

固相萃取-大体积程序升温进样气相色谱-三重四极杆串联质谱 测定饮用水中3种挥发性N-亚硝胺

李登昆, 张云, 刘祥萍*, 赵士权, 陈春静, 熊丽林
(南京市疾病预防控制中心, 江苏南京 210003)

摘要:建立了固相萃取大体积程序升温进样气相色谱-三重四极杆质谱联用(GC-QqQ-MS/MS)同时测定饮用水中N-亚硝基二甲胺、N-亚硝基甲基乙基胺及N-亚硝基二乙基胺的分析方法。用椰壳活性炭固相萃取小柱萃取水样中待测物组分,少量二氯甲烷洗脱、无水硫酸钠脱水,大体积程序升温进样,气相色谱-三重四极杆质谱联用仪进行多反应监测(MRM)模式检测,外标法定量。3种N-亚硝胺在1~50 ng/L范围内线性关系良好,相关系数(r^2)均大于0.999,在饮用水中进行10、20和50 ng/L水平的添加,3种待测物平均加标回收率为94.8%~109%,相对标准偏差(RSD)为4.44%~8.10% ($n=5$),定量限(LOQ)为0.08~0.7 ng/L。该法灵敏、准确、简单、可靠,适用于饮用水中3种N-亚硝胺组分的痕量检测。

关键词:气相色谱-三重四极杆串联质谱;固相萃取;大体积进样;程序升温进样;N-亚硝胺;饮用水
中图分类号:O658 文献标识码:A 文章编号:1000-8713(2019)02-0216-06

Determination of three volatile N-nitrosamine in drinking water by solid phase extraction and gas chromatography-triple quadrupole mass spectrometry with programmable temperature vaporizer-based large volume injection

LI Dengkun, ZHANG Yun, LIU Xiangping*, ZHAO Shiquan, CHEN Chunjing, XIONG Lilin
(Nanjing Central for Disease Control and Prevention, Nanjing 210003, China)

Abstract: A method had been developed for the determination of three N-nitrosamines, namely, N-nitrosodimethylamine (NDMA), N-nitrosomethylethylamine (NMEA), and N-nitrosodiethylamine (NDEA) in drinking water by solid phase extraction (SPE) and gas chromatography-triple quadrupole mass spectrometry (GC-QqQ-MS/MS) with programmable temperature vaporizer (PTV)-based large volume injection (LVI). The N-nitrosamine compounds were extracted from the water sample using a solid phase extraction (SPE) cartridge filled with coconut charcoal, and then eluted with 10 mL methylene chloride. The eluate was dried by anhydrous sodium sulfate and 10 μ L was injected into the GC-MS/MS by PTV-LVI. The target compounds were detected by the multi-reaction monitoring (MRM) mode, and quantified with the external standard method. The results showed that the three compounds had good linearities in the range of 1–50 ng/L with correlation coefficients (r^2) higher than 0.999. Drinking water samples were spiked with the target compounds at three concentration levels (10, 20, and 50 ng/L), and satisfactory recoveries (between 94.8% and 109%) and good reproductivities (relative standard deviation RSD < 10%) were achieved. The limits of quantitation (LOQs) of the three N-nitrosamines were found to be in the range of 0.08–0.7 ng/L. The developed method

收稿日期:2018-10-26

* 通讯联系人.Tel:(025)83538353, E-mail:lxping89@126.com.

基金项目:南京市卫生科技发展专项资金(ZKX17048).

Foundation item: Nanjing Medical Science and Technique Development Foundation (No. ZKX17048).

was sensitive, accurate, convenient, and reliable for the determination of the three trace level *N*-nitrosamines in drinking water.

Key words: gas chromatography-triple quadrupole mass spectrometry (GC-QqQ-MS/MS); solid phase extraction (SPE); large volume injection (LVI); programmable temperature vaporization inlet (PTV); *N*-nitrosamines; drinking water

N-亚硝胺来源于橡胶、皮革等化工制造业,同时也是饮用水消毒副产物(disinfection by-product, DBP),对哺乳动物具有强烈的遗传毒性及致癌性^[1-4]。国际癌症研究机构(international agency for research on cancer, IARC)将*N*-亚硝基二甲基胺(*N*-nitrosodimethylamine, NDMA)、*N*-亚硝基甲基乙基胺(*N*-nitrosomethylethylamine, NMEA)列为2A类致癌物,将*N*-亚硝基二乙基胺(*N*-nitrosodiethylamine, NDEA)列为2B类致癌物^[5]。世界卫生组织建议饮用水中NDMA限量为100 ng/L^[6],美国环境保护署(USEPA)规定饮水中NDMA、NMEA、NDEA最大容许浓度分为7、20及2 ng/L^[7]。

自1989年加拿大安大略省^[8]确认饮用水中消毒副产物NDMA以来,各国日益重视饮用水中*N*-亚硝胺问题,而建立灵敏、准确、高效、简便的检测方法也成为研究者关注的重点。目前国内外针对挥发性*N*-亚硝胺的检测主要采用气相色谱(GC)法,常用检测器有氢火焰离子化检测器(FID)、氮磷检测器(NPD)、热能分析(TEA)仪及单四极杆质谱(Q-MS)。FID^[9,10]是通用型检测器,定性能力差、方法灵敏度低,NPD^[9,11]对*N*-亚硝胺的检测也存在响应低的缺点,随着新技术的发展FID、NPD逐渐被取代;TEA^[9,12]对*N*-亚硝胺具有高度特异性,但应用范围窄且价格较为昂贵;Q-MS^[9,12,13]是早期检测*N*-亚硝胺的主要方式,性能稳定、应用广泛,但对EI

源产生无差别的离子碎片甄别困难、假阳性干扰难以排除。近年来随着三重四极杆质谱联用仪(QqQ-MS/MS)的发展,气相色谱与三重四极杆质谱仪联用已逐渐成为*N*-亚硝胺分析的常规技术手段,其采用多反应监测(MRM)模式扫描,具有选择性好、定性特异性强、定量准确度高的优点^[9,14-18]。

由于饮用水中*N*-亚硝胺的含量极低,多在ng/L的水平^[4,19],如何提取、浓缩是困扰研究者的另一难题,目前国内外基本都采用固相萃取再氮吹的方式对饮用水中亚硝胺进行富集、浓缩^[9,14,20,21,24],但NDMA、NMEA及NDEA的沸点低、蒸汽压大、挥发性强,氮吹浓缩极易损失,即便采取添加同位素内标的方式,回收率依然难以达到满意效果^[14,20,21]。大体积程序升温进样(LVI-PTV)技术使用容纳大体积样品的装置及可控时间的溶剂放空装置,选择性去除样品中的大量溶剂,可以实现痕量目标化合物的在线浓缩,避免挥发性物质的损失,简化操作步骤,缩短样品预处理时间,同时提高分析方法的灵敏度、精密性及准确度^[22,23]。固相萃取-程序升温进样技术结合气相色谱-三重四极杆质谱联用仪,将是分析饮用水中易挥发痕量组分的理想手段。3种挥发性*N*-亚硝胺的理化性质见表1。

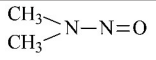
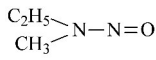
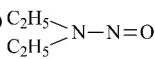
1 实验部分

1.1 仪器与设备

气相色谱-三重四极杆质谱联用仪(Agilent

表1 3种挥发性*N*-亚硝胺的理化性质

Table 1 Physical and chemical properties of the three volatile *N*-nitrosamines

Compound	CAS No.	IARC classification	Chemical formula	Structure	Relative molecular mass	Water solubility at 25 °C	Relative density at 20 °C/4 °C	Boiling point/°C	Vapor pressure at 20 °C/mmHg	log <i>K</i> _{ow}	log <i>K</i> _{oc}
NDMA	62-75-9	2A	C ₂ H ₆ N ₂ O		74.08	miscible	1.006	153.0	2.70	-0.57	1.07
NMEA	10595-95-6	2B	C ₃ H ₈ N ₂ O		88.11	miscible	0.9448	154.4	2.09	0.04	0.602-1.86
NDEA	55-18-5	2A	C ₄ H ₁₀ N ₂ O		102.14	miscible	0.9422	173.9	0.86	0.48	1.63

NDMA: *N*-nitrosodimethylamine; NMEA: *N*-nitrosomethylethylamine; NDEA: *N*-nitrosodiethylamine; IARC: International Agency for Research on Cancer; 1 mmHg=0.133 kPa; log *K*_{ow}: octanol-water partition coefficient; log *K*_{oc}: organic carbon partition coefficient.

7890B/7000C, 美国 Agilent 公司), 配备 Agilent PAL 自动进样系统及 Agilent 多模式进样口 (MMI); 全自动固相萃取仪 (Thermo Fisher AT280, 美国 Thermo Fisher 公司); Milli-Q 水纯化系统 (Milli-Q Reference, 美国 Millipore 公司); 电子分析天平 (ML203/02, 瑞士 METTLER TOLEDO 公司)。

1.2 试剂与材料

N-亚硝胺混合标准品包括 NDMA (CAS: 62-75-9)、NMEA (CAS: 10595-95-6) 和 NDEA (CAS: 55-18-5), 纯度均大于 99.5%, 质量浓度均为 100 mg/L, 购自美国 o2si 公司; 甲醇 (色谱纯) 购自德国 Merck 公司; 二氯甲烷 (色谱纯) 和椰壳活性炭 SPE 小柱 (2 g/6 mL, 80~120 目) 购自德国 CNW 公司; 无水硫酸钠 (分析纯, 使用前于马弗炉中 450 °C 灼烧 4 h, 冷却后密封保存备用) 和硫代硫酸钠 (分析纯) 购于国药集团化学试剂有限公司; 纯水由 Milli-Q 净化系统制得。

1.3 仪器条件

1.3.1 色谱条件

大体积程序升温进样口, 进样方式: 溶剂排空进样; 进样体积: 10 μ L; 隔垫吹扫流量: 3 mL/min; 升温程序: 50 °C 保持 0.08 min, 以 600 °C/min 升至 325 °C, 保持 5 min; 溶剂放空模式: 到分流出口的吹扫流量: 60 mL/min; 吹扫时间: 2.58 min; 放空流量: 100 mL/min; 放空时间: 0.08 min; 载气节省模式下氦气流速: 20 mL/min, 等待时间: 5 min。

色谱柱: VF-WAXms 柱 (30 m \times 0.25 mm \times 0.25 μ m, 美国 Agilent 公司); 载气: He (纯度 > 99.999%); 流量: 1.2 mL/min。

柱温升温程序: 初始温度为 50 °C, 保持 1 min, 以 10 °C/min 的速度升温至 110 °C, 再以 15 °C/min 的速度升温至 200 °C, 最后以 40 °C/min 的速度升温至 250 °C, 保持 7 min。

1.3.2 质谱条件

离子源: EI 源; 传输线温度: 250 °C; 离子源温度: 280 °C; 电离能量: 70 eV; 前四极杆温度: 180 °C; 后四极杆温度: 180 °C; 碰撞池: 碰撞气为 N₂ (纯度 > 99.999%), 流速为 1.5 mL/min; 淬灭气为 He (纯度 > 99.999%), 流速为 2.25 mL/min; 扫描方式: MRM 模式; 溶剂延迟: 5 min。3 种挥发性 *N*-亚硝胺质谱参数见表 2。

表 2 3 种挥发性 *N*-亚硝胺的前级离子、子离子、碰撞能量 (CE)、驻留时间及丰度

Table 2 Precursor ions, product ions, collision energy (CE), dwell time, and abundance of the three volatile *N*-nitrosamines

Compound	Precursor ion (<i>m/z</i>)	Product ion (<i>m/z</i>)	CE/eV	Dwell time/ms	Abundance/%
NDMA	74.0	44.1 *	5	30	100
	74.0	42.1	18	30	53
NMEA	88.0	71.1 *	3	30	100
	88.0	42.1	2	30	10
NDEA	102.0	85.0 *	2	30	100
	102.0	44.1	10	30	64
	102.0	56.0	18	30	38

* Quantitative ion.

1.4 标准溶液的配制

将 100 mg/L 标准溶液从 -20 °C 冰箱取出, 置室内恒温后, 用甲醇稀释, 配制成 2.0 mg/L 的标准使用液, 置于棕色玻璃瓶内, 再用二氯甲烷逐步稀释, 配制成质量浓度为 100、200、500、1 000、2 000 和 5 000 ng/L 的系列标准溶液。

1.5 样品处理

椰壳活性炭 SPE 小柱依次用 6 mL 二氯甲烷冲洗并用氮气吹干, 用 6 mL 甲醇冲洗并用氮气吹干, 用 6 mL 甲醇及 15 mL 纯水活化平衡, 活化平衡过程连续进行并保证 SPE 小柱液面不干。将 1.0 L 水样以 10 mL/min 的速度通过 SPE 小柱, 萃取完成后氮吹 10 min, 吹干 SPE 小柱。用 10 mL 二氯甲烷分 2 次 (每次 5 mL) 浸泡洗脱至收集管, 洗脱液加入 5~8 g 无水硫酸钠脱水, 取 1.0 mL 萃取液上机测定。

2 结果与讨论

2.1 色谱柱的选择

对比了 DB-5MS Ultra Inert 柱 (30 m \times 0.25 mm \times 0.25 μ m, 美国 Agilent 公司) 与 VF-WAXms (30 m \times 0.25 mm \times 0.25 μ m) 两种色谱柱的分离能力, 结果显示, 3 种挥发性 *N*-亚硝胺在两种色谱柱上于 11 min 内都能获得良好的分离, 但使用 VF-WAXms 色谱柱可获得更好的峰形和灵敏度, 故本法选择 VF-WAXms 色谱柱作为分析柱。两种色谱柱分离效果见图 1。

2.2 质谱条件的优化

N-亚硝胺组分经质谱仪离子化后, 通过母离子、子离子扫描方式, 筛选出较理想的多反应监测

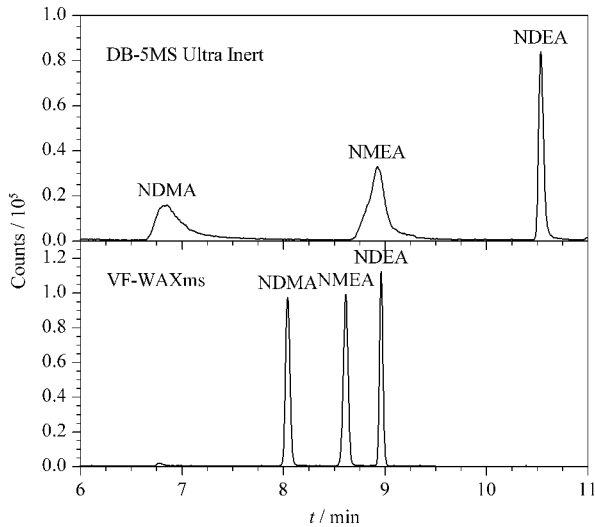


图 1 使用 DB-5MS Ultra Inert 柱和 VF-WAXms 柱时 3 种挥发性 *N*-亚硝胺 ($10 \mu\text{g/L}$) 在 MRM 模式下的总离子流图

Fig. 1 Total ion chromatograms (TIC) of the three volatile *N*-nitrosamines ($10 \mu\text{g/L}$) obtained using the DB-5MS Ultra Inert column and VF-WAXms column in MRM mode

DB-5MS Ultra Inert column; initial $35 \text{ }^\circ\text{C}$, hold for 5 min; increase to $250 \text{ }^\circ\text{C}$ at a rate of $20 \text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$, hold for 5 min; VF-WAXms column; initial $50 \text{ }^\circ\text{C}$, hold for 1 min; increase to $110 \text{ }^\circ\text{C}$ at a rate of $15 \text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$; rise to $250 \text{ }^\circ\text{C}$ at a rate of $40 \text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$, hold for 7 min.

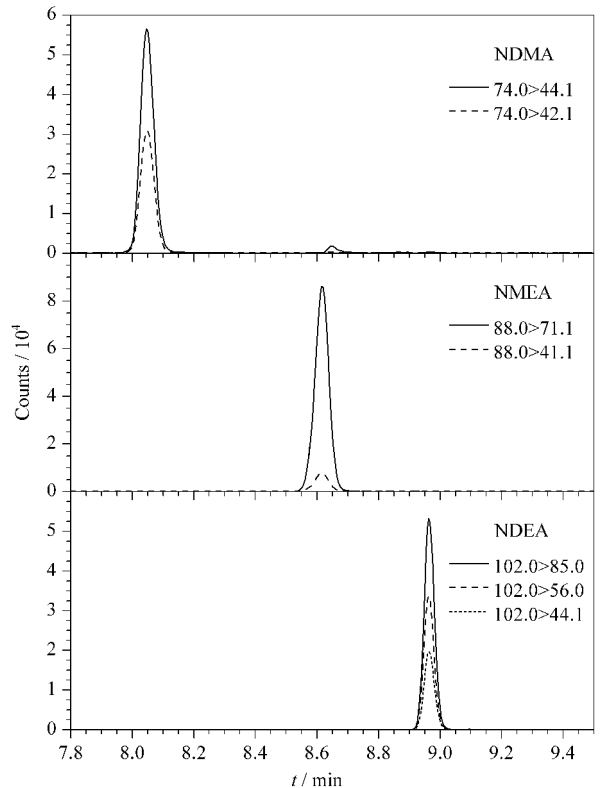


图 2 3 种挥发性 *N*-亚硝胺混合标准品 ($10 \mu\text{g/L}$) 的 MRM 色谱图

Fig. 2 MRM chromatograms of the three volatile *N*-nitrosamines mixed standard ($10 \mu\text{g/L}$)

(MRM) 离子对,再结合 Agilent MassHunter 设计实验助手与分析实验助手软件,优化选择出最佳离子对、碰撞能量及驻留时间等,3 种挥发性 *N*-亚硝胺最佳 MRM 质谱参数见表 2, MRM 色谱图见图 2。

2.3 大体程序升温进样的优化

大体程序升温气化进样,通过增加进样量来提高方法灵敏度,但增大进样量的同时也会引入更多的“脏”物质进入色谱系统,造成色谱柱及离子源的污染,故在满足方法灵敏度的条件下,应尽量减少进样体积。本文通过多次试验优化进样量,当进样体积为 $10 \mu\text{L}$ 时,可满足 USEPA Method 521^[14] 最低检出浓度要求,然后考查初始温度、排空时间、升温速率等各变量因素,大体程序升温进样最佳条件见 1.3.1 节。

2.4 固相萃取柱的选择

饮用水中痕量 *N*-亚硝胺的萃取、富集,目前最常用的吸附材料为椰壳活性炭^[14,20,24],本文采用 80~120 目椰壳活性炭 SPE 小柱进行饮用水添加回收试验,取得较好试验预期,结果见表 3。有文献^[16]报道采用 Oasis HLB 固相萃取小柱萃取化妆品中 10 种挥发性亚硝胺取得满意效果,但本文采用该固相萃取小柱对饮用水进行加标回收试验,3 种挥发性 *N*-亚硝胺均未能有效萃取,这与朱翔^[24]等人的实验结果基本一致。同时,还对 C18 固相萃取小柱进行了考查,同样无法有效萃取 3 种 *N*-亚硝胺。

2.5 洗脱溶剂的选择及洗脱体积的优化

目前国内外主要研究方法中都选用二氯甲烷作

表 3 3 种挥发性 *N*-亚硝胺的保留时间、线性范围、线性方程、相关系数 (r^2)、检出限和定量限

Table 3 Retention times (RT), linear ranges, linear equations, correlation coefficients (r^2), LODs, and LOQs for the three volatile *N*-nitrosamines

Compound	RT/min	Linear range/(ng/L)	Linear equation	r^2	LOD/(ng/L)	LOQ/(ng/L)
NDMA	8.045	1-50	$Y=22.992X+30.513$	0.9992	0.2	0.7
NMEA	8.628	1-50	$Y=18.486X+7.020$	0.9991	0.06	0.2
NDEA	8.972	1-50	$Y=15.437X+9.773$	0.9999	0.03	0.08

Y: peak area; X: mass concentration, ng/L.

为 *N*-亚硝胺的萃取、洗脱溶剂^[14,15,20,21,24,25],且相关研究表明二氯甲烷是最理想的洗脱溶剂^[25],故本文选择二氯甲烷作为洗脱溶剂,并考查了二氯甲烷洗脱体积对洗脱效率的影响。在饮用水加标浓度为 50 ng/L 时,分别用 5、10 和 15 mL 的二氯甲烷进行洗脱,3 种挥发性 *N*-亚硝胺平均洗脱效率分别为 73.2%~85.8%、103%~109% 和 92.6%~99.6%,结果显示,洗脱量为 5 mL 时,洗脱不够充分,洗脱量为 10 和 15 mL 时,均可充分洗脱,为避免浪费试剂、污染环境,选用 10 mL 作为洗脱体积。

2.6 线性范围与检出限

配制线性范围为 1~50 ng/L 的系列标准溶液,按 1.3 节仪器条件测定,以定量离子峰面积(*Y*)对浓度(*X*, ng/L)绘制线性回归方程,以 3 倍信噪比(*S/N*)为检出限,以 10 倍 *S/N* 为定量限。本法饮用水取样量为 1.0 L,3 种挥发性 *N*-亚硝胺组分的保留时间、线性范围、线性方程、相关系数、检出限(LOD)及定量限(LOQ)见表 3。

2.7 准确度及精密度

以实验室自来水作为饮用水样,加入 1.4 节的标准使用液,充分搅拌混匀,配制成 10.0、20.0、50.0 ng/L 的加标样品,每个水平各 5 份,按照 1.5 节样品萃取程序进行预处理,按 1.3 节仪器条件测定,同时取纯水做空白对照。以加标回收率指标考察方法的准确度及精密度,结果见表 4。加标回收率为 94.8%~109%、相对标准偏差小于 10%,说明该方法准确度和精密度较好。

表 4 3 种挥发性 *N*-亚硝胺在饮用水中 3 个添加水平下的加标回收率及精密度 ($n=5$)

Table 4 Spiked recoveries and precisions of the three volatile *N*-nitrosamines in drinking water at three spiked levels ($n=5$)

Compound	Background/ (ng/L)	Spiked/ (ng/L)	Found/ (ng/L)	Recovery/ %	RSD/ %
NDMA	1.4	10.0	10.9	94.8	6.92
	1.4	20.0	21.3	99.5	7.90
	1.4	50.0	53.1	103	5.98
NMEA	-	10.0	10.5	105	7.18
	-	20.0	21.7	109	7.15
	-	50.0	52.9	106	5.56
NDEA	-	10.0	9.70	97.0	4.45
	-	20.0	20.4	102	8.10
	-	50.0	51.8	104	4.44

-: less than LOQ.

2.8 饮用水样的采集及测定

参照 GB/T 5750.2-2006^[26] 的相关采样规定,

选用 1 L 具聚四氟乙烯材质盖垫棕色螺纹口玻璃瓶采集样品,在采样之前加入 0.1 g 硫代硫酸钠固体作为脱氯剂,水样充满玻璃瓶后加盖密封,避光、冷藏运输,送达实验室后应及时完成萃取检测。采集本市 7 家自来水厂的水源水、出厂水、末梢水及市售瓶装饮用天然水、饮用净水共 27 份,进行饮用水中 3 种挥发性 *N*-亚硝胺含量的测定。样品测定结果见表 5。

表 5 饮用水中 3 种挥发性 *N*-亚硝胺含量测定结果
Table 5 Contents of the three volatile *N*-nitrosamines in drinking water

Sample	Analyte	<i>C</i> /(ng/L)		
		NDMA	NMEA	NDEA
Waterworks-1	source water	1.1	-	0.12
	finished water	1.0	-	0.09
	peripheral water	-	-	0.21
Waterworks-2	source water	2.0	-	0.11
	finished water	-	-	0.08
	peripheral water	-	-	0.12
Waterworks-3	source water	1.1	-	-
	finished water	1.1	-	-
	peripheral water	1.4	-	0.17
Waterworks-4	source water	1.3	-	0.41
	finished water	-	-	-
	peripheral water	1.8	-	0.08
Waterworks-5	source water	-	-	-
	finished water	-	-	-
	peripheral water	-	-	-
Waterworks-6	source water	0.8	-	-
	finished water	-	-	0.15
	peripheral water	-	-	0.21
Waterworks-7	source water	1.5	0.7	-
	finished water	-	-	-
	peripheral water	-	-	-
Sample	WHH	-	-	-
	NFSQ	-	-	-
	YB	-	-	-
	CSL	-	-	-
	CY	-	-	-
	GS	-	-	-

-: less than LOQ. WHH, NFSQ, YB, CSL, CY, and GS stand for acronyms of the brand of bottled drinking water.

3 结论

本文建立了 SPE-PTV-GC-EI-MS/MS 测定饮用水中 3 种挥发性亚硝胺的方法,采用保留时间和 MRM 双重定性、外标法定量,本法选择性好、灵敏度高、样品前处理简单,线性关系、加标回收率及重现性等方法学指标均较好,是饮用水中挥发痕量 *N*-亚硝胺组分理想的检测技术手段。

参考文献:

- [1] United States Environmental Protection Agency. Uses and Environmental Sources of Contaminants for the Final (2007) UCMR Monitoring List. [2018-07-30]. https://www.epa.gov/sites/production/files/2015-12/documents/list_ccr_ucmr_monitoring_for_use_2007-2010.pdf
- [2] Zhao Z, Xu Y B, Liu X H, et al. Chinese Journal of Chromatography, 2017, 35(10): 1086
赵庄, 许杨彪, 刘向红, 等. 色谱, 2017, 35(10): 1086
- [3] Chen W W, Zhang Y, Li X S, et al. Chinese Journal of Environmental Chemistry, 2016, 35(10): 2117
陈文文, 张原, 李小水, 等. 环境化学, 2016, 35(10): 2117
- [4] Dong L, Wang H Y, Cai H Q, et al. Journal of Environment and Health, 2016, 33(3): 232
董蕾, 王海燕, 蔡宏铨, 等. 环境与健康杂志, 2016, 33(3): 232
- [5] International Agency for Research on Cancer. List of Classifications, Volumes 1 – 122. [2018-07-30]. <https://monographs.iarc.fr/list-of-classifications-volumes/>
- [6] World Health Organization. Guidelines for Drinking-Water Quality. 4th ed. Shanghai: Shanghai Jiao Tong University Press, 2014
世界卫生组织. 饮用水水质准则. 4 版. 上海: 上海交通大学出版社, 2014
- [7] Luo Q, Wang D H, Wang B Y, et al. Scientia Sinica Chimica, 2011, 41(1): 82
罗茜, 王东红, 王炳一, 等. 中国科学: 化学, 2011, 41(1): 82
- [8] Taguchi V, Jenkins S D W, Wang D T, et al. Can J Appl Spectrosc, 1994, 39(3): 87
- [9] Zhao B, Deng M L, Yang X S, et al. Chinese Journal of Chromatography, 2016, 34(10): 998
赵博, 邓美林, 杨小珊, 等. 色谱, 2016, 34(10): 998
- [10] Yan Z Y, Niu Q Q, Mou M Y, et al. China Measurement & Test, 2017, 43(1): 37
严拯宇, 牛倩倩, 牟明瑶, 等. 中国测试, 2017, 43(1): 37
- [11] Yang H, Fang C F, Zhang T, et al. Chinese Journal of Food Research and Development, 2016, 37(3): 150
杨华, 方长发, 张甜, 等. 食品研究与开发, 2016, 37(3): 150
- [12] GB 5009.26-2016
- [13] Jia L N, Cai Q, Zhou J, et al. Chinese Journal of Fujian Analysis & Testing, 2018, 27(2): 7
贾磊娜, 蔡倩, 周健, 等. 福建分析测试, 2018, 27(2): 7
- [14] United States Environmental Protection Agency. Method 521. [2015-09-08]. https://cfpub.epa.gov/si/si_public_record_report.cfm?dirEntryId=103912&simpleSearch=1&searchAll=521
- [15] Wang Y E, Wang J H, Li X, et al. Chinese Journal of Chemical Analysis and Meterage, 2015, 24(4): 16
王亚恩, 王建华, 李馨, 等. 化学分析计量, 2015, 24(4): 16
- [16] Ma Q, Xi H W, Wang C, et al. Chinese Journal of Analytical Chemistry, 2011, 39(8): 1201
马强, 席海为, 王超, 等. 分析化学, 2011, 39(8): 1201
- [17] Deng F T, Li G, Liu L P, et al. Chinese Journal of Modern Scientific Instruments, 2013(3): 7
邓丰涛, 李纲, 刘立鹏, 等. 现代科学仪器, 2013(3): 7
- [18] Yu W J, Wang P, Qiu Y S, et al. Chinese Journal of Instrumental Analysis, 2016, 35(6): 719
余卫军, 王佩, 邱月生, 等. 分析测试学报, 2016, 35(6): 719
- [19] Li T, Xian Q M, Sun C, et al. Chinese Journal of Environmental Chemistry, 2012, 31(11): 1767
李婷, 鲜启鸣, 孙成, 等. 环境化学, 2012, 31(11): 1767
- [20] Ripollés C, Pitarch E, Sancho J V, et al. Anal Chim Acta, 2011, 702: 62
- [21] Lu Y, Huang W, Fu N, et al. Chinese Journal of Gansu Science and Technology, 2014, 12(30): 71
陆荫, 黄维, 付宁, 等. 甘肃科技, 2014, 12(30): 71
- [22] Zhang L, Li J G, Zhao Y F. Chinese Journal of Food Safety and Quality, 2014, 5(2): 468
张磊, 李敬光, 赵云峰. 食品安全质量检测学报, 2014, 5(2): 468
- [23] Tang F M, Ni Y W, Zhang H J, et al. Chinese Journal of Chromatography, 2010, 28(5): 442
汤凤梅, 倪余文, 张海军, 等. 色谱, 2010, 28(5): 442
- [24] Zhu X, Li W, Liu Y C, et al. Chinese Journal of Instrumental Analysis, 2014, 33(8): 866
朱翔, 李伟, 刘玉灿, 等. 分析测试学报, 2014, 33(8): 866
- [25] Zhao Y Y, Boyd J, Hruddy S E, et al. Environ Sci Technol, 2006, 40(24): 7636
- [26] GB/T 5750.2-2006