

UPLC-MS-MS 同时测定茶油中 8 种儿茶素类物质

黄彪, 刘文静, 吴建鸿, 艾宇真, 潘葳

(福建省农业科学院农业质量标准与检测技术研究所, 福建福州 350003)

摘要:利用超高效液相色谱-串联质谱建立了一种可以同时检测茶油 8 种儿茶素类物质的分析方法。使用 Waters T3 C18 色谱柱(250 mm×4.6 mm, 5 μm), 以 0.1% (V/V) 甲酸水溶液和甲醇和为流动相进行梯度洗脱, 正扫描方式下多反应监测(MRM)模式测定。在优化的条件下, 8 种儿茶素类物质线性关系良好 ($r^2=0.9966\sim0.9995$), 方法检出限为 0.2~1.1 μg/L。在不同浓度水平的添加平均加标回收率为 76.4%~93.4%之间, 相对标准偏差 3.0%~8.9%。应用本方法可以检测出茶油中儿茶素(C)、表儿茶素表儿茶素(EC)、表没食子儿茶素(EGC)、表儿茶素没食子酸酯(EGCG)、表没食子儿茶素没食子酸酯(EGCG)等的含量。结果表明, 茶油中表没食子儿茶素没食子酸酯(EGCG)、表没食子儿茶素(EGC)、表儿茶素没食子酸酯(EGCG)的含量相对较高。本方法结果准确可靠, 方法快速, 简单易行, 可为茶油中儿茶素类物质的检测提供参考。

关键词: UPLC-MS-MS; 茶油; 儿茶素类物质

文章编号: 1673-9078(2019)03-249-255

DOI: 10.13982/j.mfst.1673-9078.2019.3.037

Determination of 8 Catechins Phenolic Compounds in *Camellia* Oil with Ultra High Performance Liquid Chromatography Tandem Mass Spectrometry

HUANG Biao, LIU Wen-jing, WU Jian-hong, AI Yu-zhen, PAN Wei

(Institute of Quality Standards & Testing Technology for Agro-Products, Fujian Academy of Agricultural Sciences, Fuzhou 350003, China)

Abstract: A rapid method was developed for the simultaneous determination of catechins phenolic compounds in *Camellia* oil by ultra high performance liquid chromatography coupled with tandem mass spectrometry (UPLC-MS/MS). The compounds were separated on a waters T3 C18 column with 0.1% (V/V) formic acid aqueous solution and methanol as mobile phase by gradient elution, then analyzed by positive electrospray ionization tandem mass spectrometry under multiple reaction monitoring (MRM) mode. Under the optimal conditions, 8 catechins phenolic compounds showed good linearity over tested concentration ranges with the correlation coefficients from 0.9966 to 0.9995 (r^2). The limits of detection (LOD) were in the range of 0.2~1.1 μg/L. The average recoveries of different levels ranged from 76.4% to 93.4% with the relative standard deviations (RSDs) from 3.0% to 8.9%. This method was employed to detect 8 phenolic compounds including C, EC, EGC, ECG, EGCG in *Camellia* oil. The results indicated that the EGCG is much higher in *Camellia* oil. The method was accurate and reliable, quick and suitable for the analysis of phenols in edible oils.

Key words: UPLC-MS-MS; *Camellia* oil; catechins

油茶籽油中含有丰富的茶多酚类物质, 大量的研究表明, 天然酚类物质具有良好的抗氧化作用, 相比与人工合成抗氧化剂更安全可靠, 具有抗衰老、抑菌

收稿日期: 2018-11-27

基金项目: 福建省农科院农产品质量安全创新团队项目 (STIT2017-1-12);

福建省农科院博士基金项目 (DC2017-3)

作者简介: 黄彪 (1981-), 男, 博士, 助理研究员, 研究方向: 农产品质量与安全研究

通讯作者: 潘葳 (1970-), 女, 副研究员, 研究方向: 农产品质量安全与检测技术研究

和预防心血管疾病等作用^[1-4]。另外, 相关报道也分析了茶籽油中所含有的多酚类物质的抗氧化作用机理, 结果表明茶多酚可增强茶籽油的抗氧化性, 延缓油类的变质^[5-7], 延长其储存期。因此研究茶油中的酚类物质, 对于开展茶油的品质与营养功能评价有一定的意义。

以往对茶油中酚类的研究报道大多为生育酚的测定, 对茶油中的酚类物质如酚酸、儿茶素类成分等的研究报道较少。国外对橄榄油中酚类物质含量的研究较多, 主要是利用液相色谱法进行分析, 液相色谱-

质谱法应用的较少。如 Andjelkovic 等^[8]采用高效液相色谱法测定了橄榄油中 8 种主要的酚类化合物。Gomez-rico 等^[9]则运用液相色谱用以内标法测定了橄榄油中的的环烯醚萜类衍生物。国内罗凡^[10]等用固相萃取/高效液相色谱法测定了茶油中的多种天然酚类物质, 主要包括羟基酪醇、儿茶酸、4-羟基苯甲酸等 9 种多酚类物质。张良晓^[11]等则用高效液相色谱-串联质谱法测定紫苏籽油中 11 种酚类化合物。

LC-MS 联用技术是将 HPLC 对复杂样品的高分离能力与 MS 的高选择性和高灵敏度有效结合起来, 可迅速地分析确定成分的结构, 其不仅具有准确、灵敏和快速等特点, 且适用于基质复杂、干扰严重的痕量化合物的分析, 同时在合适的碰撞解离模式下, 可以得到化合物碎片离子的质量, 从而进一步确证化合物的结构和裂解规律, 定性准确度高。因此其在农产品质量安全、天然产物鉴定、药物检测、食品检测和环境监测等领域具有广阔的用途, 并且随着各种离子化技术的不断发展, LC-MS 联用技术必将发挥越来越重要的作用。基于茶油中儿茶素类物质的系统分析尚未见报道, 本研究建立了 UPLC-MS-MS 法同时检测茶油中 8 种儿茶素类物质的分析方法, 比较了茶油中该类物质的含量情况, 以期对茶油活性成分利用、油脂储藏以及其对人体健康等方面作用的研究提供科学合理的参考依据。

1 材料与方法

1.1 仪器、试剂与材料

ACQUITY UPLC H-Class 超高效液相色谱仪, 美国 Waters 公司; Xevo TQ-S 三重四极杆质谱, Waters 公司; XW-80A 旋涡混合器, 上海医科大学仪器厂; 超声波清洗器, 昆山市超声仪器有限公司; Millipore

超纯水设备, 美国 Millipore Qirect-Q5、离心机, 美国贝克曼库尔特有限公司; PHILIPS 搅拌机, 珠海经济特区飞利浦家庭电器有限公司; 水浴恒温振荡器, 常州朗越仪器有限公司 SYG-2。

甲醇(色谱纯), Fisher 公司; 乙腈(色谱纯), Fisher 公司; 乙酸铵(LC-MS 级), Waters 公司; 甲酸(LC-MS 级), Waters 公司; 超纯水(Millipore 超纯水机制备)、微孔滤膜(0.22 μm), 天津津腾公司; 儿茶素(C)、表儿茶素表儿茶素(EC)、表没食子儿茶素(EGC)、表儿茶素没食子酸酯(ECG)、表没食子儿茶素没食子酸酯(EGCG)、没食子儿茶素没食子酸酯(GCG)等标准品(纯度>97%)购于南京道斯夫生物技术股份有限公司; 其他试剂均为国产分析纯。标准溶液的配制: 精确称取各标准物质 10.0 mg, 甲醇溶解定容至 10 mL, 即得浓度为 1000 $\mu\text{g/mL}$ 的各标准品溶液单标母液, 备用。用于制作标准工作曲线的不同浓度的混标, 需现配现用。

1.2 色谱、质谱条件

色谱条件: Waters T3 C18 柱子, 色谱柱($\Phi 1.8 \mu\text{m}$, 2.1 mm $\times$ 50 mm); 柱温 30.0 $^{\circ}\text{C}$, 流速 0.2 mL/min; 进样量 4 μL ; 流动相 A: 0.1% (V/V) 甲酸水溶液, 流动相 B: 乙腈; 梯度洗脱: 0~3 min, 90%~70% A; 3~5 min, 维持 70% A; 5~8 min, 70%~30% A; 8~10 min, 30%~90% A。质谱条件: 电喷雾离子化正离子 (ESI^+) 模式, 扫描模式: 多反应监测(MRM)扫描方式; 毛细管电压: 2.5 kV, 脱溶剂气流选择 N_2 , 流速设为 800 L/h, 脱溶剂温度 500 $^{\circ}\text{C}$; 锥孔气流: N_2 , 流速 50 L/h; 离子源温度: 150 $^{\circ}\text{C}$; 雾化气压力, 0.28 MPa; 碰撞气体: 氩气。以 100 $\mu\text{g/L}$ 的 8 种儿茶素类物质的单标溶液进行质谱参数优化, 确定特征母离子和子离子, 优化后相关质谱参数见表 1。

表 1 儿茶素类化合物的质谱参数条件

Table 1 LC-MS/MS parameters for phenolic compounds

名称	母离子(m/z)	保留时间/min	子离子(m/z)	锥孔电压/V	碰撞能量/eV
C	291.2	2.55	139.0*,123.0	30	12,14
EC	291.2	3.04	139.0*,123.0	30	12,14
EGC	307.2	2.49	139.0*,163.0	32	16,18
ECG	443.2	3.32	123.0*,139.0	32	20,24
EGCG	459.2	2.85	289.1*,139.0	36	16,26
GCG	459.2	3.05	289.1*,139.0	36	16,26
GC	307.2	1.87	139.0*,163.0	32	16,18
CG	443.2	3.42	123.0*,139.0	32	20,24

注: C: 儿茶素, EC: 表儿茶素, EGC: 表没食子儿茶素, ECG: 表儿茶素没食子酸酯, EGCG: 表没食子儿茶素没食子酸酯, GCG: 没食子儿茶素没食子酸酯, GC: 没食子儿茶素, CG: 儿茶素没食子酸酯; *定量离子。下表同。

1.3 样品前处理

样品的前处理参考罗凡^[10]及吕建云^[12]的方法。称取茶油样品 50 g 置于 250 mL 锥形瓶, 分别加入甲醇 50 mL 提取 3 次, 共 1 h, 期间剧烈振荡。合并甲醇提取液, 分别用 50 mL 正己烷萃取 3 次, 除去脂溶性物质, 弃去正己烷萃取层, 浓缩定容至 100 mL。取定容后的甲醇溶液 2.0 mL 置于 10 mL 离心管, 加入 50 mg C₁₈, 涡旋 30 s, 8000 r/min 离心 1 min, 取上清液过 0.22 μ m 滤膜, 进样量 4 μ L 进行 LC-MS/MS 检测。

1.4 数据统计分析

数据的统计分析在 Waters 三重四极杆液相色谱串联质谱仪 MassLynx 软件上进行处理, 茶油样品中儿茶素类物质的检测采用标法定量。加标回收率实验每种物质重复实验 6 次, 进行精密度计算。

2 结果与分析

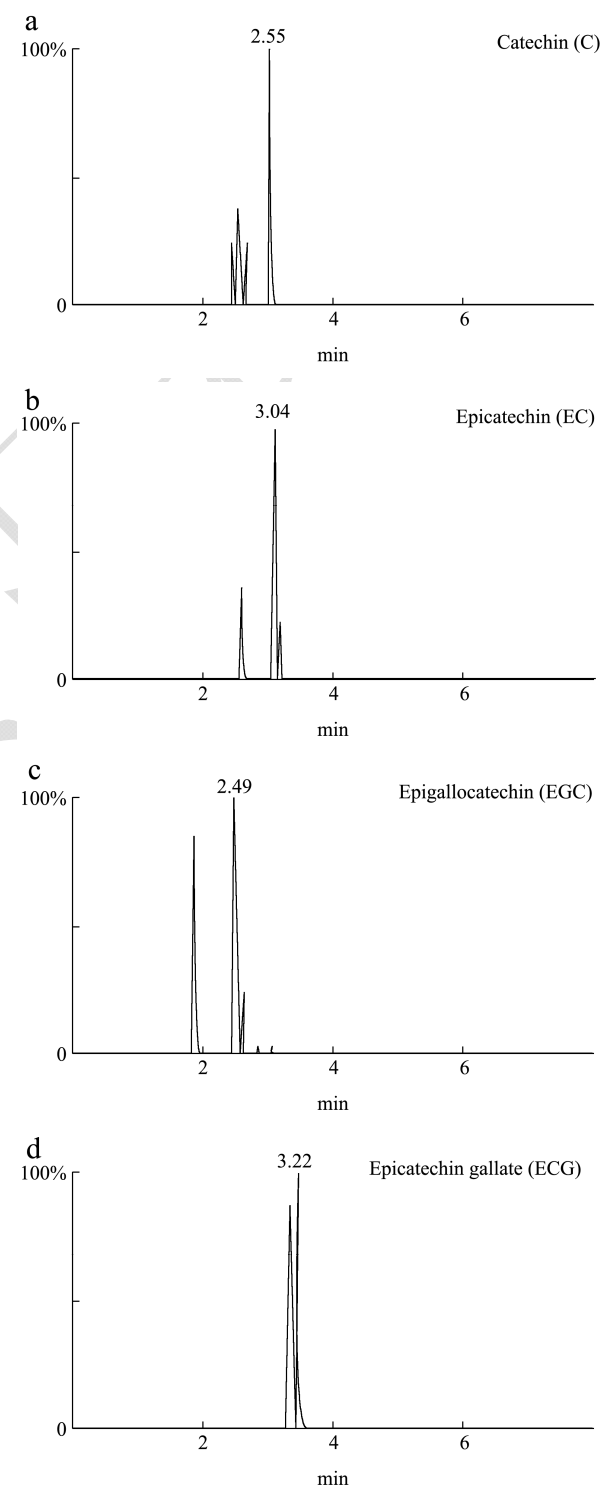
2.1 质谱条件的优化

Waters 三重四极杆质谱条件的优化主要包括选择各化合物的母离子、子离子、锥孔电压(CV)、碰撞能量(CE)等几个方面的参数确定。配制 100 μ g/L 的 8 种儿茶素类化合物单标溶液, 采用电喷雾正离子模式(ESI⁺)模式和负离子模式(ESI⁻)通过自动调谐的方式分别对 8 种儿茶素化合物单标溶液进行母离子、子离子扫描。流动相 A (0.1%甲酸水溶液): 流动相 B(甲醇)=50%:50%, 利用 Waters 三重四极杆质谱软件对子离子、碎裂电压、碰撞能量等参数进行优化, 发现正离子扫描模式下目标离子的响应信号高于负离子模式, 因此选择正离子模式进行后续实验。优化结果建立的多重反应监测(MRM)质谱分析参数见表 1。

2.2 色谱条件的优化

在实验的过程中, 比较了甲醇-水和乙腈-水两个流动相体系对分离的影响。实验结果表明, 在甲醇-水体系中, 通过添加甲酸能够有效改善部分目标物存在的峰拖尾现象, 发现添加 0.1%的甲酸到水溶液中, 对峰形的改善效果较好, 其原因是酸的加入可使单个酚类的电离受到抑制, 以中性分子的形态存在, 极性减弱, 增强在固定相上的保留。在 A (0.1%甲酸水溶液)-B(甲醇)作为流动相时, 通过调整梯度洗脱程序, 峰形和分离度基本达到要求, 且几组同分异构体如儿茶素(C)与表儿茶素表儿茶素(EC), 表没食子儿茶素没

食子酸酯(EGCG)与没食子儿茶素没食子酸酯(GCG)以及表没食子儿茶素(EGC)与没食子儿茶素(GC)等都能分离开来。所以实验中采用 A (0.1%甲酸水溶液)-流动相 B(甲醇)作为流动相进行梯度洗脱, 以利于后续的实验进行定性、定量。优化的实验结果发现, 8 种目标化合物在 10 min 内全部出峰, 分析时间短, 分离度较好, 8 种儿茶素酚类化合物的多反应监测色谱图见图 1。



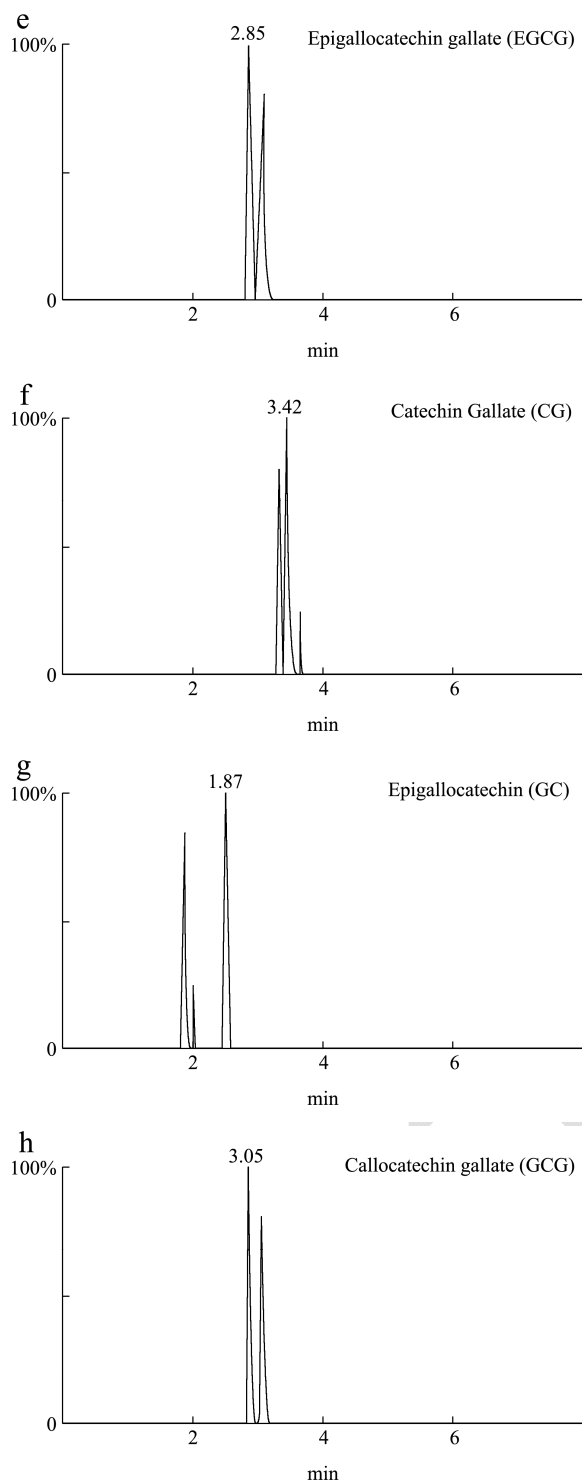


图1 8种儿茶素酚类化合物多反应监测色谱图

Fig.1 Multiple reaction monitoring(MRM) chromatograms of 8 phenolic compounds

2.3 色谱柱的选择

在实验中比较了选用 Waters BEH C18 柱和 Waters T3 C18 柱对儿茶素化合物的保留和分离情况。实验中发现 Waters T3 C18 对极性的儿茶素类化合物的保留效果好,更适用于不同儿茶素化合物甚至异构

体的分离,而且用 Waters T3 C18 时在甲醇-水作为流动相时各化合物具有更窄的峰型,因此实验中选用 Waters T3 C18 作为分离柱。

2.4 提取溶剂的选择

油类基质有较多的脂质,脂质在一定程度上与常用的提取溶剂甲醇容易互溶,而在乙腈中的溶解较差。茶油中既有脂质,又有甾醇、维生素儿茶素等物质。但作为一种质子性溶剂甲醇更容易将基质中强极性的醇、有机酸或者多酚类物质等提取出来。甲醇既能够和油脂中的脂质很好的互溶,对于极性较大的有机酸、植物甾醇及儿茶素等化合物都有很好的溶解性。因此在实验中采用甲醇作为提取剂,增加油脂在甲醇中的流动性,使得油脂与甲醇很好的混溶,以利于茶油中儿茶素类化合物的提取。在提取完毕后,通过加入正己烷使得油脂与甲醇分离,而儿茶素类化合物保留在甲醇中,达到既去除油脂又提取了目标化合物的目的。因此,实验采用甲醇对油脂样品中儿茶素类化合物进行提取。

2.5 吸附剂的选择

在将茶油中的儿茶素类物质被甲醇提取出来后,通过甲醇与正己烷间的液液萃取,可以通过正己烷将油脂除去。而甲醇在提取茶油中儿茶素类物质的同时也可能将茶油中的甾醇、色素、维生素等物质提取出来。萃取后通过添加吸附剂可以将色素、维生素等进一步去除,增加净化效果,常用的吸附剂有 PSA 和 C18, PSA 的化学结构中含有强极性的氨基基团,较容易与基质中的脂肪酸、糖类、醇等分子中的羟基形成共价键氢键而将其除去,而 C18 是在硅胶末端键合十八烷基,对非极性或极性小的分子有较好的吸附作用,因此易吸附非极性物质如色素、维生素和脂肪等。本实验在液液萃取后,在提取液中加入 C18 进一步将可能存在的极性较小的色素、维生素等除去。PSA 作为一种良好的吸附剂在本实验中不能应用;如果加入 PSA, PSA 能够除去极性较大的分子,本实验中的待分析物儿茶素类物质大都含有酚羟基,也容易被去除,会影响实验的结果。在本实验中,待分析物能够在 1.5 min 到 3.5 min 内出峰,然而在实验也发现,在 6 min 后色谱上出现其他的物质拖尾,可能是由于有其他的中等极性的物质在反向色谱柱上更长时间的保留而后出峰,因此提取茶油中的酚类物质的方法仍需进一步改进。

2.6 方法评价

表 2 8 种儿茶素类化合物的线性范围、线性方程、相关系数及检出限

Table 2 LC-MS/MS method validation				
名称	线性范围/(μg/L)	线性方程	相关系数(r^2)	检出限/(μg/L)
C	1~500	$y=4283.9x+168.3$	0.9991	0.3
EC	1~500	$y=11691.6x+1316.7$	0.9988	0.2
EGC	2~500	$y=11037.5x-8523.9$	0.9995	0.5
ECG	1~500	$y=5494.2x+386.3$	0.9989	0.2
EGCG	5~500	$y=5478.6x-5495.0$	0.9990	1.1
GCG	5~500	$y=1213.0x-860.7$	0.9985	0.8
GC	2~500	$y=8946.59x-5305.8$	0.9966	0.8
CG	2~500	$y=3196.29x+593.633$	0.9973	0.4

表 3 基质中 8 种儿茶素类化合物的加标回收率和精密度值

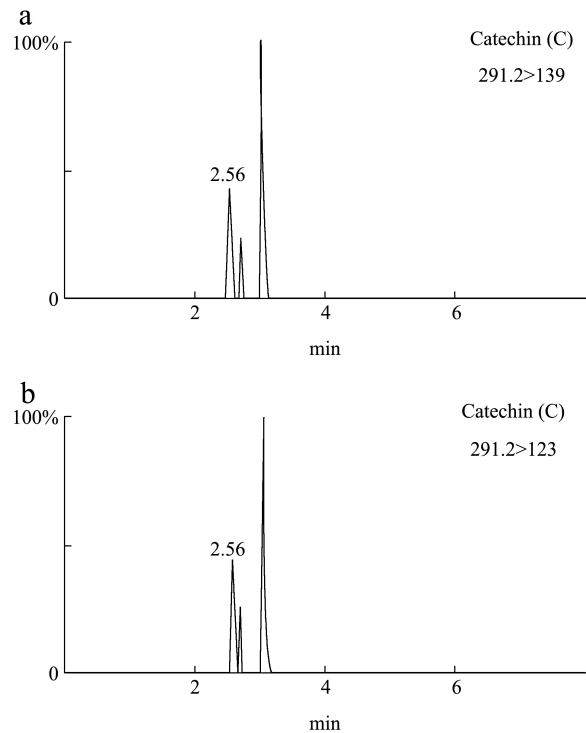
Table 3 Recovery and precision of the method (n=6)			
名称	添加浓度/(μg/g)	加标回收率(R%)	标准偏差(RSD%)
C	0.05	76.4	7.5
	0.2	82.1	4.0
EC	0.05	77.2	6.8
	0.2	88.9	6.7
EGC	0.05	80.9	8.7
	0.2	92.9	6.9
ECG	0.05	85.7	5.6
	0.2	90.8	3.0
EGCG	0.05	80.1	4.9
	0.2	93.4	8.9
GCG	0.05	86.1	6.2
	0.2	90.4	5.9
GC	0.05	79.1	6.6
	0.2	91.2	5.9
CG	0.05	80.6	4.9
	0.2	92.5	3.7

根据调谐的结果及各目标物质的响应信号，在选定的超高效液相色谱-串联质谱条件下建立标准工作曲线。在优化条件下，考察了 8 种儿茶素类化合物的线性范围，相关系数及在基质中的加标回收率情况。结果显示，在各自的范围内，目标化合物的标准曲线标准溶液浓度(x, μg/L)与对应的峰面积(y)呈良好线性关系，相关系数(r^2)为 0.9966~0.9995。从结果可知，在正离子扫描模式下，表儿茶素(EC)、表没食子儿茶素(EGC)都有很好的相应。依据特征离子色谱峰色谱信号的 3 倍信噪比 ($S/N\geq3$) 确定方法的检出限，方法的检出下限为 0.2~1.1 μg/L 之间(表 2)。根据各目标物的响应信号情况及线性范围，对 8 种儿茶素化合物在茶油基质中进行了高、低浓度的加标，相应的平均

回收率为 76.4%~93.4%，相对标准偏差(RSDs)在 3.0%~8.9%之间(表 3)，方法符合的检测要求。

2.7 实际样品的检测

采用本方法对茶籽油实际样品进行检测，每个样品重复测定 3 次，其中 5 种儿茶素酚类化合物能够检出，其含量分别是：儿茶素(C)0.15 μg/g，表儿茶素(EC)0.053 μg/g，表没食子儿茶素(EGC)0.23 μg/g，表儿茶素没食子酸酯(ECG)0.11 μg/g，表没食子儿茶素没食子酸酯(EGCG)0.60 μg/g，茶籽油中各儿茶素物质的含量见表 4。样品中各物质的多反应检测色谱图如图 2 所示。在茶油所含的儿茶素类化合物中，表没食子儿茶素没食子酸酯(EGCG)的含量最高，而其他的儿茶素类物质没食子儿茶素没食子酸酯(GCG)、没食子儿茶素(GC)、儿茶素没食子酸酯(CG)未能检出。



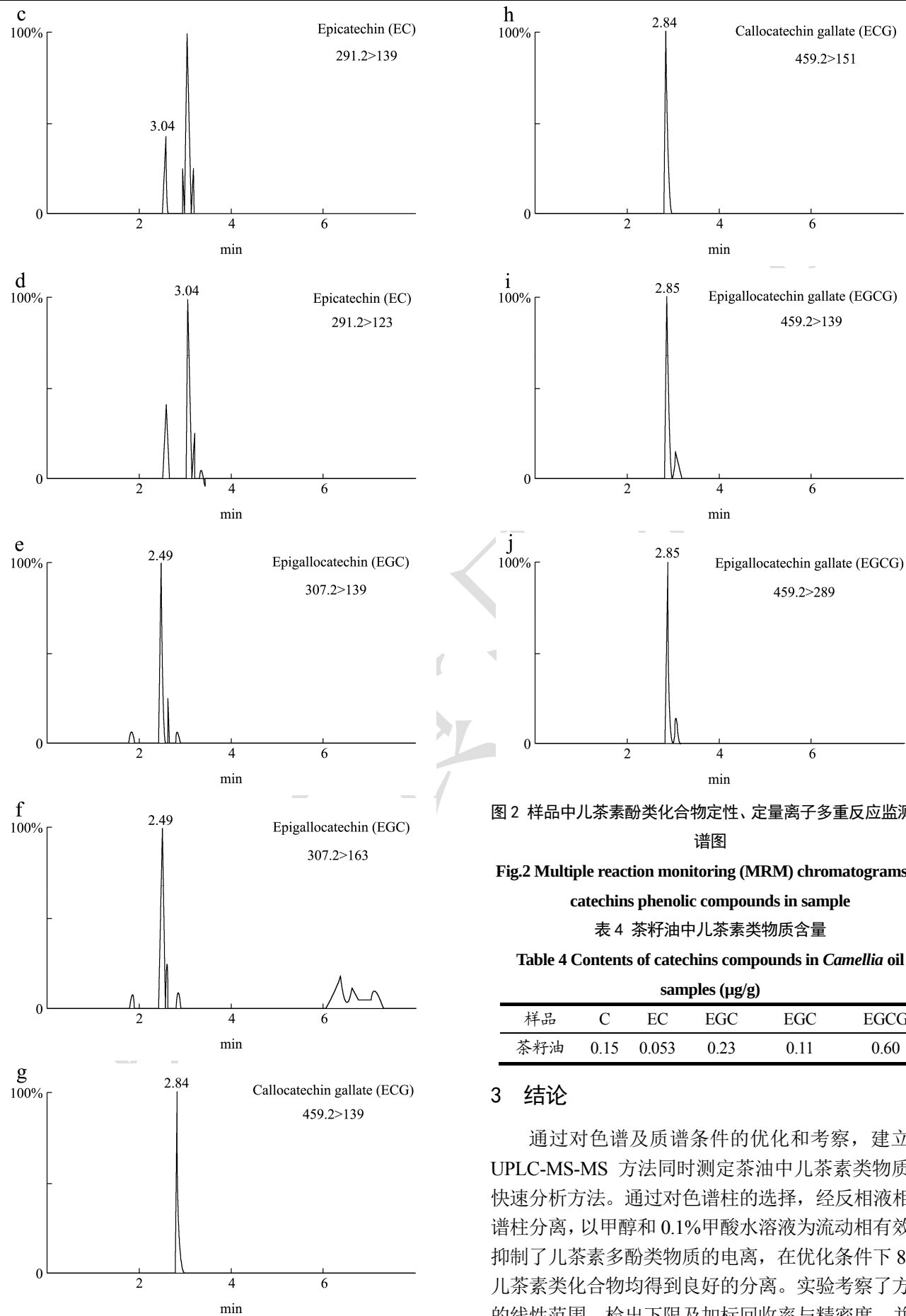


图2 样品中儿茶素酚类化合物定性、定量离子多重反应监测色谱图

Fig.2 Multiple reaction monitoring (MRM) chromatograms of catechins phenolic compounds in sample

表4 茶籽油中儿茶素类物质含量

Table 4 Contents of catechins compounds in Camellia oil samples (μg/g)					
样品	C	EC	EGC	EGC	EGCG
茶籽油	0.15	0.053	0.23	0.11	0.60

3 结论

通过对色谱及质谱条件的优化和考察，建立了UPLC-MS-MS方法同时测定茶油中儿茶素类物质的快速分析方法。通过对色谱柱的选择，经反相液相色谱柱分离，以甲醇和0.1%甲酸水溶液为流动相有效地抑制了儿茶素多酚类物质的电离，在优化条件下8种儿茶素类化合物均得到良好的分离。实验考察了方法的线性范围、检出下限及加标回收率与精密度，并将

方法用于茶油的测定。本方法前处理操作简单,检测迅速,可为茶油中儿茶素类物质的检测提供参考,为茶油的品质与营养功能的进一步研究提供了科学依据,对于茶油营养功能的评价研究具有一定的参考意义。

参考文献

- [1] Soler A, Romero M P, Macia A, et al. Digestion stability and evaluation of the metabolism and transport of olive oil phenols in the human small-intestinal epithelial Caco-2 /TC7 cell line [J]. Food Chem., 2010, 119(2):703-714
- [2] Espinosa C, Lopez-Jimenez J A, Cabrera L, et al. Protective effect of white tea extract against acute oxidative injury caused by adriamycin in different tissues [J]. Food Chemistry, 2012, 134(4): 1780-1785
- [3] Yousaf S, Butt M S, Suleria H A R, et al. The role of green tea extract and powder in mitigating metabolic syndromes with special reference to hyperglycemia and hypercholesterolemia [J]. Food & Function, 2014, 5(3): 545-556
- [4] Senanayake S. Green tea extract: Chemistry, antioxidant properties and food applications-a review [J]. Journal of Functional Foods, 2013, 5(4): 1529-1541
- [5] 袁英姿,曹清明,钟海雁,等.油茶籽多酚对茶油的抗氧化性的研究[J].食品工业科技,2009,30(6):103-105
YUAN Ying-zi, CAO Qing-ming, ZHONG Hai-yan, et al. Study on the antioxidant effect of *Camellia oleifera* seed polyphenols on tea oil [J]. Technology in Food Industry, 2009, 30(6): 103-105
- [6] 梁俊玉,周纲,刘志杰,等.茶多酚对植物油抗氧化的研究与应用[J].现代农业科技,2009,15:348-349
LIANG Jun-yu, ZHOU Gang, LIU Zhi-jie, et al. Study and application of tea polyphenols on antioxidation of vegetable oil [J]. Modern Agricultural Science and Technology, 2009, 15: 348-349
- [7] 潘素君,李向荣,刘仲华.油溶性茶多酚抗氧化作用的研究[J].茶叶通讯,2008,35(3):11-13
PAN Su-jun, LI Xiang-rong, LIU Zhong-hua. Studies on antioxidation of oil soluble tea polyphenols [J]. Tea Newsletter, 2008, 35(3): 11-13
- [8] Gomez-Rico A, Salvador M D, La Greca M, et al. Phenolic and volatile compounds of extra virgin olive oil (*Olea europaea* L. Cv. Cornicabra) with regard to fruit ripening and irrigation management [J]. J Agric. Food Chem., 2006, 54(19): 7130 -7136
- [9] Andjelkovic M, Van Camp J, Pedra M, et al. Correlations of the phenolic compounds and the phenolic content in some Spanish and French olive oils [J]. J Agric. Food Chem., 2008, 56(13): 5181-5187
- [10] 罗凡,费学谦,方学智,等.固相萃取/高效液相色谱法测定茶油中的多种天然酚类物质[J].分析测试学报,2011,30(6): 696-700
LUO Fan, FEI Xue-qian, FANG Xue-zhi, et al. Determination of natural phenolic compounds in tea oil by solid phase extraction / high performance liquid chromatography [J]. Journal of Analytical testing, 2011, 30 (6): 696-700
- [11] 吴晓,马飞,张良晓,等.高效液相色谱-串联质谱法测定紫苏籽油中 11 种酚类化合物[J].分析化学,2015,10:1600-1606
WU Rao, MA Fei, ZHANG Liang-xiao, et al. Determination of 11 phenolic compounds in *Perilla* seed oil by high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Analytical Chemistry, 2015, 10:1600-1606
- [12] 吕建云,孙丰霞,耿越.山茶油中四种功能性成分的测定[J].食品安全质量检测学报,2014,5(6):1641-1646
LYU Jian-yun, SUN Feng-xia, GENG Yue. Determination of four functional constituents in *Camellia* oil [J]. Journal of Quality Inspection of Food Safety, 2014, 5(6): 1641-1646
- (上接第 269 页)
- [43] GB 5084-2005,农田灌溉水质标准[S]
GB 5084-2005, Standard for Irrigation Water Quality [S]
- [44] GB 15618-1995,土壤环境质量标准[S]
GB 15618-1995, Environmental Quality Standard for Soils [S]
- [45] GB 2762-2012, 食品安全国家标准食品中污染物限量[S]
GB 2762-2012, National Food Safety Standard - Contaminants Limit in Foods [S]
- [46] 丁桑岚.环境评价概论[M].北京:化学工业出版社,2001
DING Sang-lan. Introduction of Environmental Assessment [M]. Beijing: Press of Chemical Industry, 2001