

实验技术与方法

超高效液相色谱-串联质谱法测定进口冷链食品外包装表面的三聚氰酸

姚凯,张晶,张昕,邵兵

(北京市疾病预防控制中心,食物中毒诊断溯源技术北京市重点实验室,北京 100013)

摘要:目的 建立用于测定进口冷链食品外包装表面的三聚氰酸的超高效液相色谱-串联质谱(UHPLC-MS/MS)分析方法。方法 以50%乙腈水溶液作为提取溶剂,对样品进行振荡提取,离心后取上层清液进样,采用Waters ACQUITY BEH HILIC(2.1×100 mm, 1.7 μm)色谱柱进行分离,乙腈和10 mmol/L醋酸铵水溶液作为流动相等梯度洗脱,UHPLC-MS/MS检测三聚氰酸。结果 方法线性良好(相关系数>0.999 0),检出限和定量限分别为5.0~20.0和20.0~50.0 μg/kg,低、中和高添加水平下的平均回收率为80.0%~96.6%,日内和日间相对标准偏差均低于12.3%。结论 建立的方法前处理过程简便,回收率和灵敏度高且精密度良好,适用于进口冷链食品包装外表面三聚氰酸的检测。

关键词:进口冷链食品外包装;三聚氰酸;超高效液相色谱;串联质谱

中图分类号:R155 文献标识码:A 文章编号:1004-8456(2023)12-1715-07

DOI:10.13590/j.cjfh.2023.12.004

Determination of cyanuric acid in outer packaging of imported cold-chain food using ultra-high-performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry

YAO Kai, ZHANG Jing, ZHANG Xin, SHAO Bing

(Beijing Key Laboratory of Diagnostic and Traceability Technologies for Food Poisoning, Beijing Center for Disease Control and Prevention, Beijing 100013, China)

Abstract: Objective To develop an ultrahigh-performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry (UHPLC-MS/MS) analytical method for the determination of cyanuric acid in the outer packaging of imported cold-chain food.

Methods A 50% aqueous acetonitrile solution was used as an extraction solvent. The extraction was performed by shaking the samples. The sample was centrifuged, and the supernatant was transferred for injection. Cyanuric acid was separated using a Waters ACQUITY BEH HILIC (2.1×100 mm, 1.7 μm). The mobile phase consisted of acetonitrile and a 10 mmol/L aqueous ammonium acetate solution. An isocratic elution was also performed. Cyanuric acid was detected using UHPLC-MS/MS. **Results** Good linearity was achieved, with a correlation coefficient above 0.999 0. The limit of detection and limit of quantitation of the method were 5.0-20.0 and 20.0-50.0 μg/kg, respectively. The mean recoveries at low, middle, and high spiked levels were 80.0%-96.6%. The intra- and inter-day relative standard deviations were <12.3%.

Conclusion Due to its straightforward sample preparation, reliable recovery, heightened sensitivity, and precision, the established method has been proven suitable for the assessment of cyanuric acid in the outer packaging of imported cold-chain food.

Key words: Imported cold-chain food outer packaging; cyanuric acid; ultra-high-performance liquid chromatography; tandem mass spectrometry

新型冠状病毒感染疫情发生期间,我国多地报道食品外包装新型冠状病毒检测呈阳性事件,源头均指向进口冷链食品^[1]。为避免此类食品外包装受

到新型冠状病毒污染而增加疫情传染风险,2022年1月发布的《冷链食品生产经营过程新冠病毒防控技术指南(第二版)》中指出,对来自新型冠状病毒

收稿日期:2023-01-06

基金项目:首都卫生发展科研专项(首发2022-4G-30118);北京市科技计划项目(Z211100007021008)

作者简介:姚凯 男 助理研究员 研究方向为食品中危害因子检测分析 E-mail:yaokaizz@163.com

通信作者:邵兵 男 研究员 研究方向为食品污染物分析 E-mail:shaobingch@sina.com

感染疫情高风险地区(国家)的冷链食品原料和半成品进入企业或者入库前,应当对其外包装进行严格、有效消毒。2023年1月8日起,新型冠状病毒感染由“乙类甲管”调整为“乙类乙管”,国务院联防联控机制明确“对入境的物品不再采取预防性消毒,对进口冷链食品也不再进行抽检”。但进口冷链食品来自全球各国和地区,国外疫情发展形势严峻,进口冷链食品外包装的预防性消毒,能够有效杀灭包装携带的传染病病原微生物,是避免事后防控困难的前置防控手段。冷链食品常用低温消毒剂主要有含氯消毒剂、过氧化物类消毒剂和季铵盐类消毒剂等。含氯消毒剂相比其他消毒剂,具有适用范围广、安全性高且成本低等特点^[2],成为新型冠状病毒感染疫情防控期间使用最多的消毒剂之一。含氯低温消毒剂(-18℃、-40℃)的主要成分均含有二氯异氰尿酸钠^[3],配制低温消毒剂时的主要生成物是起消毒作用的次氯酸和可造成人体肾结石和尿结石的三聚氰酸^[4]。次氯酸可在光照等条件下发生分解,而三聚氰酸性质比较稳定,外包装预防性消毒工作在消杀病原微生物的同时,也容易造成三聚氰酸在进口冷链食品外包装表面的残留。有研究表明,食品外包装的污染物残留可在一定条件下渗透迁移到包装内表面,对食物造成污染^[5]。此外,消费者在购买进口冷链食品后,无法避免用手直接接触外包装,通过皮肤吸收危害人体健康。因此,建立进口冷链食品外包装中三聚氰酸残留水平的精准检测技术,为保障居民饮食安全提供有力的技术保证。

1 材料与方法

1.1 主要仪器与试剂

Nexera X2 超高效液相色谱仪(Shimadzu 公司),配有 8060 三重四级杆质谱仪(Shimadzu 公司);Milli-Q® IQ 7005 超纯水系统(Millipore 公司);分析天平(读数精度 0.1 mg, Mettler Toledo 公司);Allegra X-30R 离心机(Beckman Coulter 公司);MS 3 basic 振荡器(IKA 公司);HZQ-C 空气浴振荡器(哈尔滨市东联电子技术开发有限公司)。

三聚氰酸标准品(纯度≥99.0%,阿拉丁生物科技股份有限公司);质谱级甲醇(Methanol, MeOH)、质谱级乙腈(Acetonitrile, ACN)购自 Merck 公司;超纯水(电阻率:18.2 MΩ)由 Milli-Q® IQ 7005 超纯水系统制备。

1.2 三聚氰酸标准溶液的配制

准确称取 100 mg 的三聚氰酸标准品于 10 mL 容量瓶,用 MeOH 配制成 10 mg/mL 的三聚氰酸标

准储备液,-20℃保存备用;取适量标准储备液,用 MeOH 逐级稀释得到 1 mg/mL 和 1 μg/mL 的三聚氰酸标准工作液。

1.2 试验方法

1.2.1 样品前处理

取冷链食品外包装样品(塑料类材质:聚乙烯、聚丙烯;纸类材质:低温瓦楞纸),避免选用贴有热敏纸标签的部分,用剪刀剪碎至直径小于 0.3 cm 的单个碎片,混合均匀,准确称取 0.200 g 样品(精确至 0.001 g)至 15 mL 离心管中,加入 2 mL 50% ACN 水溶液,振荡 30 s 后,放入空气浴振荡器中 180 r/min 提取 20 min,8 600 g 离心 10 min,取上层溶液 1 mL 于玻璃进样小瓶中,超高效液相色谱串联质谱仪(Ultra-high-performance liquid chromatography tandem mass spectrometry, UHPLC-MS/MS)进样分析。

1.2.2 UHPLC-MS/MS 条件

色谱柱:Waters ACQUITY BEH HILIC (2.1×100 mm, 1.7 μm);柱温:40℃;流速:0.3 mL/min;进样体积:5 μL;流动相:ACN 和 10 mmol/L 醋酸铵水溶液;50%ACN 和 50% 10 mmol/L 醋酸铵水溶液等度洗脱;电喷雾电离(Electrospray ionization, ESI)负离子模式;多反应监测;母离子为 m/z 128.1,子离子为 m/z 85.0(定性离子)和 m/z 42.0(定量离子),碰撞电压分别为 15.0 和 23.0 V; m/z 85.0 的 Q1 Pre 偏差和 Q3 Pre 偏差分别为 14.0 和 21.0 V, m/z 42.0 的 Q1 Pre 偏差和 Q3 Pre 偏差分别为 18.0 和 13.0 V,雾化气流量:3.0 L/min;干燥气流量:10.0 mL/min;加热气流量:10.0 mL/min;接口温度:300℃;脱溶剂温度:526℃;加热块温度:400℃。

2 结果

2.1 色谱条件优化

本研究对 Waters ACQUITY BEH HILIC (2.1×100 mm, 1.7 μm)、Waters ACQUITY HSS T3 (2.1×50 mm, 1.8 μm)、Waters ACQUITY BEH C₁₈ (2.1×100 mm, 1.7 μm)和 Waters ACQUITY HSS C₁₈ (2.1×100 mm, 1.7 μm)4 款适用于不同极性化合物的色谱柱进行优化,流动相为 ACN 和 10 mmol/L 乙酸铵水溶液,进样体积为 5 μL。如图 1 所示,三聚氰酸在 BEH C₁₈ 色谱柱上的峰形最差且信噪比(Signal to noise, S/N)最低,这是由于三聚氰酸是强极性物质,而 BEH C₁₈ 对非极性物质的保留较强,对三聚氰酸保留太差导致;HSS C₁₈ 与 BEH C₁₈ 相比,保留能力得到加强,虽然峰形对称,但 S/N 仅为 25;极性物质专用分析柱 HSS T3 对极性物质的保留较 HSS C₁₈ 有进一步提升,峰形对称,但 S/N 无明显提升,仅为

40; BEH HILIC 为亲水作用色谱,是与反相色谱互补的一项技术^[6],可以通过高比例有机相和低含水量的流动相与极性固定相的组合,实现对强极性物质的保留^[7]。由图 1 可知, BEH HILIC 作为色谱柱时,色谱峰的响应值和 S/N 均为最高。因此,本实验选用对三聚氰酸保留较强且信噪比最高的 BEH HILIC 色谱柱。同时,对不同的流动相(ACN 和超纯水、ACN 和 0.1% 甲酸水、ACN 和 0.1% 氨水、ACN 和含 0.1% 甲酸的 10 mmol/L 醋酸铵水溶液、ACN 和 10 mmol/L 醋酸铵水溶液)进行优化。结果显示,不同流动相下 10 μg/L 的三聚氰酸色谱峰峰形差别不大,色谱峰最大信号强度与信噪比由高到低的流动相依次为 ACN 和超纯水、ACN 和 0.1% 氨水、ACN 和 10 mmol/L 醋酸铵水溶液、ACN 和含 0.1% 甲酸的 10 mmol/L 醋酸铵水溶液以及 ACN 和 0.1% 甲酸水。S/N 最高值约为最低值的 10 倍,这可能是由于甲酸会导致流动相的 pH 降低,抑制三聚氰酸的电离效率,从而降低信号强度。考虑到低温消毒剂在实际应用时不但生成三聚氰酸,同时也会生成大量的消毒主要成分次氯酸。本研究将配制的低温消毒剂(-18 °C)用超纯水稀释 100 倍后,在不同的流动相条件下进行 UHPLC-MS/MS 检测,研究发现除具有缓冲能力的 ACN 和 10 mmol/L 醋酸铵、ACN 和含 0.1% 甲酸的 10 mmol/L 醋酸铵外,其他流动相组成下三聚氰酸的峰形都不够尖锐和对称。HILIC 的保留机制复杂,包含氢键作用、偶极作用和静电作用等,因此不同有机相组成对三聚氰酸在 BEH HILIC 色谱柱上的保留影响也不尽相同,很难总结出统一的规律^[8]。综合考虑信号强度、信噪比和色谱峰形等因素,选择 ACN 和 10 mmol/L 醋酸铵作为流动相。

2.2 提取溶剂优化

三聚氰酸常用的提取溶剂有 MeOH、ACN 以及有机溶剂与超纯水的混合溶液。本研究分别对 ACN、MeOH、ACN/超纯水(8:2, V/V)、MeOH/超纯水(8:2, V/V)、ACN/超纯水(5:5, V/V)、MeOH/超纯水(5:5, V/V)、ACN/超纯水(2:8, V/V)、MeOH/超纯水(2:8, V/V)、MeOH/ACN/超纯水(4:4:2, V/V/V)和超纯水进行优化。如图 2 所示, ACN/水(5:5, V/V)和 MeOH/水(2:8, V/V)作为提取溶剂时,对塑料类和纸类外包装中三聚氰酸的平均回收率高于其他提取溶剂,分别为 94.3%~108.5% 和 93.3%~108.3%。为了取得更好的色谱峰形,选择与流动相组成兼容性更好的 ACN/水(5:5, V/V)作为提取溶剂。

2.3 净化方式优化

UHPLC-ESI-MS/MS 在选择性和灵敏度等方面的优势使之成为检测各种样品中化合物的首要选择。然而,ESI 离子源在分析过程中也存在一个明显的问题—基质效应。基质效应是评价前处理净化效果的重要参数。基质效应(%)=(基质匹配标准曲线斜率/溶剂标准曲线斜率-1)×100%,数值为正,代表基质增强;数值为负,代表基质抑制;数值为±20%之内,可认为基质效应可以忽略,净化效果良好。在进样时,样品的共提取物连同三聚氰酸一起进入 MS/MS 系统,影响目标化合物的电离效率,造成基质增强或基质抑制。减少或消除基质效应对于进口冷链食品外包装中三聚氰酸的准确、高灵敏度测定至关重要。当前报道的减少基质效应的措施主要有:改变样品前处理条件,提升净化效果,去除干扰物质^[9]; Waters Oasis MAX 固相萃取柱为混合型阴离子小柱,可通过强阴离子交换作用,对复杂样品中的三聚氰酸进行净化^[10],是目前已报道的最常用的净化手段。本研究采用此固相萃取柱对进口冷链食品纸类/塑料类外包装提取液中三聚氰酸的回收率和基质效应进行考察。净化过程为: Waters Oasis MAX 固相萃取柱(3 cc, 50 mg)经 3 mL ACN 和 3 mL 5% 氨水活化之后,取 1 mL 待净化的纸类/塑料类样品提取液与 2 mL 5% 氨水混合后,将混合液以自然流速通过活化后的 Waters Oasis MAX 固相萃取柱,依次用 2 mL 5% 氨水和 2 mL ACN 洗涤后,2 mL ACN(含 5% 甲酸)进行洗脱,40 °C 下氮气吹至近干,1 mL 50% ACN 水溶液复溶后,进行 UHPLC-MS/MS 分析。试验结果显示:在 100 μg/kg 的添加水平下,纸类/塑料类样品中三聚氰酸回收率为 93.3%±4.5%,基质效应为 -59.2%±0.3%。显然, Waters Oasis MAX 固相萃取柱的回收率虽然令人满意,但并未取得理想的净化效果。同时,本研究对比了离心过后的纸类/塑料类样品提取液不经 Waters Oasis MAX 固相萃取柱净化,直接进样后三聚氰酸的回收率和基质效应。在纸类样品中三聚氰酸的回收率和基质效应分别为 95.1%±6.3% 和 -62.4%±3.2%,在塑料样品中三聚氰酸的回收率和基质效应分别为 93.3%±5.8% 和 -9.1%±2.9%。三聚氰酸在纸类样品中净化前后的基质效应相差不大,而在塑料样品中经过净化后基质效应反而明显增加,对造成这一现象的原因进行探究。“2.1 色谱条件优化”部分发现三聚氰酸的响应值在 ACN 水溶液中最高,在低 pH 溶液中会明显下降,而 Waters Oasis MAX 固相萃取柱的洗脱过程中,采用 2 mL ACN(含 5% 甲酸)作为洗脱溶剂。为了验证洗脱溶

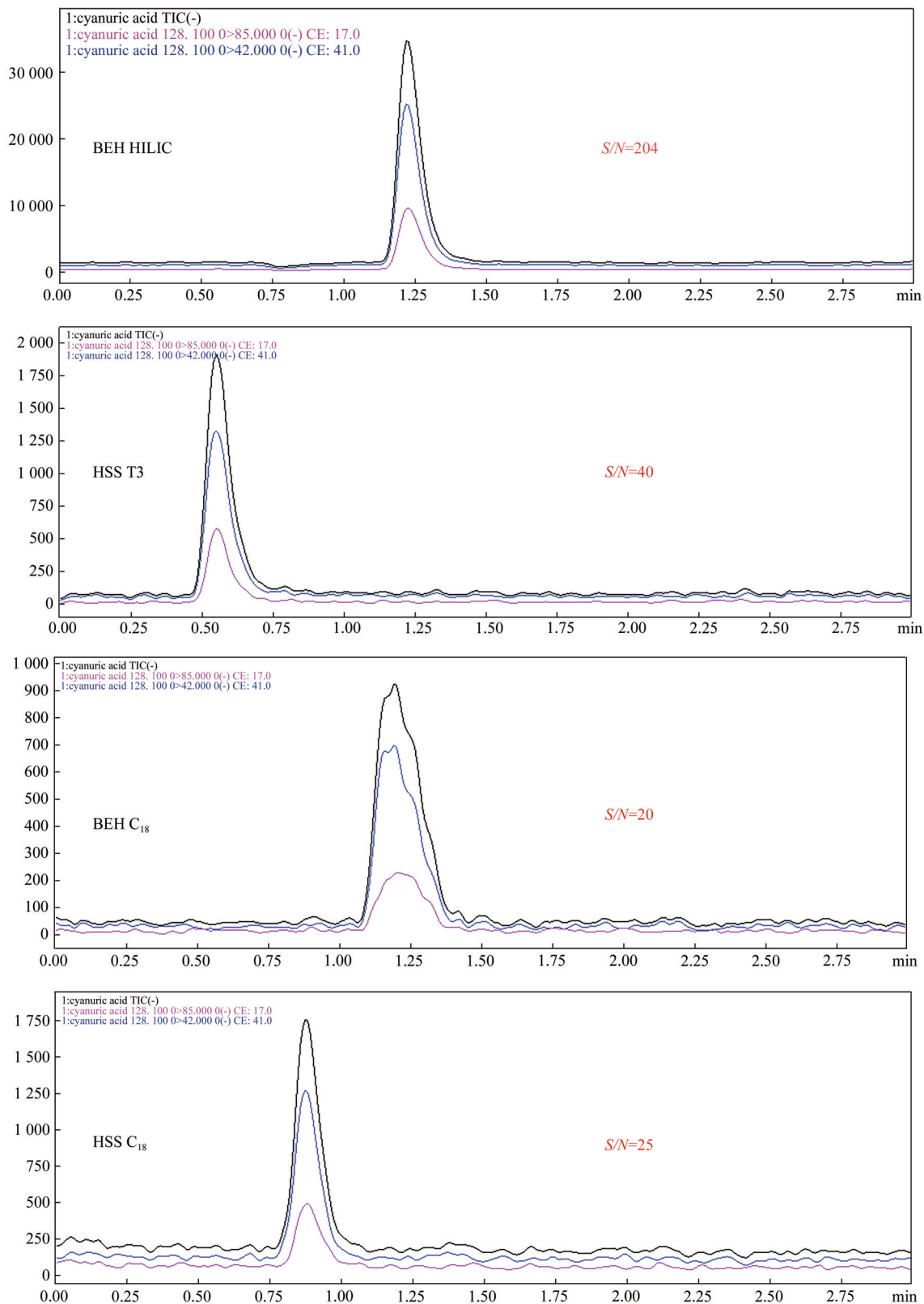


图1 不同色谱柱条件时三聚氰酸(10 µg/L)的MRM色谱图

Figure 1 MRM chromatograms of cyanuric acid (10 µg/L) in different chromatographic column

剂中的甲酸是否会对复溶液的 pH 造成影响,从而降低三聚氰酸的响应值,本研究分别将含有 100 ng 三聚氰酸的 2 mL ACN、2 mL ACN(含 2% 甲酸)以及 2 mL ACN(含 5% 甲酸)用氮气吹干后,50% ACN 水溶液重新溶解,MS/MS 进样后发现含 2% 甲酸和

5% 甲酸的 ACN 相较于不含甲酸的 ACN,三聚氰酸峰面积分别下降了 34.4%±0.8% 和 52.2%±2.0%。由此可知,造成 Waters Oasis MAX 固相萃取柱净化过程基质效应的主要原因是洗脱液中 5% 甲酸的存在会明显降低三聚氰酸的响应值和峰面积,而甲酸

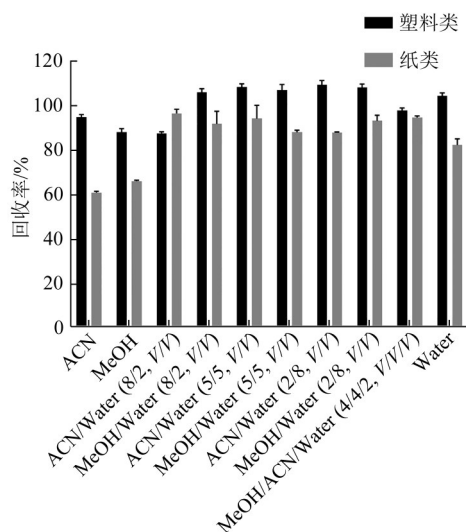


图2 不同提取溶剂时三聚氰酸的回收率

Figure 2 Recoveries of cyanuric acid in different extraction solvent

对于 Waters Oasis MAX 固相萃取柱上已保留三聚氰酸的洗脱又至关重要。本研究拟采用具有 pH 缓冲能力的流动相溶液作为复溶液解决此问题,试验结果显示:ACN 和 10 mmol/L 乙酸铵水溶液 (50:50, V/V) 作为复溶液无法有效缓冲洗脱液中 5% 甲酸造成的 pH 下降。由于 Waters Oasis MAX 固相萃取柱成本较高、净化过程复杂、操作时间长且净化效果不理想,因此本研究为了操作简便和节省成本,采用提取液提取经离心取上清液直接 UHPLC-MS/MS 进样的方法对外包装材料的三聚氰酸进行分析。建立基质匹配标准曲线消除基质效应干扰^[11],本研究采用此方法弥补直接提取液进样造成的基质效应强的缺陷。运用同位素内标对基质效应进行校正^[12],该方法可有效校正基质效应和样品前处理过程中待测物的损失,但同位素内标价格昂贵,故本研究未采用该方法;稀释法降低待测物中干扰物质的浓度^[13],稀释法相比其他方法更加经济、方便,但本研究发现,在进样体积为 5 μL 时,将提取液稀释 10 倍后才可以完全消除基质效应,虽然高倍数的稀释可以明显降低或消除基质效应,但是方法灵敏度也随之降低,无法满足实际样品中低浓度水平三聚氰酸的检测。因此,本研究最终采用

表1 进口冷链食品外包装中三聚氰酸的平均回收率($n=6$)和 RSDs($n=3$)Table 1 Mean recoveries ($n=6$) and RSDs ($n=3$) of cyanuric acid in imported cold-chain food packaging

包装材质	LOD/($\mu\text{g}/\text{kg}$)	LOQ/($\mu\text{g}/\text{kg}$)	加标水平/($\mu\text{g}/\text{kg}$)	平均回收率/%	日内 RSD/%	日间 RSD/%
塑料类	5.0	20.0	20.0	96.6	6.2	7.4
			100.0	96.2	12.1	10.3
			200.0	89.7	12.3	9.5
纸类	20.0	50.0	50.0	80.0	8.5	6.4
			250.0	93.1	4.7	8.1
			500.0	94.0	7.1	9.9

提取液直接进样,基质匹配标准曲线定量的方法对三聚氰酸进行测定。

2.4 进样体积的优化

进样体积是 UHPLC-ESI-MS/MS 进行分析时基质效应和信噪比的重要影响因素。本研究按照 1.2.1 所述的样品前处理步骤获得冷链食品外包装空白样品的提取液,用此提取液作为溶剂,配制成浓度为 10 $\mu\text{g}/\text{L}$ 的三聚氰酸基质匹配标准溶液。将此标准溶液分别进样 3、5 和 10 μL ,研究进样后的基质抑制率和信噪比。如图 3 所示,随着进样体积从 3 μL 逐渐增加到 10 μL ,基质抑制率也随之升高, S/N 先升高后降低,说明进样体积的增加使三聚氰酸进样绝对量增加的同时,也会导致一同进入 MS/MS 系统的共提取物增加^[14],进而抑制三聚氰酸的电离。综合考虑,本研究选择进样体积为 5 μL 。

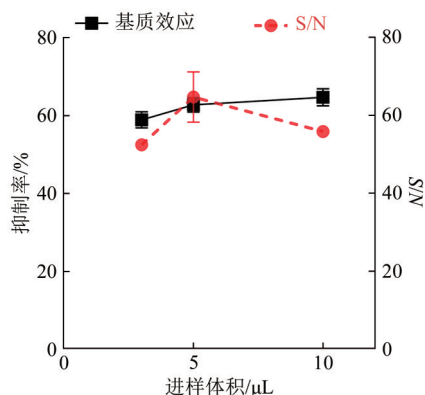


图3 不同进样体积时三聚氰酸的基质抑制率和 S/N 值

Figure 3 Matrix suppression rate and S/N values of cyanuric acid in different injection volume

2.5 方法验证

采用在空白样品中添加三聚氰酸来测定方法的检出限 (Limit of detection, LOD)、定量限 (Limit of quantification, LOQ)、线性范围、不同添加水平下的回收率和精密度等。

分别配制 20.0、50.0、100.0、200.0、500.0、1 000.0、2 000.0 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 的三聚氰酸基质匹配标准溶液, UHPLC-MS/MS 进样,每份标准溶液进样 3 次,以浓度 ($\mu\text{g}/\text{kg}$) 为横坐标,定量离子的峰面积为纵坐标,建立基质匹配标准曲线,塑料类中三聚氰酸

的线性范围为 20~500 $\mu\text{g}/\text{kg}$, 标准曲线为 $y=426.5x+207.2$, 相关系数为 0.999 4; 纸质类中三聚氰酸的线性范围为 50~2 000.0 $\mu\text{g}/\text{kg}$, 标准曲线为 $y=322.5x+570.6$, 相关系数为 0.999 8。标准曲线的线性均良好。向空白样品中添加不同浓度水平的标液, 按照 1.2.1 的方法处理, UHPLC-MS/MS 检测, 比较与空白样品的测量信号, 将 $S/N=3$ 和 $S/N=10$ 时的加标浓度分别定义为方法的 LOD 和 LOQ。设立低、中、高 3 个加标水平, 每个加标水平设立 6 个平行, 连续 3 d 重复样品处理和测定其回收率, 计算日内和日间相对标准偏差 (Relative standard deviation, RSD),

用于评价方法的日内和日间精密度, 结果见表 1。三聚氰酸在塑料类和纸类进口冷链食品外包装中的 LOD 分别为 5.0 和 20.0 $\mu\text{g}/\text{kg}$, LOQ 分别为 20.0 和 50.0 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。平均回收率为 80.0%~96.6%, 日内和日间 RSD 均低于 12.3%, 表明回收率和精密度均良好。

进口冷链食品外包装中三聚氰酸的 MS/MS 图如图 4 所示, 样品经过提取、离心后直接进样, 三聚氰酸的色谱峰峰形尖锐、对称且出峰时间周围无干扰峰存在。表明本研究建立的 UHPLC-MS/MS 方法净化效果良好。

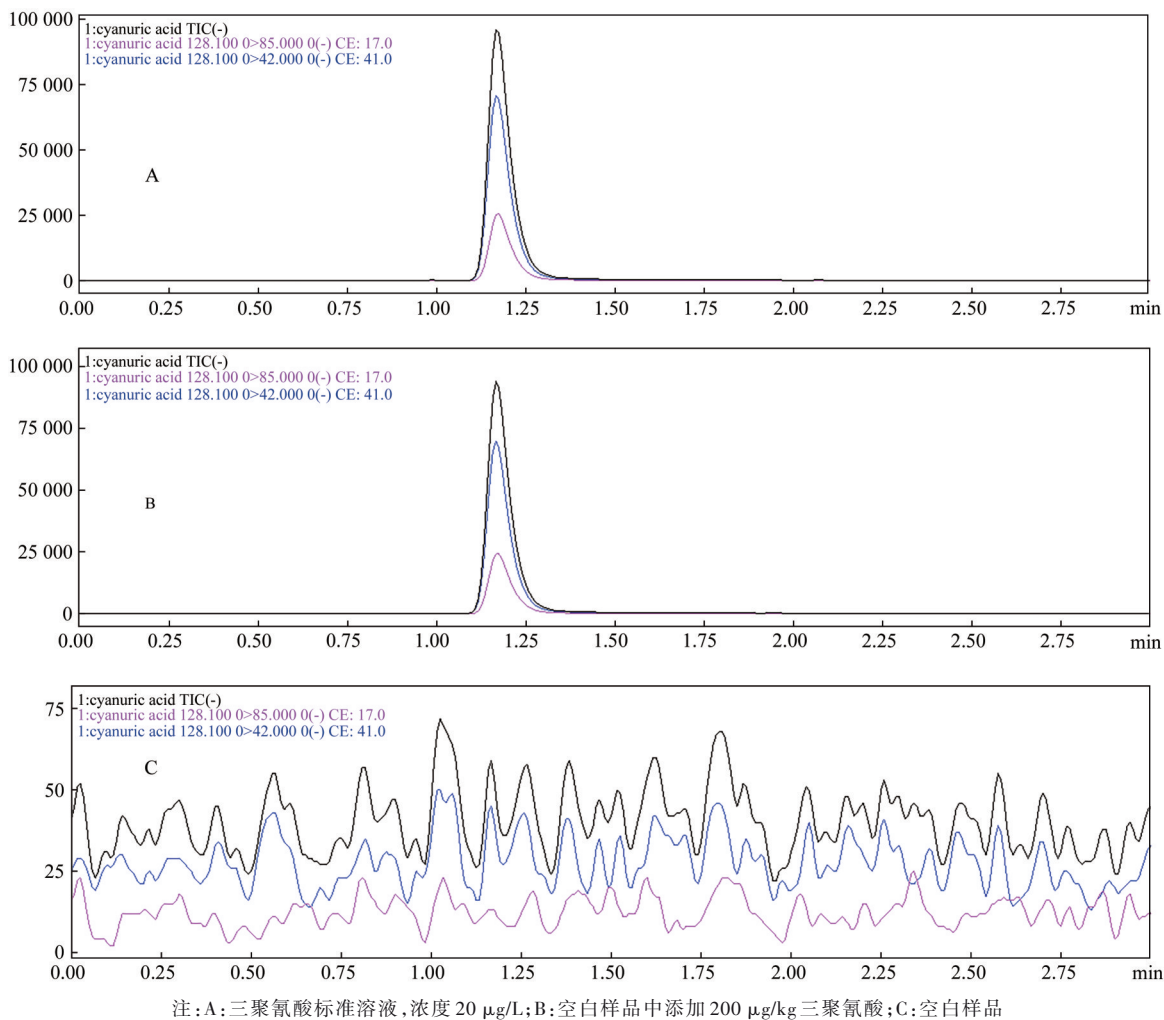


图 4 进口冷链食品塑料类外包装中三聚氰酸的 MS/MS 图

Figure 4 MS/MS spectra of cyanuric acid in imported cold-chain food plastic outer packaging

2.6 实际样品检测

本研究对购自北京市某超市的 10 份进口冷链食品外包装按照 1.2.1 所述的方法对三聚氰酸进行测定, 其中一份样品中检出三聚氰酸含量为 448.0 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。说明使用二氯异氰尿酸或三氯异氰尿酸及其制品等含氯消毒剂对冷链食品外包装消毒后, 可能会造成消毒剂分解产物—三聚氰酸的残留。

3 结论

本研究建立了测定进口冷链食品外包装表面三聚氰酸的 UHPLC-MS/MS 方法。该方法对样本和提取溶剂的需求量小, 前处理过程简单快捷, 方法的检出限和定量限满足实际样本的测定需求, 回收率和精密度良好, 适用于新型冠状病毒感染“乙类乙管”防控策略下进口冷链食品样品外包装表面的三聚氰酸污染状况的监测与检测。

参考文献

- [1] 李凤琴, 李宁. 新型冠状病毒经冷链食品经营活动引入和传播: 现状与防控对策[J]. 中国食品卫生杂志, 2022, 34(1): 1-6.
- LI F Q, LI N. Introduction and transmission of SARS-CoV-2 via producing and trading activities of cold chain food: Current situation and countermeasures[J]. Chinese Journal of Food Hygiene, 2022, 34(1): 1-6.
- [2] 李杰, 张文福. 次氯酸钠消毒液稳定性研究进展[J]. 中国消毒学杂志, 2015, 32(12): 1233-1237.
- LI J, ZHANG W F. Research progress on stability of sodium hypochlorite disinfectant [J]. Chinese Journal of Disinfection, 2015, 32(12): 1233-1237.
- [3] SUN H H, DUAN H Y, ZHANG W, et al. Development of cryogenic disinfectants using in -18 °C and -40 °C environments—Worldwide, 2021 [J]. China CDC Weekly, 2021, 3(13): 285-289.
- [4] ZHU H, KANNAN K. Melamine and cyanuric acid in foodstuffs from the United States and their implications for human exposure [J]. Environment International, 2019, 130: 104950.
- [5] BARNES K A, SINCLAIR C R, WATSON D H. Chemical migration and food contact materials [M]. London: Woodhead Publishing Limited, 2007: 346-370
- [6] NEW L S, CHAN E C Y. Evaluation of BEH C18, BEH HILIC, and HSS T3 (C₁₈) column chemistries for the UPLC-MS-MS analysis of glutathione, glutathione disulfide, and ophthalmic acid in mouse liver and human plasma[J]. Journal of Chromatographic Science, 2008, 46(3): 209-214.
- [7] 金玉娥, 徐骞, 薛黎明, 等. 亲水作用色谱结合超高效液相色谱-三重四级杆质谱法检测蔬菜水果中8种高极性农药残留[J]. 环境与职业医学, 2022, 39(6): 701-707.
- JIN Y E, XU Q, XUE L M, et al. Determination of eight high polar pesticide residues in vegetables and fruits by hydrophilic interaction liquid chromatography combined with ultra-performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry[J]. Journal of Environmental & Occupational Medicine, 2022, 39(6): 701-707.
- [8] 王媛, 顾惠新, 路鑫, 等. 以亲水作用色谱为核心的液相色谱联用技术及其应用研究[J]. 色谱, 2008, 26(6): 649-657.
- WANG Y, GU H X, LU X, et al. Development of hydrophilic interaction chromatographic hyphenated techniques and their applications[J]. Chinese Journal of Chromatography, 2008, 26(6): 649-657.
- [9] CHUNG S W C, CHAN B T P. Validation and use of a fast sample preparation method and liquid chromatography-tandem mass spectrometry in analysis of ultra-trace levels of 98 organophosphorus pesticide and carbamate residues in a total diet study involving diversified food types[J]. Journal of Chromatography A, 2010, 1217(29): 4815-4824.
- [10] PANUWET P, WADE E L, NGUYEN J V, et al. Quantification of cyanuric acid residue in human urine using high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry[J]. Journal of Chromatography B, 2010, 878(28): 2916-2922.
- [11] KMELLÁR B, FODOR P, PAREJA L, et al. Validation and uncertainty study of a comprehensive list of 160 pesticide residues in multi-class vegetables by liquid chromatography-tandem mass spectrometry[J]. Journal of Chromatography A, 2008, 1215(1-2): 37-50.
- [12] SATHYANARAYANA S, FLYNN J T, MESSITO M J, et al. Melamine and cyanuric acid exposure and kidney injury in US children[J]. Environmental Research, 2019, 171: 18-23.
- [13] FERRER C, LOZANO A, AGÜERA A, et al. Overcoming matrix effects using the dilution approach in multiresidue methods for fruits and vegetables [J]. Journal of Chromatography A, 2011, 1218(42): 7634-7639.
- [14] 李红娥. 液质联用小体积进样减弱基质效应的研究和果蔬中农药多残留测定[D]. 济南: 山东大学, 2016.
- LI H E. Study on weakening matrix effect by liquid chromatography-mass spectrometry with small volume injection and determination of pesticide residues in fruits and vegetables[D]. Jinan: Shandong University, 2016.