

## 稳定同位素稀释离子色谱-三重四极杆质谱法 测定血浆和尿液中的氟乙酸

张晓艺, 张秀尧\*, 蔡欣欣, 李瑞芬

(温州市疾病预防控制中心, 浙江 温州 325001)

**摘要:**建立了离子色谱-三重四极杆质谱测定血浆和尿液样品中氟乙酸(MFA)的方法。血浆样品经高氯酸超声提取,尿液样品经高氯酸酸化,血浆和尿液提取液在 pH 0.5~1.0 条件下用叔丁基甲醚(MTBE)萃取,萃取液经氮吹浓缩后溶于 0.1% (v/v) 氨水溶液。以 Ionpac AS 19 型阴离子色谱柱为分析柱,在线自动产生的氢氧化钾作为淋洗液进行梯度分离,柱流出液经阴离子抑制器抑制后进入质谱系统。采用电喷雾电离源,在负离子、多离子监测(MRM)模式下检测, $^{13}\text{C}_2$ -氟乙酸稳定同位素内标法定量。血浆和尿液样品中氟乙酸的加标回收率为 96.2%~120%,相对标准偏差为 1.1%~13.1% ( $n=6$ ),方法的检出限( $S/N=3$ )分别为 0.03  $\mu\text{g/L}$  和 0.1  $\mu\text{g/L}$ 。该法简单、灵敏、准确,可用于生物样品中氟乙酸的检测。

**关键词:**离子色谱;三重四极杆质谱;氟乙酸;血浆;尿液;生物样品

中图分类号:O658

文献标识码:A

文章编号:1000-8713(2018)10-0979-06

## Determination of monofluoroacetic acid in plasma and urine by stable isotope dilution ion chromatography-triple quadrupole mass spectrometry

ZHANG Xiaoyi, ZHANG Xiuyao\*, CAI Xinxin, LI Ruifen

(Wenzhou Municipal Center for Disease Control and Prevention, Wenzhou 325001, China)

**Abstract:** A method was developed for the determination of monofluoroacetic acid (MFA) in plasma and urine by ion chromatography-triple quadrupole mass spectrometry (IC-MS/MS). A plasma sample was extracted with 3% (v/v) perchloric acid aqueous solution, and the extract was centrifuged to remove the protein and lipids. A urine sample was acidulated with 3% (v/v) perchloric acid aqueous solution. The target analyte was extracted with methyl *tert*-butyl ether (MTBE) at a pH between 0.5 and 1.0. After the MTBE was removed by blowing with nitrogen, the MFA in the residues was dissolved into 0.1% (v/v) ammonia solution. The separation of MFA was carried out on a Dionex Ionpac AS 19 analytical column (250 mm×2 mm, 7.5  $\mu\text{m}$ ) with gradient elution using KOH solution electrolytically generated from an on-line eluent generation cartridge. Before the eluent flow entered the mass spectrometer, an in-line suppressor was used to remove potassium ions. The MFA was detected with a negative electrospray ionization source in the multiple reaction monitoring (MRM) mode, and quantified with the stable isotope internal standard method. The correlation coefficient of the linear calibration curve of MFA was greater than 0.999 at the corresponding ranges of 0.1–1 000  $\mu\text{g/L}$ . The average recoveries were 96.2%–120% of MFA in plasma and urine samples with relative standard deviations of 1.1%–13.1% ( $n=6$ ). The limits of detection of MFA in plasma and urine samples were 0.03  $\mu\text{g/L}$  and 0.1  $\mu\text{g/L}$ , respectively. The method is simple, sensitive and accurate, and can be

applied for the determination of MFA in plasma and urine samples.

**Key words:** ion chromatography (IC); triple quadrupole mass spectrometry (MS/MS); monofluoroacetic acid; plasma; urine; biological samples

氟乙酸钠和氟乙酰胺均为有机氟类杀鼠剂,大鼠口服的半数致死剂量为 0.22 mg/kg,人口服半数致死量为 0.1~10 mg/kg,属 A 级有机剧毒物质。氟乙酸钠和氟乙酰胺进入机体内均会被代谢生成氟乙酸(MFA),其化学结构见图 1。氟乙酸可使三羧酸循环中断,引起生理和生化功能障碍,甚至可以造成神经系统损害而引起死亡。氟乙酸钠和氟乙酰胺的毒性强,起效快,致死率高,容易引起二次中毒,我国于 1982 年就明令禁止其生产、销售和使用。但新西兰、美国和以色列等国仍允许使用<sup>[1,2]</sup>。据报道<sup>[3,4]</sup>某些天然植物也含有氟乙酸类物质,曾引起家畜中毒事件。

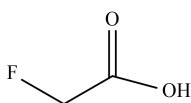


图 1 氟乙酸的化学结构

Fig. 1 Chemical structure of monofluoroacetic acid

氟乙酸为水溶性极性化合物,直接分析测定难度大,往往需要进行衍生化反应改变其化学性质,常用的分析方法有气相色谱法<sup>[5,6]</sup>、气相色谱-质谱法<sup>[7-9]</sup>、液相色谱荧光法<sup>[10-12]</sup>、液相色谱-质谱法<sup>[13]</sup>,但均操作繁琐。有报道<sup>[14,15]</sup>采用离子色谱法直接测定血液中氟乙酸,但灵敏度较低,易受基体成分干扰而出现假阳性结果;陈学国等<sup>[16]</sup>采用反相色谱-质谱法直接测定血中氟乙酸,但氟乙酸在色谱柱的死时间附近出峰,基质干扰严重,方法灵敏度低;Xu 等<sup>[17]</sup>利用亲水相互作用色谱(HILIC)-质谱法直接测定尿液中的氟乙酸,但方法易受样品基质影响,保留时间不稳定<sup>[18]</sup>,灵敏度不高;Hamelina 等<sup>[19]</sup>使用反相和阴离子交换混合机理的色谱柱(Primesep B2)进行分离,三重四极杆质谱法直接测定尿液中的氟乙酸。

近年来,离子色谱-三重四极杆质谱法(IC-MS/MS)在食品和环境中的应用越来越广泛<sup>[20-26]</sup>,但在生物样品中的应用较少<sup>[27,28]</sup>,Cai 等<sup>[27]</sup>报道了 IC-MS/MS 测定血清中有毒杀鼠剂异杀鼠酮的检测方法,以 Ionpac AS11 色谱柱为分离柱,以甲醇-30 mmol/L KOH (10:90, v/v)为流动相进行分离,采

用电喷雾电离源,在负离子和 MRM 模式下检测,方法的定量限为 0.5 ng/mL。Baygildiev 等<sup>[28]</sup>建立了检测大鼠尿液中有机磷神经毒剂代谢产物甲基磷酸的 IC-MS/MS 方法,以实验室合成的阴离子交换树脂自填的色谱柱为分析柱,200 mmol/L 甲酸水溶液作为淋洗液,三重四极杆质谱检测,检出限为 4 ng/mL。但采用离子色谱-三重四极杆质谱联用技术测定血浆和尿液中氟乙酸的检测方法鲜有文献报道。本文采用高氯酸超声提取,叔丁基甲醚萃取净化,离子色谱分离,三重四极杆质谱法直接测定,稳定同位素内标法定量。该方法灵敏、准确、精密、快速。

## 1 实验部分

### 1.1 仪器与试剂

离子色谱系统由 Dionex ICS-1100 离子色谱仪, RFC-30 淋洗液自动发生器, ASRS 500 电解再生抑制器和 DV-AS 自动进样器组成,变色龙工作站(7.22 版)控制(美国 Thermo Scientific 公司); QTRAP 6500 三重四极杆/复合线性离子阱质谱仪,由 Analyst 1.6.2 软件控制(美国 AB Sciex 公司); Orion 5-star 酸度计(美国 Orion 公司); 2510 超声波清洗机(美国 Branson 公司); Multi Reax 数显型多管旋涡混合器(德国 Heidolph 公司); 3-30K 高速冷冻离心机(德国 Sigma 公司); 24 孔 N-EVAP 氮吹仪(美国 Organomation 公司); Gradient A10 Milli-Q 超纯水器(法国 Millipore 公司)。

叔丁基甲醚(MTBE)为色谱纯(德国 Merck 公司);高氯酸为分析纯(上海桃浦化工厂);亲水聚四氟乙烯(hydrophilic PTFE)滤膜针式过滤器(直径:13 mm,孔径:0.22 μm,上海安谱实验科技股份有限公司);氟乙酸钠标准物质(纯度 97%,德国 Dr. Ehrenstorfer 公司);<sup>13</sup>C<sub>2</sub>-氟乙酸钠同位素标准物质(新西兰 BDG Synthesis 公司)。分别用水溶解并稀释氟乙酸钠标准物质,配制 1.00 g/L 的氟乙酸标准储备液和 100 mg/L 的<sup>13</sup>C<sub>2</sub>-氟乙酸标准储备液;临用时再用水稀释成适合浓度的标准使用液。血浆样品购自温州市中心血站,尿液样品由身体健康的志愿者提供。

## 1.2 样品前处理

吸取血浆试样 1.00 mL,置于 5 mL Eppendroff 管中,加入 100  $\mu$ L 1.0 mg/L  $^{13}\text{C}_2$ -氟乙酸同位素内标使用液,加入 2.0 mL 3% (v/v) 高氯酸水溶液,旋涡 10 s,超声提取 5 min,于 6  $^{\circ}\text{C}$  以 10 000 r/min 离心 5 min,取上清液(pH 0.5~1.0)置于 15 mL 具塞离心管中。

吸取尿液试样 1.00 mL,置于 15 mL 具塞离心管中,加入 100  $\mu$ L 1.0 mg/L 的同位素内标使用液,加入 2.0 mL 3% (v/v) 高氯酸水溶液,旋涡混合 10 s。

向血浆提取液或尿液提取液中加入 4.0 mL 叔丁基甲醚,置于多管旋涡混合器中,以最大速度旋涡 3 min,以 10 000 r/min 离心 3 min,移取上清液,下层水相用 4.0 mL 叔丁基甲醚重复萃取 1 次,合并 2 次萃取液,加入 100  $\mu$ L 1% (v/v) 氨水丙酮溶液,混匀,于 45  $^{\circ}\text{C}$  氮气吹至近干,加入 1.0 mL 0.1% (v/v) 氨水溶液,旋涡溶解,过 0.22  $\mu\text{m}$  滤膜,待测。

## 1.3 分析条件

### 1.3.1 色谱条件

分析柱为 Ionpac AS 19 型色谱柱(250 mm $\times$ 2 mm, 7.5  $\mu\text{m}$ );保护柱为 AG19(50 mm $\times$ 2 mm);ASRS 500 阴离子抑制器(2 mm,外接水模式);氢氧化钾淋洗液由 RFC-30 在线自动产生;梯度淋洗:0~7.0 min, 5 mmol/L KOH; 7.0~8.0 min, 5 mmol/L KOH~70 mmol/L KOH; 8.0~14.0 min, 70 mmol/L KOH; 14.0~14.1 min, 70 mmol/L KOH~5 mmol/L KOH; 14.1~20.0 min, 5 mmol/L KOH;淋洗液流速为 0.30 mL/min;柱温为 30  $^{\circ}\text{C}$ ;进样体积为 10  $\mu\text{L}$ 。

### 1.3.2 质谱条件

离子源为电喷雾电离源,负离子模式;扫描模式为多反应监测(MRM)模式;离子源温度(TEM)为 650  $^{\circ}\text{C}$ ;离子化电压(IS)为-4 500 V;气帘气(CUR)压力为 277 kPa;喷雾气(GS1)压力为 345 kPa;辅助加热气(GS2)压力为 345 kPa;碰撞气(CAD)强度为中等(medium)。氟乙酸定量离子对为  $m/z$  77.0>57.0,去簇电压(DP)为-40 V,碰撞能量(CE)为-15 eV; $^{13}\text{C}_2$ -氟乙酸的定量离子对为  $m/z$  79.0>59.0;去簇电压(DP)为-40 V,碰撞能量(CE)为-15 eV。质谱峰驻留时间均为 1 000 ms。

运行开始时,色谱柱流出液经六通切换阀切换至废液,5.50 min 时切换至离子源,8.00 min 时六通切换阀又将柱流出液切换至废液中。

## 2 结果与讨论

### 2.1 质谱条件的优化

氟乙酸在水中易形成带负电荷的氟乙酸根离子,故采用电喷雾电离、负离子模式下对质谱条件进行优化,第 1 级四极杆(Q1)扫描时出现  $[\text{M}-\text{H}]^{-}$  峰,以  $[\text{M}-\text{H}]^{-}$  作为母离子进行碰撞解离,子离子扫描发现有  $[\text{M}-\text{H}-\text{HF}]^{-}$  ( $m/z$  57.0) 和  $[\text{M}-\text{H}-\text{COO}]^{-}$  ( $m/z$  33.0) 碎片离子,再对去簇电压、碰撞能量等参数进行优化,使子离子的信号达到最高,优化后的结果显示: $m/z$  为 57.0 的碎片离子信号高,而  $m/z$  为 33.0 的碎片离子信号较低,约为  $m/z$  57.0 的 1/10,且基线信号较高,实际样品检测时有干扰峰存在。因此实验仅选择  $m/z$  77.0 和  $m/z$  57.0 作为定量离子对。设定合适的峰驻留时间(dwel time)使色谱峰的采样点数在 15~20 之间,可获得较好的定量重复性。优化后的质谱条件见 1.3.2 节。

### 2.2 离子色谱条件优化

氟乙酸为弱酸性水溶性化合物,特别适用离子色谱进行分离<sup>[14,15]</sup>,试验采用高容量 AS 19 阴离子交换色谱柱、5 mmol/L KOH 对样品中的氟乙酸进行分离,然后再用 70 mmol/L KOH 进行强洗脱以去除色谱柱上强保留成分,可以消除对后续样品分析造成的不良影响。色谱柱流出液经阴离子抑制器抑制去除流动相中的钾离子,然后进入质谱系统进行检测。采用 0.5 mL 带滤头的自动进样瓶,进样前先用 1.0 mL 的水清洗进样管路,去除进样残留液,进样 1 000  $\mu\text{g/L}$  氟乙酸标准溶液后再进一针空白溶液,结果显示无氟乙酸残留。优化后的离子色谱条件见 1.3.1 节。

### 2.3 样品前处理方法优化

#### 2.3.1 提取剂的选择

氟乙酸为水溶性弱酸,酸度常数  $\text{pK}_a$  为 2.73<sup>[29]</sup>,在  $\text{pH}<2$  的酸性条件下可被乙酸乙酯萃取<sup>[5,6]</sup>。考虑到血浆样品含有蛋白质等杂质,选择 3% (v/v) 高氯酸水溶液作为提取剂,既能提取氟乙酸又能沉淀去除蛋白质。结果表明,1.00 mL 血浆样品用 2.0 mL 3% (v/v) 高氯酸水溶液可完全沉淀去除蛋白质,超声提取后再低温高速离心,可得到澄清的提取液,此时提取液的 pH 值为 0.5~1.0,氟乙酸呈分子状态,易被有机溶剂萃取,在有机萃取液中加入 100  $\mu\text{L}$  1% (v/v) 氨水丙酮,使氟乙酸生成氟

乙酸铵盐, 以免氮吹过程损失, 最终残渣用 0.1% (v/v) 氨水溶解。试验吸取 1.00 mL 血浆样品, 添加 10 ng 氟乙酸, 按 1.2 节描述处理, 测定氟乙酸的色谱峰面积, 并与 1.00 mL 血浆样品按 1.2 节描述处理再添加 10 ng 氟乙酸的峰面积进行比较, 结果表明, 高氯酸的提取率约为 88%。

### 2.3.2 萃取剂

文献<sup>[5,6]</sup>报道多采用乙酸乙酯作为氟乙酸的萃取剂, 考虑到叔丁基甲醚与乙酸乙酯有相似的萃取性能, 故将二者进行比较。试验分别吸取 1.00 mL 血浆和尿液样品, 添加 10 ng 氟乙酸, 分别用 4.0 mL 叔丁基甲醚和乙酸乙酯进行萃取和测定。结果显示, 叔丁基甲醚萃取的氟乙酸色谱峰面积比乙酸乙酯萃取液的峰面积约高 20%, 因此确定叔丁基甲醚为萃取剂。

### 2.3.3 提取液 pH 的选择

将 7 份尿液样品分别用高氯酸或氨水调节至 pH 0.5、1.0、1.5、2.0、3.0、4.0 和 5.0, 再分别加入 20 ng 氟乙酸, 用 4.0 mL 叔丁基甲醚进行萃取和测定。结果显示, 在 pH 0.5~1.0 范围内氟乙酸的响应值最高, 因此将此 pH 范围作为叔丁基甲醚的萃取条件。

### 2.3.4 萃取次数的选择

分别向 pH 0.5~1.0 血浆和尿液的高氯酸提取液添加 10 ng 氟乙酸, 用 4.0 mL 叔丁基甲醚萃取 3 次, 计算每次的萃取率, 血浆和尿液样品的第 1 次萃取率约为 62%~64%, 第 2 次的萃取率约为 28%~30%, 前 2 次的萃取率总和约为 90%~94%。因此最

终采用 4.0 mL 叔丁基甲醚萃取 2 次。

## 2.4 基质效应

取空白血浆和尿液样品, 按 1.2 节描述操作, 得到空白样品处理液, 加入氟乙酸标准溶液 (10  $\mu\text{g/L}$ ) 制作基质标准溶液, 基质效应 (matrix effect, ME) 通过基质标准溶液和溶剂标准溶液中氟乙酸色谱峰面积的比值 $\times 100\%$ 进行评估, 当  $\text{ME} > 100\%$  为基质增强效应,  $\text{ME} < 100\%$  为基质抑制效应<sup>[30]</sup>。结果显示, 血浆和尿液中氟乙酸的基质效应约为 61% 和 30%。本法采用稳定同位素内标法进行定量, 可有效校正样品中的基质效应, 从而得到准确结果。

## 2.5 线性范围、检出限和定量限

将氟乙酸标准溶液稀释成质量浓度为 0.1、0.3、1.0、5.0、50.0、500 和 1000  $\mu\text{g/L}$  的系列标准溶液 (各含有 100  $\mu\text{g/L}$   $^{13}\text{C}_2$ -氟乙酸同位素标准溶液), 按 1.2 节描述进行处理, 采用 MultiQuant 定量软件进行数据处理, 以氟乙酸定量离子对与内标物的峰面积比值 ( $Y$ ) 对相应的质量浓度 ( $x$ ,  $\mu\text{g/L}$ ) 进行线性回归 (权重取  $1/x$ ), 回归方程为  $Y = 0.0161x + 0.0025$ , 相关系数  $> 0.999$ , 线性关系良好。

在空白血浆和尿液样品中分别加入低浓度的氟乙酸进行测定, 以分子离子对的信噪比  $\geq 3$  和 10 时的样品浓度作为检出限 (LOD) 和定量限 (LOQ)。结果表明, 血浆和尿液的检出限分别为 0.03  $\mu\text{g/L}$  和 0.1  $\mu\text{g/L}$ , 定量限为 0.1  $\mu\text{g/L}$  和 0.3  $\mu\text{g/L}$ 。方法灵敏度优于文献<sup>[16,19]</sup>报道值。在定量限水平下加标尿液样品的色谱图见图 2。

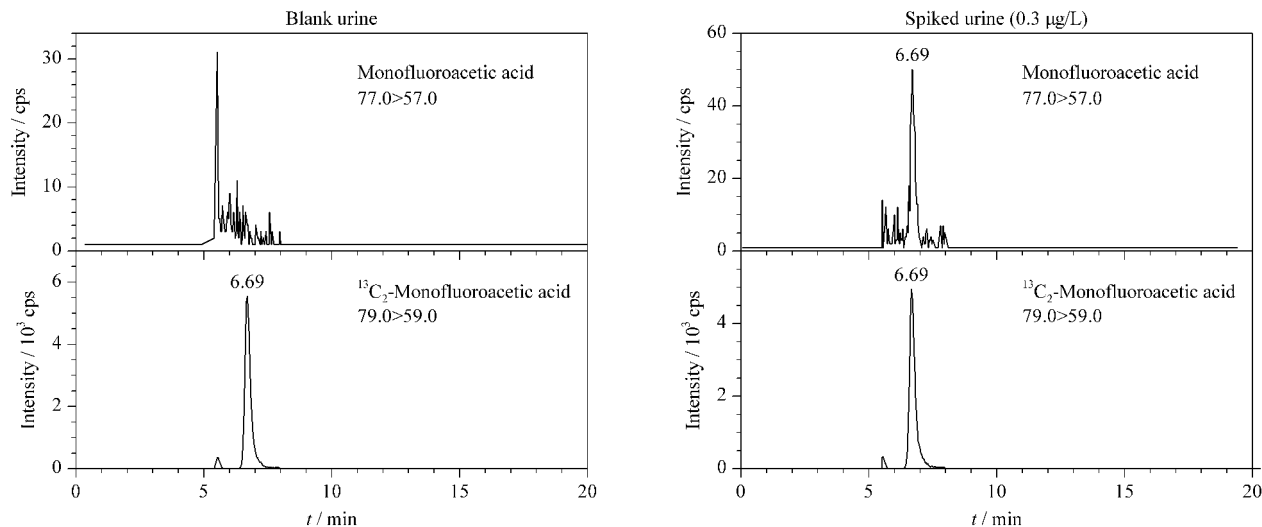


图 2 加标尿液样品中氟乙酸的色谱图

Fig. 2 Chromatograms of monofluoroacetic acid spiked in plasma samples

2.6 加标回收率

在空白血浆中分别添加 0.1、0.5、50、800 μg/L 4 个水平的氟乙酸,空白尿液中分别添加 0.3、5.0、50、800 μg/L 4 个水平的氟乙酸,按 1.2 节描述进行样品处理,每个添加水平平行测定 6 次。结果表明,血浆和尿液样品中氟乙酸的加标回收率为 96.2%~120%,相对标准偏差为 1.1%~13.1% (见表 1),符合痕量分析的要求。

表 1 加标血浆和尿液样品中氟乙酸的回收率和相对标准偏差 (n=6)

Table 1 Recoveries and RSDs of the monofluoroacetic acid spiked in plasma and urine samples (n=6)

| Sample | Spiked level/<br>(μg/L) | Found/<br>(μg/L) | Recovery/<br>% | RSD/<br>% |
|--------|-------------------------|------------------|----------------|-----------|
| Plasma | 0.1                     | 0.1              | 100            | 13.1      |
|        | 0.5                     | 0.6              | 120            | 5.3       |
|        | 50.0                    | 48.5             | 97.0           | 1.9       |
|        | 800                     | 831              | 104            | 1.1       |
| Urine  | 0.3                     | 0.3              | 100            | 12.3      |
|        | 5.0                     | 5.0              | 100            | 6.5       |
|        | 50.0                    | 48.1             | 96.2           | 1.9       |
|        | 800                     | 832              | 104            | 1.4       |

3 结论

本法采用高氯酸提取、叔丁基甲醚液液萃取净化,离子色谱-三重四极杆质谱法直接快速测定血浆和尿液中的氟乙酸,稳定同位素稀释法定量。该法准确、精密,操作简单,线性范围宽,灵敏度高,适用于血浆和尿液样品中痕量氟乙酸的测定。

参考文献:

[1] Qiu H Y. Zhejiang Journal of Preventive Medicine, 1999, 11 (2): 53  
裘惠莹. 浙江预防医学, 1999, 11(2): 53

[2] Zhang J, Lu L B, Yang Y, et al. Chinese Journal of Food Safety & Quality, 2013, 4(3): 660  
张晶, 卢丽彬, 杨奕, 等. 食品安全质量检测学报, 2013, 4 (3): 660

[3] Lee S T, Cook D, Pfister J A, et al. J Agric Food Chem, 2014, 62: 7345

[4] Cook D, Lee S T, Taylor C M, et al. Toxicon, 2014, 80: 9

[5] Yu Z H, Feng S Z, Zhang J Z, et al. Chinese Journal of Forensic Medicine, 1999, 14(4): 224  
于忠山, 封世珍, 张继宗, 等. 中国法医学杂志, 1999, 14 (4): 224

[6] Guang F Y, Liu L, Luo Y. Environmental Chemistry, 1995, 14(3): 196  
关福玉, 刘力, 罗毅. 环境化学, 1995, 14(3): 196

[7] Huang H Q, Huang X, Yu J S. Chinese Journal of Chroma-

tography, 2015, 33(3): 323

[8] Koryagina N L, Savelieva E I, Khlebnikova N S, et al. Anal Bioanal Chem, 2006, 386: 1395

[9] Song M, Jia W, Qian D P. Chinese Journal of Health Laboratory Technology, 2005, 15(12): 1476  
宋鸣, 贾薇, 钱大鹏. 中国卫生检验杂志, 2005, 15 (12): 1476

[10] Xie Z M, Shi W B, Liu L, et al. Journal of Analytical Science, 2007, 23(6): 685  
谢珍茗, 施文兵, 刘岚, 等. 分析科学学报, 2007, 23 (6): 685

[11] Xie Z, Shi W, Liu L, et al. J Chromatogr B, 2007, 857: 53

[12] Xie Z M, Shi W B, Liu L, et al. Journal of Instrumental Analysis, 2007, 26(2): 228  
谢珍茗, 施文兵, 刘岚, 等. 分析测试学报, 2007, 26 (2): 228

[13] Chen X G, Zhu Y, Xu R L, et al. Forensic Science and Technology, 2012(1): 21  
陈学国, 朱昱, 徐若沦, 等. 刑事技术, 2012(1): 21

[14] Wang Y J, Yang S J, Xie J L, et al. Forensic Science and Technology, 2003(6): 16  
王燕军, 杨胜军, 谢敬兰, 等. 刑事技术, 2003(6): 16

[15] Yang P, Shi W B, Zhou H Y, et al. Chinese Journal of Chromatography, 2004, 22(2): 177  
杨萍, 施文兵, 周海云, 等. 色谱, 2004, 22(2): 177

[16] Chen X G, Zhu Y, Zhang T, et al. Forensic Science and Technology, 2010(10): 22  
陈学国, 朱昱, 张婷, 等. 刑事技术, 2010(10): 22

[17] Xu X M, Cai Z X, Zhang J S, et al. J Chromatogr B, 2016, 1027: 131

[18] Zhang X Y, Cai X X, Zhang X Y, et al. Chinese Journal of Analytical Chemistry, 2014, 42(11): 1611  
张秀尧, 蔡欣欣, 张晓艺, 等. 分析化学, 2014, 42 (11): 1611

[19] Hamelina E I, Mawhinney D B, Parry R, et al. J Chromatogr B, 2010, 878: 1045

[20] Zhao H J, Liang W H, Li Z, et al. Chinese Journal of Chromatography, 2017, 35(3): 264  
赵海杰, 梁文辉, 李震, 等. 色谱, 2017, 35(3): 264

[21] Yun H, Gao F, Lu X Y, et al. Journal of Food Safety & Quality, 2015, 6(11): 4348  
云环, 高峰, 卢晓宇, 等. 食品安全质量检测学报, 2015, 6 (11): 4348

[22] Du L J, Liu X L, Li X Y, et al. China Food Additives, 2017, 6: 190  
杜利君, 刘晓琳, 李晓雨, 等. 中国食品添加剂, 2017, 6: 190

[23] Du L J, Hua J, Zhao Y Y, et al. Chinese Journal of Analysis Laboratory, 2017, 36(11): 1277  
杜利君, 花锦, 赵悠悠, 等. 分析试验室, 2017, 36 (11): 1277

[24] Xiong Z Y, Dong Y, Zhou H B, et al. Chinese Journal of Chromatography, 2014, 32(2): 145  
熊治渝, 董英, 周洪斌, 等. 色谱, 2014, 32(2): 145

[25] Zhang T, Cui H, Hu D Q, et al. Food Science and Technology, 2017, 42(11): 326

[26]

张涛, 崔鹤, 胡东青, 等. 食品科技, 2017, 42(11): 326

Gui J Y, Sun W, Zhang C L, et al. Chinese Journal of Analytical Chemistry, 2016, 44(3): 361

桂建业, 孙威, 张辰凌, 等. 分析化学, 2016, 44(3): 361

Cai M Q, Dong X Y, Chen X H, et al. Talanta, 2009, 78(1): 242

Baygildiev T, Zatirakha A, Rodin I, et al. J Chromatogr B, 2017, 1058: 32

[29]

Zhao S Z, Yi X H, Shi Y Y, et al. Chinese Journal of Chromatography, 2016, 34(4): 397

赵善贞, 伊雄海, 时逸吟, 等. 色谱, 2016, 34(4): 397

Matuszewski B K, Constanzer M L, Chavez-Eng C M. Anal Chem, 2003, 75(13): 3019