid chromatography-high resolution mass spectrometry (UPLC-HRMS) was used to analyze the structure of the test sample. After the structure was inferred, the standard substance was purchased and

收稿日期: 2024-09-11

第一作者: 丁雨春(1981—), 男, 助理工程师, 主要研究方向为食品药品非法添加。E-mail: 17307009478@163.com

\*通信作者: 程梦幸(1995—), 女, 助理工程师, 主要研究方向为食品药品非法添加。E-mail: 791924890@qq.com

verified. The target substance in the test sample was confirmed to be vardenafil impurity 31. The multiple reaction monitoring (MRM) method was established by UPLC-MS/MS, which was suitable for the qualitative and quantitative determination of vardenafil impurity 31 in foods. **Results** The limit of detection of vardenafil impurity 31 was 5  $\mu\text{g}/\text{kg}$ , and the limit of quantitation was 10  $\mu\text{g}/\text{kg}$ . The linear relationship was good in the linear range of 0.1–50.0  $\text{ng}/\text{mL}$ , the correlation coefficient ( $r$ ) was 0.9976, the average recovery rate was 85.33%–89.41%, and the relative standard deviation (RSD) was less than 10%. **Conclusion** The established method is simple and accurate, and can be used for the qualitative and quantitative determination of the new illegal additive vardenafil impurity 31 in foods.

**KEY WORDS:** ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry; high resolution mass spectrometry; illegal additives

## 0 引言

近年来,食品中非法添加药物的现象趋于多元化、隐蔽化,许多不法商贩为了使产品达到宣传的功效,会在食品、保健品中添加危害身体健康的药物成分,从而牟取暴利<sup>[1-2]</sup>,并且添加药物的种类逐渐从广为熟知的化合物变成相关衍生物等<sup>[3-5]</sup>。食品中非法添加药物的检测手段有光谱法<sup>[6-8]</sup>、色谱法<sup>[9-10]</sup>以及质谱法<sup>[11-15]</sup>,目前以液相色谱法-串联质谱法应用为主<sup>[16]</sup>,另外还有高分辨质谱法(high resolution mass spectrometry, HRMS)<sup>[17-18]</sup>及定量核磁共振技术等用于新型非法添加的筛查和确证<sup>[19-25]</sup>。以宣传壮阳、缓解疲劳等功效的食品及保健品为例,常见非法添加物质为那非类、拉非类药物,是 5 型磷酸二酯酶的抑制剂化合物(5-type phosphodiesterase inhibitors, PDE-5)<sup>[26]</sup>,主要代表物质为西地那非、他达拉非、伐地那非、红地那非等,这类物质在医学上可用于治疗男性的勃起功能障碍,但将药品或其他非食用物质添加到食品中已经违反了我国的《食品安全法》<sup>[27]</sup>。目前国家市场监督管理总局于 2018 年发布了食品补充检验方法 BJS 201805《食品中那非类物质的测定》,涵盖了 90 种那非、拉非类药物,适用于饮料、果冻、蛋白粉、牡蛎粉、饼干、糖果、酒类及咖啡等食品中那非类物质的测定,但是那非类衍生物可能远不止这 90 种,国家市场监督管理总局于 2022 年又发布了《市场监管总局办公厅关于打击食品中非法添加物那非拉非类药物及其系列衍生物违法行为的意见》并发布了新型非法添加物苯丙代卡巴地那非的测定方法,2023 年国家市场监督管理总局再次发布了食品中伐地那非杂质 30 的测定方法,但迄今为止,官方还未发布关于食品中伐地那非杂质 31 的测定方法,伐地那非杂质 30 或 31 是指在伐地那非这种药物的生产和存储过程中,由于化学反应的副产品、原料药的不纯或者其他原因而产生的特定杂质,其化学结构与伐地那非相似,根据《市场监管总局办公厅关于打击食品中非法添加物那非拉非类药物及其系列衍生物违法行为的意见》,伐地那非杂质与伐地那非核心药效团一致,具有等同属性和等同危害,食用添加有那非、拉非类药物及其衍生物的

食品对人体有毒副作用的风险,影响人体健康甚至危害生命。在实际食品非法添加案件中,那非类结构类似物不断出现,其结构未知且缺乏标准品,亟需建立快速、准确的定性鉴定和定量分析方法,为食品安全监管提供有力的技术支持。因而,食品和保健食品中非法添加物筛查策略<sup>[28-30]</sup>显得尤为重要。

笔者在日常检验鉴定工作中发现公安送检的某产品经过上述 92 种那非类物质筛查后,有疑似检出但保留时间无法匹配,因此对该疑似那非类目标物进行结构确认,推断其结构式疑似伐地那非杂质 31,并进一步购买伐地那非杂质 31 标准品进行确证后建立超高效液相色谱-串联质谱法(ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry, UPLC-MS/MS)定性定量检测,经方法学验证后能够适用于食品中伐地那非杂质 31 的定性定量检验工作,以期完善那非类非法添加谱库,并为公安的非法添加案件检验鉴定问题提供参考。

## 1 材料与方法

### 1.1 材料与试剂

待测样品为某品牌咖啡,来自于某某公安局提供;质控样品为速溶咖啡,购于附近超市。

甲醇、乙腈(色谱纯,国药集团化学试剂有限公司);蒸馏水(屈臣氏集团);甲醇、乙腈(质谱纯,上海麦克林生化科技股份有限公司);甲酸、乙酸铵(质谱纯,罗恩试剂);90 种那非混合标准溶液[质量浓度 20  $\mu\text{g}/\text{mL}$ ,曼哈格(上海)生物科技有限公司];甲醇中伐地那非杂质 30 溶液(质量浓度 100  $\mu\text{g}/\text{mL}$ ,北京普天同创生物科技有限公司);苯丙代卡巴地那非溶液(质量浓度 100  $\mu\text{g}/\text{mL}$ ,天津阿尔塔科技有限公司);伐地那非杂质 31 对照品(1 mg,深圳鼎邦化学品有限公司)。

### 1.2 仪器与设备

Xevo TQ-XS 超高效液相色谱-串联质谱仪、Waters ACQUITY UPLC  $\text{C}_{18}$  色谱柱(2.1 mm $\times$ 100 mm, 1.7  $\mu\text{m}$ )(美国 Waters 公司);Agilent 1290 Infinity II-6546 QTOF 液质联

用系统、Agilent Eclipse C<sub>18</sub> 120 色谱柱(3.0 mm×150 mm, 1.8 μm)(美国安捷伦科技有限公司); MS105 十万分之一天平(瑞士梅特勒-托利多仪器有限公司); TG16-WS 台式离心机(湖南湘仪实验室仪器开发有限公司); CR-020S 超声清洗器(深圳市春霖清洗设备有限公司); MX-F 涡旋振荡器(大龙兴创实验仪器股份公司)。

### 1.3 标准溶液的配制

用甲醇将 90 种那非混合标准溶液(质量 20 μg/mL)(组分为 BJS 201805 标准中涉及的 90 种那非类物质)、甲醇中伐地那非杂质 30 溶液(100 μg/mL)和甲醇中苯丙代卡巴地那非溶液(100 μg/mL)分别稀释至 1 μg/mL, 备用; 将 1 mg 伐地那非杂质 31 对照品全部溶解于 1 mL 甲醇中, 得到 1 mg/mL 的甲醇中伐地那非杂质 31 标准储备溶液, 并用甲醇逐级稀释至 1 μg/mL, 备用。

### 1.4 样品的提取

#### 1.4.1 待测试样

称取待测样品(某品牌咖啡)0.2 g(精确到 0.0001 g)于 10 mL 具塞离心管中, 先加入 8 mL 乙腈, 超声提取 15 min 后冷却至室温, 4500 r/min 下离心 5 min 后将上清液转移至 10 mL 容量瓶中, 用乙腈定容至刻度, 取适量上清液过 0.22 μm 滤膜, 取续滤液上机。

#### 1.4.2 质控样品

称取空白速溶咖啡样品适量, 添加已知浓度的目标物, 与待测试样同法处理, 制得质控样品。

### 1.5 仪器条件

#### 1.5.1 UPLC-MS/MS 条件

ACQUITY UPLC I-Class 液相色谱条件: 流动相 A 为含 5 mmol/L 乙酸铵的 0.1% 甲酸水溶液; 流动相 B 为质谱纯乙腈; 流速为 0.3 mL/min; 色谱柱型号为 Waters ACQUITY UPLC C<sub>18</sub> (2.1 mm×100 mm, 1.7 μm); 柱温设置为 40 °C; 梯度洗脱程序: 0~0.5 min, 70% A; 0.5~3.5 min, 70%~35% A; 3.5~4.0 min, 35%~5% A; 4.0~5.0 min, 5% A; 5.0~5.1 min, 5%~70% A; 5.1~6.5 min, 70% A。

TQ-XS 质谱条件: 电喷雾离子源(electron spray ionization, ESI); 正离子扫描模式; 多重反应监测(multiple reaction monitoring, MRM)模式, 母离子  $m/z$  519.3, 锥孔电压为 25 V; 定量离子  $m/z$  151.1, 碰撞能量为 30 eV; 定性离子  $m/z$  299.1, 碰撞能量为 32 eV。

#### 1.5.2 高分辨质谱法条件

Agilent 1290 Infinity II-6546 QTOF 液相色谱条件: 流动相 A 为 0.1% 甲酸水溶液; 流动相 B 为质谱纯甲醇; 流速为 0.4 mL/min; 色谱柱型号为 Agilent Eclipse C<sub>18</sub> 120 (3.0 mm×150 mm, 1.8 μm); 柱温设置为 35 °C; 梯度洗脱程序: 0~1 min, 90%~50% A; 1~16 min, 50%~35% A; 16~19 min, 35%~2%; 19~22 min, 2% A; 22~22.1 min, 2% A;

22.1~26 min, 90% A。

6546 QTOF 质谱条件: 增强型喷射流电喷雾离子源(advanced jet stream electron spray ionization, AJS ESI)离子源; 正离子扫描模式; 干燥气温度: 300 °C; 干燥气流速: 10 L/min; 雾化器压力: 45 psi; 鞘气温度: 350 °C; 鞘气流速: 11 L/min; 毛细管电压: 4000 V; 喷嘴电压: 0 V; 全扫描一级质谱, 质量采集范围为 50~1100 Da; 全扫描二级质谱, 质量采集范围为 50~1100 Da。

### 1.6 数据处理

UPLC-MS/MS 数据采用 MassLynx V4.2 软件收集和 处理, HRMS 数据使用 Agilent MassHunter Acquisition V10.0 软件采集, 并使用 Agilent MassHunter Qualitative Analysis, V10.0 分析处理, 同时使用 WPS Office 2019 进行 图表的绘制。

## 2 结果与分析

### 2.1 疑似物的发现

待测样品(某品牌咖啡)来自于某公安局, 怀疑其中含有那非类物质, 首先按照 BJS 201805 对待测样品进行处理后上机检测, 未检出标准中涵盖的 90 种那非类物质、伐地那非杂质 30 和苯丙代卡巴地那非, 但样品在丙氧苯基羟基基莫西地那非离子通道中出现了 1 个响应很高的色谱峰, 保留时间为 2.22 min, 其特征碎片与丙氧苯基羟基基莫西地那非符合, 但标准品丙氧苯基羟基基莫西地那非的保留时间为 2.57 min, 两者不匹配(见图 1)。经分析推断待测样品中可能含有一种类似物或衍生物, 需进一步确认。

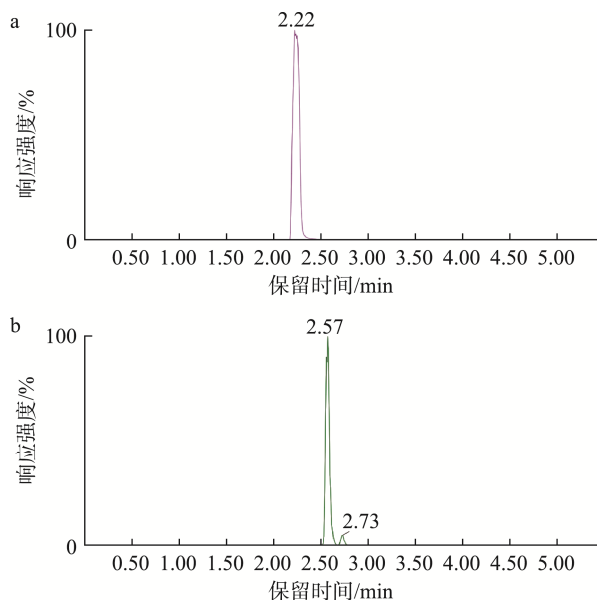


图1 待测样品(a)和丙氧苯基羟基基莫西地那非标准品(b)的色谱图  
 Fig.1 Chromatograms of test sample (a) and propoxyphenyl homohydroxysildenafil standard substance (b)

## 2.2 HRMS 定性分析

按照 1.5.2 条件进行定性筛查,在咖啡样品的总离子流色谱图的 7.454 min 处出现 1 个色谱峰(见图 2),根据二级质谱图(见图 3),其准分子离子峰为  $m/z$  519.2390([M+H]<sup>+</sup>),利用安捷伦定性软件分析匹配  $m/z$  519.2389 的分子式为 C<sub>24</sub>H<sub>34</sub>N<sub>6</sub>O<sub>5</sub>S,推测该化合物的分子式(C<sub>24</sub>H<sub>34</sub>N<sub>6</sub>O<sub>5</sub>S)与丙氧苯基羟基莫西地那非分子式相同,利用 Agilent 已有 PCDL (personal compound database and library)数据库中化合物二级谱库,对目标物进行比对发现,目标物分子式虽与丙氧苯基羟基莫西地那非分子式相同,但二者的二级质谱匹配得分不高,可排除目标物为丙氧苯基羟基莫西地那非的可能性。

从图 3 可见,目标物存在一个主要碎片离子,  $m/z$  为 151.0868,分析那非类主要代表物西地那非和伐地那非的二级质谱图发现,伐地那非的二级碎片离子包含  $m/z$  为 151.0867,与目标物非常接近,因此本研究比较了伐地那非、羟基伐地那非和目标物的二级质谱图,均包含特征碎片离子  $m/z$  为 151.0868 和  $m/z$  为 376.1079,推测目标物可能为伐地那非类似物,利用安捷伦 MSC (molecular structure correlator)软件和 Sirius 质谱数据分析软件结合化合物二级质谱图推测出化合物的可能结构式(图 4a),与伐地那非结构(图 4b)相比丙氧基替代了乙氧基,另外多一个-OH 取代,本研究根据分子式和推断的结构式查找化源网,发现可能为伐地那非杂质 31,因此立即购置了标准品进行确认。

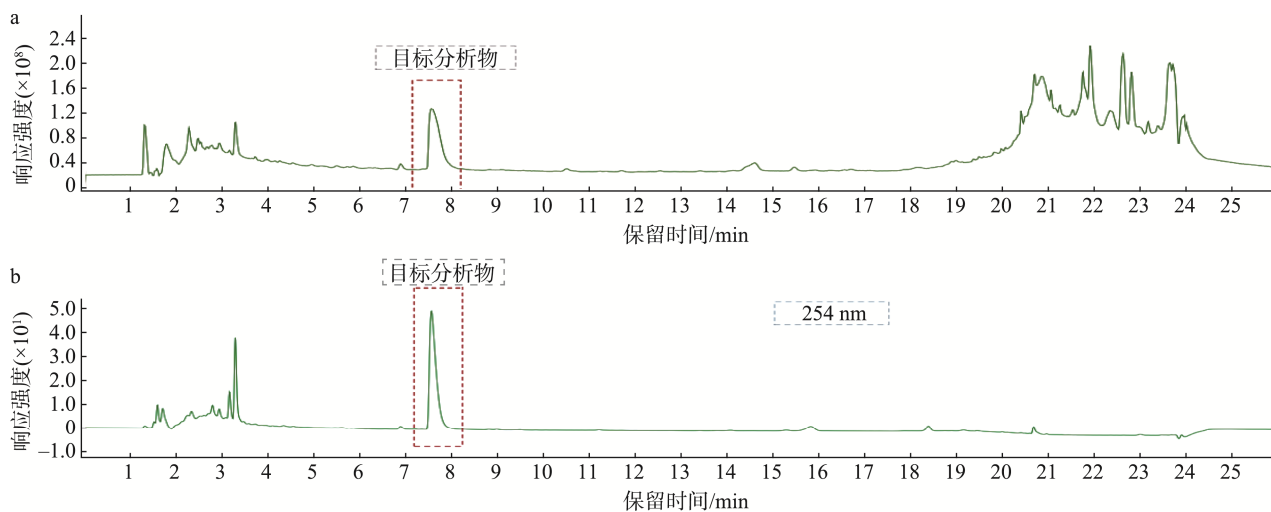


图2 总离子流色谱图(a)和UV图(b)

Fig.2 Diagram of total ion flow (a) and UV (b)

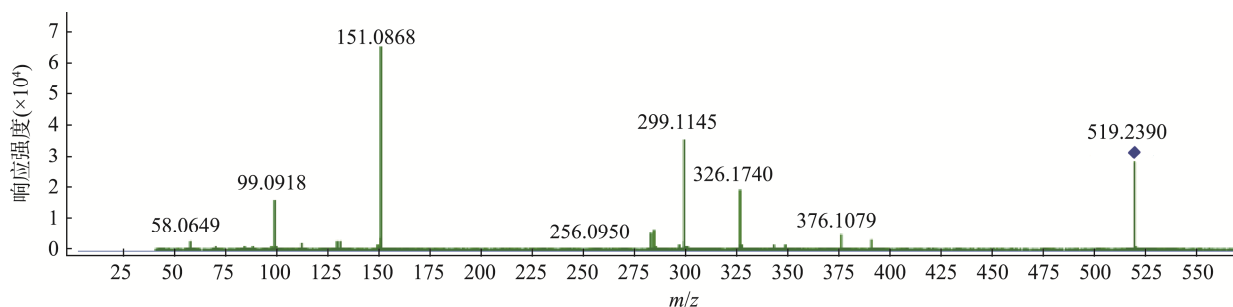


图3 二级质谱图

Fig.3 Secondary mass spectrometry images

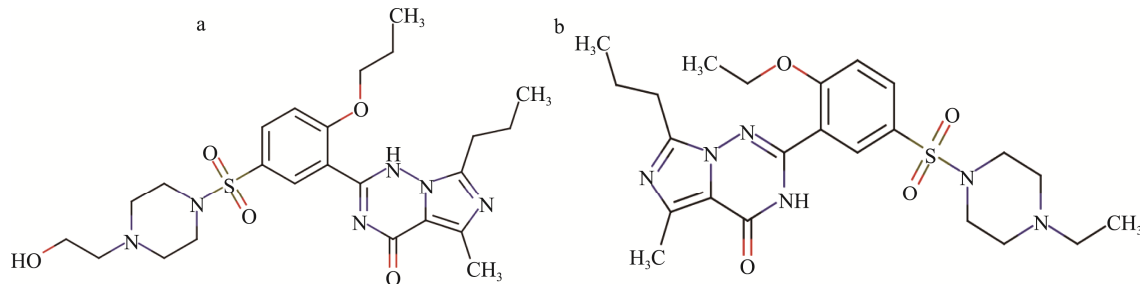


图4 目标物推断结构式(a)和伐地那非结构式(b)

Fig.4 Inferred structural formula (a) and vardenafil structural formula (b)

## 2.3 对照品定性分析

根据分子式为  $C_{24}H_{34}N_6O_5S$  及推断出的结构式, 本研究购置了伐地那非杂质 31 对照品, 并用甲醇作为溶剂配制了伐地那非杂质 31 对照品, 蠕动泵进样优化质谱参数, 得到母离子碎片为  $m/z$  519.3, 子离子碎片为  $m/z$  151.1 和  $m/z$  299.1, 进一步优化液相色谱参数、质谱参数得到 1.5.1 条件。用 10 mL 甲醇浸提待测样品, 按照上述仪器条件测定, 与伐地那非杂质 31 对照品比对, 从图 5 可见, 伐地那非杂质 31(图 5a)和待测样品(图 5b)均在 2.27 min 左右处出现了特征峰, 离子丰度比误差 <20%, 满足定性条件, 可确认待测样品中含有伐地那非杂质 31, 且从峰高可看出待测样品中伐地那非杂质 31 含量较高。

## 2.4 定量测定结果分析

### 2.4.1 提取条件的优化

考虑到以往发布的关于那非类物质的检测方法均采用甲醇作为提取溶剂, 本研究选择速溶咖啡粉作为空白样品, 按照 1.4.2 操作, 制得伐地那非杂质 31 含量为 250  $\mu\text{g}/\text{kg}$  的质控样品, 然后先加入 8 mL 甲醇超声提取 15 min 后冷却至室温, 4500 r/min 下离心 5 min 后将上清液转移至 10 mL 容量瓶中, 用甲醇定容至刻度, 取适量上清液过 0.22  $\mu\text{m}$  滤膜, 取续滤液上机。重复 6 次测定, 计算得到回收率在 30%~55%之间。

本研究首先考察了不同提取溶剂和提取时间对提取效果的影响, 在 4 组实验条件(见表 1)下各重复测定质控样品 6

次, 通过分析对比平均加标回收率发现, 乙腈作为提取溶剂时, 加标回收率在 100%以上, 而甲醇作为提取溶剂时, 加标回收率约为 30%~40%。可见使用乙腈的提取效果更好。

同时也发现, 超声提取时间 15 min 和 30 min 两种条件下, 加标回收率差异不明显。因此最终确定乙腈作为提取溶剂, 超声提取时间为 15 min。

### 2.4.2 线性关系、检出限和定量限

取空白咖啡样品, 按照 1.4.1 进行提取, 得到空白基质提取液过 0.22  $\mu\text{m}$  滤膜, 然后用于稀释系列标准曲线溶液, 得到伐地那非杂质 31 质量浓度为 0.1、0.2、1.0、5.0、20.0、50.0  $\text{ng}/\text{mL}$  的标准曲线, 上机测定, 同步测定空白提取液。外标法定量, 以质量浓度( $X$ ,  $\text{ng}/\text{mL}$ )为横坐标, 峰面积( $Y$ )为纵坐标, 用 MassLynx V4.2 处理数据绘制标准曲线, 得到线性方程为  $Y=105225X+4771.89$ , 线性系数  $r=0.9976$ , 目标物在 0.1~50.0  $\text{ng}/\text{mL}$  的线性范围内线性关系良好。另外按照 1.4.2 制备伐地那非杂质 31 含量分别为 5  $\mu\text{g}/\text{kg}$  和 10  $\mu\text{g}/\text{kg}$  的质控样品, 按照 1.5.1 平行测定 7 次, 上机测定响应分别满足  $S/N \geq 3$ 、 $S/N \geq 10$  的要求, 因而以 5  $\mu\text{g}/\text{kg}$  为检出限, 以 10  $\mu\text{g}/\text{kg}$  为定量限。

### 2.4.3 回收率与精密度

按照 1.4.2 制得伐地那非杂质 31 含量分别为 10、25、250  $\mu\text{g}/\text{kg}$  的低中高 3 个水平的质控样品, 按照 1.5.1 平行测定 6 次, 计算平均回收率和精密度。由表 2 可见, 不同加标水平下, 回收率在 85.33%~89.41%之间, RSDs 在 1.27%~3.93%之间, 满足分析要求。

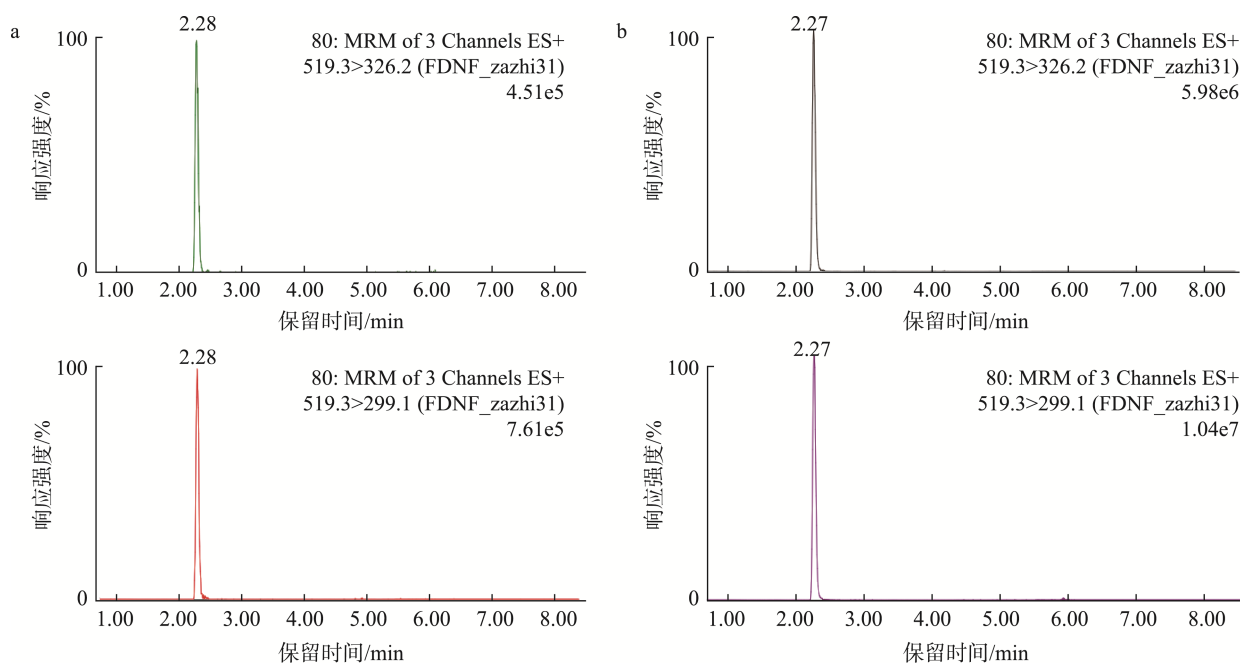


图5 伐地那非杂质31对照品(a)和待测样品(b)提取离子色谱图

Fig.5 Extracted ion chromatograms of vardenafil impurity 31 reference substance (a) and test sample (b)

表 1 各实验条件下的平均回收率和精密度( $n=6$ )Table 1 Average recovery rates and precisions under various experimental conditions ( $n=6$ )

组别	提取溶剂	提取时间/min	平均加标回收率/%	精密度/%
A	甲醇	15	32.28	0.63
B	甲醇	30	31.67	0.56
C	乙腈	15	114.31	0.52
D	乙腈	30	118.33	0.59

表 2 各加标水平下的平均回收率和精密度( $n=6$ )Table 2 Average recoveries and precisions of each standard addition level ( $n=6$ )

含量/( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	平均回收率/%	RSDs/%
10	85.33	3.93
25	88.33	1.27
250	89.41	2.16

注: 相对标准偏差(relative standard deviation, RSD)。

## 2.5 实际样品的测定

采用本研究建立方法对以往检测过那非类非法添加的 40 个样品进行复测, 发现 3 款咖啡中出现了伐地那非杂质 31 的特征峰, 保留时间、离子丰度比与对照品相匹配, 可认定在该 3 款产品中检出了伐地那非杂质 31 成分, 含量在  $1.0 \times 10^4 \sim 5.0 \times 10^4$  mg/kg 之间。

## 3 结论

本研究通过 UPLC-MS/MS 筛查、HRMS 结构解析、标准品确证, 发现并鉴定了一种新型的非法添加物伐地那非杂质 31, 该化合物尚无相关检验标准, 因此本研究建立了食品中伐地那非杂质 31 的 UPLC-MS/MS 检测方法, 考察了乙腈和甲醇分别作为提取溶剂以及超声时间对提取效果的影响, 以加标回收率和精密度作为考察指标, 最终确定乙腈的提取效果优于甲醇, 同时发现超声时间 15 min 和 30 min 的差异不大, 因此确定乙腈作为提取溶剂, 超声提取时间为 15 min。同时对方法的检出限、定量限、标准曲线相关性进行验证实验, 实验结果表明在伐地那非杂质 31 质量浓度在 0.1~50.0 ng/mL 范围内线性关系良好, 相关系数 ( $r$ ) 为 0.9976, 检出限为 5  $\mu\text{g}/\text{kg}$ , 定量限为 10  $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。并对空白样品进行 10、25、250  $\mu\text{g}/\text{kg}$  3 个添加水平的加标回收率实验, 回收率在 85.33%~89.41%之间, 精密度良好, RSDs 均小于 10%。该方法提取简单, 回收率稳定, 灵敏度高, 能够实现食品中伐地那非杂质 31 的鉴定检测工作。笔者将该方法用于食品非法添加案件样品检测, 发现有 3 款咖啡中检出了伐地那非杂质 31 成分, 本检测方法可以助力食品安全检测工作的开展。

## 参考文献

- [1] 胡锦涛, 姚子云. 保健食品“奇效”背后的圈套[J]. 记者观察, 2024(4): 46-49.  
HU JW, YAO ZY. The trap behind the 'wonder effect' of dietary supplements [J]. Reporters' Notes, 2024(4): 46-49.
- [2] 田明, 王玉伟, 冯军, 等. 食品市场“功能化”趋势下食品声称引发问题的分析及科学管理的建议[J/OL]. 食品工业科技, 1-11. [2024-09-16]. <https://doi.org/10.13386/j.issn1002-0306.2024020226>  
TIAN M, WANG YW, FENG J, et al. Analysis of problems caused by food claims and suggestions for scientific management under the trend of 'functionalization' in the food market [J/OL]. Science and Technology of Food Industry, 1-11. [2024-09-16]. <https://doi.org/10.13386/j.issn1002-0306.2024020226>
- [3] 贾婧怡, 李玮, 张焱, 等. 保健食品中非法添加药物事件及检测技术[J]. 食品安全质量检测学报, 2020, 11(11): 3558-3570.  
JIA JY, LI W, ZHANG Y, et al. Illegally added drugs events and detecting techniques in dietary supplements [J]. Journal of Food Safety & Quality, 2020, 11(11): 3558-3570.
- [4] 赫文龙, 宫国强, 刘斌, 等. 常用保健食品中可能的非法添加物质分析[J]. 食品安全质量检测学报, 2019, 10(6): 1438-1444.  
HE WL, GONG GQ, LIU B, et al. Analysis of possible illegally added substances in common dietary supplements [J]. Journal of Food Safety & Quality, 2019, 10(6): 1438-1444.
- [5] 高涛, 唐华丽, 孙桂菊, 等. 保健食品产业中存在的问题及对策分析[J]. 食品与发酵工业, 2021, 47(2): 311-321.  
GAO T, TANG HL, SUN GJ, et al. Analysis of problems and countermeasures in the dietary supplements industry [J]. Food and Fermentation Industries, 2021, 47(2): 311-321.
- [6] 倪嘉倩, 孙宁, 鲍哈锋, 等. 拉曼光谱识别技术在食品非法添加物质检测中的应用[J]. 中国食品工业, 2024(12): 97-99.  
NI JQ, SUN N, BAO HF, et al. Application of Raman spectroscopy identification technology in the detection of illegally added substances in foods [J]. China Food Industry, 2024(12): 97-99.
- [7] 吴芳海, 许琨琨, 卢文斌, 等. 表面增强拉曼光谱在保健食品常见非法添加药物成分测定中的应用[J]. 食品安全导刊, 2023(33): 158-160.  
WU FH, XU KK, LU WB, et al. Application of surface-enhanced Raman spectroscopy in the determination of common illegally added drugs in dietary supplements [J]. China Food Safety Magazine, 2023(33): 158-160.
- [8] 胡家勇, 周陶鸿, 姚晓帆, 等. 表面增强拉曼光谱法筛查保健酒中那非类药物[J]. 食品与机械, 2022, 38(9): 64-71.  
HU JY, ZHOU TH, YAO XF, et al. Surface-enhanced Raman spectroscopy screening of nafildrugs in health wine [J]. Food & Machinery, 2022, 38(9): 64-71.
- [9] 赵琪, 吴光颖, 张静怡, 等. UPLC-DAD 同时测定降血压类保健食品中 20 种非法添加化学药物[J]. 粮食与油脂, 2024, 37(7): 138-141, 158.  
ZHAO Q, WU GY, ZHANG JY, et al. UPLC-DAD was used to simultaneously determine 20 chemical drugs illegally added in antihypertensive health foods [J]. Cereals & Oils, 2024, 37(7): 138-141, 158.
- [10] 李榕, 朱斌, 耿昭, 等. 高效液相色谱同时检测补肾壮阳类保健品及中成药中非法添加的 14 种化学药物[J/OL]. 现代食品科技, 1-13. [2024-09-17]. <https://doi.org/10.13982/j.mfst.1673-9078.2025.1.1554>  
LI R, ZHU B, GENG Z, et al. Simultaneous detection of 14 chemical drugs illegally added in kidney-tonifying and yang-enhancing health products and Chinese patent medicines by high performance liquid chromatography [J/OL]. Modern Food Science and Technology, 1-13. [2024-09-17]. <https://doi.org/10.13982/j.mfst.1673-9078.2025.1.1554>

- [11] 白捷, 张利, 王会荣, 等. 保健品中小分子非法添加物的质谱分析技术研究进展[J]. 中国人民公安大学学报(自然科学版), 2024, 30(2): 95–101.  
BAI J, ZHANG L, WANG HR, *et al.* Research progress on mass spectrometry analysis technology of small molecule illegal additives in health products [J]. Journal of People's Public Security University of China (Science and Technology), 2024, 30(2): 95–101.
- [12] 张丰芸, 车宇慧, 黄秀丽, 等. LC-MS/MS 液质联用法测定凉茶中非法添加的 22 种化学药物[J]. 广东化工, 2024, 51(10): 136–139.  
ZHANG FY, CHE YH, HUANG XL, *et al.* Determination of 22 chemical drugs illegally added in herbal teas by LC-MS/MS [J]. Guangdong Chemical Industry, 2024, 51(10): 136–139.
- [13] 邵瑞婷, 丁学妍. 超高效液相色谱-串联质谱法测定保健茶中 58 种非法添加物[J]. 分析测试技术与仪器, 2024, 30(2): 76–85.  
SHAO RT, DING XY. Determination of 58 illegal additives in health teas by ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Analysis and Testing Technology and Instruments, 2024, 30(2): 76–85.
- [14] 戴尽波, 沈洁, 董文静, 等. 微量 QuEChERS-超高效液相色谱-串联质谱法检测凉茶中 59 种非法添加化学药物[J]. 食品工业科技, 2024, 45(6): 242–253.  
DAI JB, SHEN J, DONG WJ, *et al.* Determination of 59 chemical drugs illegally added in herbal teas by trace QuEChERS-ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Science and Technology of Food Industry, 2024, 45(6): 242–253.
- [15] 陈燕, 严丽娟, 徐敦明, 等. 高效液相色谱-串联质谱法同时检测蒸馏酒及其配制酒中 90 种那非类物质[J]. 分析测试学报, 2023, 42(5): 519–530.  
CHEN Y, YAN LJ, XU DM, *et al.* Simultaneous detection of 90 types of non-alcoholic substances in distilled spirits and their blends using high-performance liquid chromatography tandem mass spectrometry [J]. Journal of Instrumental Analysis, 2023, 42(5): 519–530.
- [16] 孙剑聪, 沈卫东, 钱秉信, 等. 食品中非法添加物快速检测技术的应用现状[J]. 食品安全导刊, 2024(20): 163–165.  
SUN JC, SHEN WD, QIAN BX, *et al.* Application status of rapid detection technology for illegal additives in foods [J]. China Food Safety Magazine, 2024(20): 163–165.
- [17] 李孟璇, 步献功, 杜佳剑, 等. 高效液相色谱-高分辨质谱法测定保健食品中 58 种违禁降三高药物[J]. 化学分析计量, 2024, 33(5): 48–59.  
LI MX, BU XG, DU JJ, *et al.* Determination of 58 prohibited drugs in health foods by high performance liquid chromatography-high resolution mass spectrometry [J]. Chemical Analysis and Meterage, 2024, 33(5): 48–59.
- [18] 嵯欢欢, 张澜. 高分辨质谱技术在食品检测中的应用分析[J]. 食品安全导刊, 2024(16): 169–171.  
GAO HH, ZHANG L. Analysis of the application of high resolution mass spectrometry in food detection [J]. China Food Safety Magazine, 2024(16): 169–171.
- [19] 饶雅琨, 王苑桃, 孙晓, 等. 食品中一种新型非法添加物 O-丙基伐地那非的快速筛查和定量测定[J]. 食品安全质量检测学报, 2024, 15(6): 228–235.  
RAO YK, WANG YT, SUN X, *et al.* Rapid screening and quantitative determination of a new illegal additive o-propyl vardenafil in foods [J]. Journal of Food Safety & Quality, 2024, 15(6): 228–235.
- [20] 刘雅婷, 郭予昕, 刘振强, 等. 食品中一种新型伐地那非结构类似物的筛查与定量测定[J]. 分析测试学报, 2023, 42(11): 1488–1494, 1502.  
LIU YT, GUO YX, LIU ZQ, *et al.* Screening and quantitative determination of a new vardenafil structural analogue in foods [J]. Journal of Instrumental Analysis, 2023, 42(11): 1488–1494, 1502.
- [21] 王珂, 董培智, 申国华, 等. 保健食品中非法添加西地那非衍生物的确证[J]. 中国药事, 2019, 33(4): 429–434.  
WANG K, DONG PZ, SHEN GH, *et al.* Confirmation of sildenafil derivatives illegally added in dietary supplements [J]. Chinese Pharmaceutical Affairs, 2019, 33(4): 429–434.
- [22] 夏金涛, 吴婉琴, 江丰, 等. 压片糖果中一种新型伐地那非衍生物的确证和确证[J/OL]. 分析试验室, 1-10. [2024-07-12]. <https://doi.org/10.13595/j.cnki.issn1000-0720.2023.042805>  
XIA JT, WU WQ, JIANG F, *et al.* Discovery and confirmation of a new vardenafil derivative in tableted candies [J/OL]. Chinese Journal of Analysis Laboratory, 1-10. [2024-07-12]. <https://doi.org/10.13595/j.cnki.issn1000-0720.2023.042805>
- [23] 夏佳, 黄朝辉, 席时东. 保健食品中非法添加新型卡巴地那非类似物的结构鉴定[J]. 中国药师, 2022, 25(10): 1833–1836.  
XIA J, HUANG CH, XI SD. Structural identification of new carbadinafil analogues illegally added in dietary supplements [J]. China Pharmacist, 2022, 25(10): 1833–1836.
- [24] 夏金涛, 吴婉琴, 朱松松, 等. 固体饮料中一种新型卡巴地那非类似物的定性鉴别和定量分析[J]. 分析测试学报, 2022, 41(5): 754–760.  
XIA JT, WU WQ, ZHU SS, *et al.* Qualitative identification and quantitative analysis of a new carbadinafil analogue in solid beverages [J]. Journal of Instrumental Analysis, 2022, 41(5): 754–760.
- [25] 王子龙, 刘晓普, 张禄, 等. 中成药中非法添加物 N-苄基他达拉非的结构确证[J]. 中国现代应用药学, 2022, 39(1): 68–71.  
WANG ZL, LIU XP, ZHANG L, *et al.* Structural confirmation of n-benzyl tadalafil, an illegal additive in Chinese patent medicines [J]. Chinese Journal of Modern Applied Pharmacy, 2022, 39(1): 68–71.
- [26] 李少元, 接强, 栾玉静, 等. 保健食品中西地那非等 PDE-5i 检测方法研究进展[J]. 刑事技术, 2023, 48(3): 221–227.  
LI SY, JIE Q, LUAN YJ, *et al.* Research progress on detection methods of PDE-5i such as sildenafil in dietary supplements [J]. Forensic Science and Technology, 2023, 48(3): 221–227.
- [27] 张伟珂. 减肥保健品中非法添加禁用西药行为的刑法评价[J]. 中国应用法学, 2024(4): 203–206.  
ZHANG WK. Criminal law evaluation of illegal addition of prohibited westernm edicines in weight-losing health products [J]. China Review of Administration of Justice, 2024(4): 203–206.
- [28] 曹进, 黄湘鹭, 张庆生, 等. 食品和保健食品中非法添加物筛查策略的建立[J]. 食品科学, 2014, 35(19): 302–306.  
CAO J, HUANG XL, ZHANG QS, *et al.* Establishment of a screening strategy for illegal additives in foods and dietary supplements [J]. Food Science, 2014, 35(19): 302–306.
- [29] 曾令浩, 李思颖, 李文倩, 等. 压片糖果中新型非法添加那非类物质筛查及确证研究[J]. 广东化工, 2022, 49(24): 275–278.  
ZENG LH, LI SY, LI WQ, *et al.* Screening and confirmation of new illegally added nafil in tableted candies [J]. Guangdong Chemical Industry, 2022, 49(24): 275–278.
- [30] 范轶欧, 迟英欣, 杨路平, 等. 高分辨质谱技术在环境和食品风险物质非靶向筛查检测中应用的研究进展[J]. 预防医学论坛, 2023, 29(12): 955–960.  
FAN YOU, CHI YX, YANG LP, *et al.* Advances in the application of high-resolution mass spectrometry in non-targeted screening and detection of environmental and food risk substances [J]. Preventive Medicine Tribune, 2023, 29(12): 955–960.

(责任编辑: 于梦娇 安香玉)