

# 基于BSTFA衍生/GC-MS与DLLME/HPLC的 老化变压器油中短碳链羧酸的分析

李海燕\*, 华佳, 王逸凡, 杨珍, 李吟霜

(中南民族大学 化学与材料科学学院, 湖北 武汉 430074)

**摘要:** 以N, O-双(三甲基硅烷基)三氟乙酰胺(BSTFA)为硅烷化试剂, 建立了衍生化气相色谱-质谱(GC-MS)测定老化变压器油中短链羧酸的定性分析方法; 并建立了分散液液微萃取/高效液相色谱(DLLME/HPLC)测定其中甲酸、乙酸和糠酸的定量分析方法。结果表明: 以乙腈为萃取剂, BSTFA为硅烷化试剂, 60℃下反应60 min后进行GC-MS测定, 在老化变压器油中检出甲酸、乙酸和糠酸等14种短碳链羧酸。以水为萃取剂对标准油样中的甲酸、乙酸和糠酸进行萃取, 取水萃取相直接进行HPLC测定。在最佳条件下, 甲酸、乙酸在0.05~50.0 mg/L及糠酸在0.01~2.0 mg/L质量浓度范围内线性良好, 相关系数( $r$ )大于0.998, 检出限(LOD)分别为36.1、47.3、7.0  $\mu\text{g/L}$ , 相对标准偏差(RSD)分别为2.4%、3.3%和3.6%, 3种羧酸的富集倍数为8~10倍。老化油样的加标回收率为91.7%~107%。该法简单有效, 为变压器油纸绝缘老化特征量的正确使用和羧酸类物质对油纸绝缘老化影响的研究提供了数据。

**关键词:** 硅烷化衍生; 气相色谱-质谱(GC-MS); 短碳链羧酸; 分散液液微萃取; 高效液相色谱; 变压器油

中图分类号: O657.7; O622.5 文献标识码: A 文章编号: 1004-4957(2019)04-0385-06

## Analysis of Short-chain Carboxylic Acids in Aged Transformer Oil Based on BSTFA Derivatization/GC-MS and DLLME/HPLC

LI Hai-yan\*, HUA Jia, WANG Yi-fan, YANG Zhen, LI Yin-shuang

(College of Chemistry and Materials Science, South-Central University for Nationalities,  
Wuhan 430074, China)

**Abstract:** An analytical method was established for the confirmation and quantitation of short-chain carboxylic acids in aged transformer oil by gas chromatography-tandem mass spectrometry (GC-MS) and high performance liquid chromatography with dispersive liquid-liquid microextraction (DLLME/HPLC). The short-chain carboxylic acids in aged transformer oil were detected by GC-MS using N, O-bis-(trimethylsilyl)-trifluoroacetamide (BSTFA) as silane derivatization reagent, and formic acid, acetic acid and furoic acid in transformer oil were quantified by DLLME/HPLC. After extracting carboxylic acid in transformer oil with acetonitrile as extractant, BSTFA was added into the extraction phase of acetonitrile for silylation derivatization. After 60 min of the reaction at 60  $^{\circ}\text{C}$ , the samples were determined by GC-MS. Results showed that 14 kinds of short-chain carboxylic acids were detected in heat-aged transformer oil, including formic acid, acetic acid and furoic acid. The formic acid, acetic acid and furoic acid in the standard oil sample were extracted with water as extractant which was directly taken for injection. The calibration curves of formic acid, acetic acid and furoic acid in the transformer oil were linear in the ranges of 0.05-50.0 mg/L, 0.05-50.0 mg/L and 0.01-2.0 mg/L, respectively, with correlation coefficients ( $r$ ) more than 0.998. The limits of detection (LOD) of the method were 36.1, 47.3 and 7.0  $\mu\text{g/L}$ , with relative standard deviations (RSD) of 2.4%, 3.3% and 3.6%, respectively. The enrichment factors for the three carboxylic acids were within the range of 8-10 times. The recoveries for the aged oil samples ranged from

91.7% to 107%. The proposed method is simple and effective, and provides analytical data for the correct use of aged characteristic quantity of transformer oil-paper insulation and study on effect of carboxylic acid on aged oil-paper insulation.

**Key words:** silylation derivatization; gas chromatography – tandem mass spectrometry (GC – MS); short-chain carboxylic acid; dispersive liquid – liquid microextraction (DLLME); high performance liquid chromatography (HPLC); transformer oil

电力变压器是电网安全运行的重要设备,其绝缘故障主要由变压器的绝缘系统老化所致。开展运行变压器绝缘系统老化状态的评估,并及时采取应对措施,可避免电网突发事故给国家和企业造成巨大损失。在变压器绝缘系统中,因绝缘纸无法更换,故常以绝缘纸的老化特征量评估运行变压器绝缘系统的老化状态。糠醛为绝缘纸的降解产物,在变压器油中具有积累效应,且可在线检测,因此我国现行的电力行业标准和美国的 IEC 标准均将变压器油中糠醛含量作为老化特征量来评估变压器绝缘纸的老化状况<sup>[1]</sup>。但应用中发现,在变压器绝缘纸老化后期变压器油中的糠醛含量反而下降,这与绝缘纸持续老化的状态严重不符。绝缘纸老化后期,糠醛被氧化生成糠酸等物质的反应速度大于绝缘纸降解生成糠醛的速度是导致变压器油中糠醛含量不增反降的最主要原因<sup>[2-3]</sup>。为寻找新的可在线监测的纸绝缘老化特征量,国内外学者对变压器绝缘纸老化降解并溶于变压器油中的特征产物开展了大量研究,其中变压器油酸值的变化和绝缘纸降解溶于变压器油中的特征产物甲醇和乙醇作为新的潜在老化特征量备受关注<sup>[4-7]</sup>。根据甲醇和乙醇的分子结构,在变压器绝缘老化过程中,变压器油中甲醇和乙醇均可能被继续氧化生成甲酸和乙酸。绝缘纸老化降解产生的羧酸具有碳链短、极性大和酸性强的特点,是影响变压器油中酸值变化的主要因素<sup>[8-10]</sup>。根据相似相溶原理,极性较强的短链羧酸更倾向于吸附在主成分为纤维素的绝缘纸上,并可催化纤维素分子化学键的断裂,从而降解生成更多的羧酸。绝缘纸老化后期,变压器油中酸值的增速加快现象反映了绝缘纸的老化劣化加速<sup>[11-12]</sup>。开展老化变压器油中短链羧酸的成分研究,建立变压器油中甲酸、乙酸和糠酸含量的测定方法,有助于从反应机理上探讨变压器油中酸值变化与绝缘纸老化状态之间的关系,并可为新的潜在老化特征量的建立以及现有老化特征量糠醛的正确使用提供技术积累。

目前,国内外对短碳链羧酸类物质的分析报道较多,常用方法是将羧酸衍生化后再进行气相色谱-质谱(GC-MS)测定<sup>[13]</sup>。N, O-双(三甲基硅烷基)三氟乙酰胺(BSTFA)作为常用的硅烷化试剂,具有衍生化率高、检测简便的优点<sup>[14-16]</sup>。文献调研发现,油基质中羧酸含量的测定常采用液液微萃取结合高效液相色谱(LLME/HPLC)法。Khezeli 等<sup>[17]</sup>以低共熔溶剂为萃取剂,采取超声波辅助-液液微萃取法从植物油中萃取阿魏酸、咖啡酸和肉桂酸用于 HPLC 测定。本课题组<sup>[18]</sup>以水为萃取剂,采用分散液液微萃取/高效液相色谱法(DLLME/HPLC)测定了变压器油中的糠醛及其降解产物糠酸等。相较于水溶液,油基质中有机化合物含量测定的报道较少,变压器油绝缘纸老化降解产物含量的测定方法研究亦少见报道。

本文以老化特征量糠醛的氧化产物糠酸以及潜在老化特征量甲醇、乙醇的氧化产物甲酸和乙酸为目标分析物,采用 BSTFA 硅烷化衍生的方法对老化变压器油中短碳链羧酸组分进行 GC-MS 定性分析;并以水为萃取剂,采用 DLLME/HPLC 法同时测定了老化变压器油中甲酸、乙酸和糠酸的含量。

## 1 实验部分

### 1.1 仪器与试剂

Agilent 6890N-5973 GC-MS 联用仪、Agilent 1260 高效液相色谱(美国 Agilent 公司); 2010PLUS 气相色谱仪(日本岛津公司); Milli-Q Advantage A10 超纯水系统(美国密理博公司); WH-2 微型涡旋混合仪(上海沪西分析仪器厂有限公司); TGL-16G 离心机(上海安亭科学仪器厂)。

甲醇、乙腈(色谱纯,美国 Fisher 公司); 甲酸、乙酸、正己烷、正辛醇(分析纯,国药集团化学试剂有限公司); 糠酸(分析纯,上海晶纯生化科技股份有限公司); N, O-双(三甲基硅烷基)三氟乙酰胺(BSTFA, GC 衍生化级,上海 Sigma 公司); 克拉玛依 25# 变压器油(中国电力科学院提供)。

## 1.2 标准溶液的配制

混合羧酸的标准乙腈溶液: 分别取 20.3  $\mu\text{L}$  甲酸、23.8  $\mu\text{L}$  乙酸和 0.025 0 g 糠酸溶于 25 mL 乙腈中, 得 1 000.0 mg/L 的混合羧酸标准储备液。用乙腈稀释该储备液得所需浓度的混合羧酸标准乙腈溶液。

混合羧酸的标准正辛醇溶液: 分别取 20.3  $\mu\text{L}$  甲酸、23.8  $\mu\text{L}$  乙酸和 0.025 0 g 糠酸溶于 25 mL 正辛醇中, 得 1 000.0 mg/L 的混合羧酸标准正辛醇储备液。

混合羧酸的标准变压器油样: 取不同体积 1 000.0 mg/L 的混合羧酸标准正辛醇储备液, 用空白变压器油稀释成所需浓度的标准变压器油样。

## 1.3 实验方法

1.3.1 加速热老化实验 按常规 550 kV 变压器内部绝缘油和绝缘纸的比例制作绝缘体系模拟单元, 并在 110  $^{\circ}\text{C}$  加速热老化, 每隔 3 d 取样 1 次<sup>[5]</sup>。所取样品为模拟热老化油样, 在以下实验中简称老化油样。

1.3.2 羧酸的硅烷化衍生 取 3 mL 30 mg/L 的甲酸、乙酸和糠酸标准变压器油样, 加入 300  $\mu\text{L}$  乙腈涡旋萃取 7 min, 4 000 r/min 离心 5 min 后, 将乙腈相转入 25 mL 顶空瓶中, 加入 100  $\mu\text{L}$  BSTFA, 密封, 60  $^{\circ}\text{C}$  下衍生化反应 60 min。

1.3.3 分散液液微萃取 取 2 mL 甲酸、乙酸和糠酸标准变压器油样于 5 mL 离心管中, 加入 1 mL 正己烷稀释, 再加入 180  $\mu\text{L}$  超纯水涡旋萃取 5 min, 4 500 r/min 离心 5 min 后, 取下层水萃取相待用。

## 1.4 分析方法

1.4.1 混合羧酸衍生化产物的 GC 测定 HP-5MS 毛细管柱(30 m  $\times$  0.25 mm  $\times$  0.25  $\mu\text{m}$ ); 检测器为氢火焰离子检测器(FID); 载气为氮气; 柱流速 1 mL/min; 分流比 10:1; 进样量 1  $\mu\text{L}$ ; 进样口温度 260  $^{\circ}\text{C}$ ; 检测器温度 280  $^{\circ}\text{C}$ ; 程序升温: 60  $^{\circ}\text{C}$  保持 3 min, 然后以 10  $^{\circ}\text{C}/\text{min}$  升至 260  $^{\circ}\text{C}$ , 并保持 10 min。

1.4.2 混合羧酸衍生化产物的 GC-MS 测定 GC 条件同“1.4.1”。MS 条件: 电子电离源(EI); 离子源温度 230  $^{\circ}\text{C}$ ; 四极杆温度 150  $^{\circ}\text{C}$ ; 接口温度 280  $^{\circ}\text{C}$ ; 电子能量 70 eV。

1.4.3 混合羧酸的 HPLC 测定 Agilent XDB-C<sub>18</sub> 色谱柱(4.6 mm  $\times$  150 mm  $\times$  5  $\mu\text{m}$ ); 二极管阵列检测器(DAD); 柱温为 25  $^{\circ}\text{C}$ ; 流动相: A 为甲醇, B 为 25 mmol/L 磷酸盐缓冲液(pH 2.1)。梯度洗脱程序: 0~3.5 min, 5% A; 3.5~4.0 min, 5%~25% A; 4.0~9.0 min, 25% A。流速 1 mL/min; 进样量 10  $\mu\text{L}$ ; 检测波长: 甲酸和乙酸为 210 nm, 糠酸为 242 nm。

## 2 结果与讨论

### 2.1 变压器油中短碳链羧酸的定性分析

2.1.1 目标羧酸的 GC 分析方法研究 按“1.3.2”衍生化条件, 以甲酸、乙酸和糠酸为目标分析物, 按照“1.2”方法配制不同质量浓度的混合羧酸标准乙腈溶液分别进行单一衍生化实验和不同浓度 3 种混合羧酸的同时衍生化实验, 根据单一衍生化实验的出峰时间和不同浓度混合羧酸的出峰强度, 确定甲酸、乙酸和糠酸的硅烷化产物的出峰时间。对质量浓度均为 30 mg/L 的甲酸、乙酸和糠酸的混合标准油样进行衍生化反应后, 按“1.4.1”方法进行 GC 检测。结果显示, 目标羧酸的硅烷化衍生产物的分离度较高, 峰形较好(图 1)。

2.1.2 硅烷化衍生条件的优化 硅烷化反应受反应温度和反应时间的影响较大。分别在 40、50、60、70、80  $^{\circ}\text{C}$  下衍生反应 60 min, 结果显示, 随反应温度从 40  $^{\circ}\text{C}$  升至 60  $^{\circ}\text{C}$ , 甲酸、乙酸和糠酸的硅烷化效率均增加, 温度大于 60  $^{\circ}\text{C}$  时甲酸的硅烷化效率明显降低。由于 60  $^{\circ}\text{C}$  时 3 种目标物的硅烷化效率最

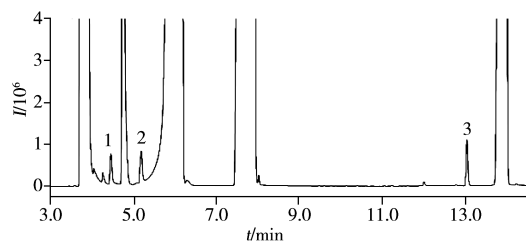


图 1 目标分析物标准油样萃取相衍生化后的色谱图

Fig. 1 Chromatogram of the extraction phase of three target analytes after derivatization

- 1: silanization product of formic acid(甲酸硅烷化产物),
- 2: silanization product of acetic acid(乙酸硅烷化产物),
- 3: silanization product of furoic acid(糠酸硅烷化产物)

大, 故选择 60 °C 为硅烷化反应温度。

在 60 °C 下考察了反应时间(30、45、60、75、90 min)对目标分析物硅烷化效率的影响, 结果表明随反应时间从 30 min 延长至 60 min, 目标分析物的硅烷化效率均呈上升趋势; 此后继续延长反应时间, 硅烷化效率变化不大。因此确定目标羧酸的硅烷化衍生温度为 60 °C, 反应时间为 60 min。

**2.1.3 老化变压器油中短碳链羧酸的 GC-MS 分析** 采用上述建立的硅烷化衍生方法, 对老化油样中的羧酸进行衍生化反应, 取反应后溶液进行 GC-MS 分析, 对比空白油样和老化油样的分析结果, 确定老化变压器油样中的 14 种短碳链羧酸类物质如表 1 所示。结果显示, 在老化变压器油中检出老化特征量糠醛的氧化产物糠酸, 以及潜在老化特征量甲醇和乙醇的氧化产物甲酸和乙酸。

表 1 老化变压器油中短碳链羧酸的硅烷化 GC-MS 检测结果

Table 1 GC-MS detection results of short-chain carboxylic acids in transformer oil of accelerated aging by silanization

Compound	Molecular formula	$M_r$	Retention time(min)	Characteristic ion( $m/z$ )
Formic acid(甲酸)	$CH_2O_2$	46.03	2.053	103, 75
Acetic acid(乙酸)	$C_2H_4O_2$	60.05	2.498	117, 75
Propanoic acid(丙酸)	$C_3H_6O_2$	74.08	2.856	131, 75
2-Methylpropanoic acid(异丁酸)	$C_4H_8O_2$	88.11	5.527	145, 75
Glycolic acid(羟基乙酸)	$C_2H_4O_3$	76.05	7.242	147, 73
2-Methylbutanoic acid(2-甲基丁酸)	$C_5H_{10}O_2$	102.13	7.652	159, 75
Valeric acid(戊酸)	$C_5H_{10}O_2$	102.13	7.859	159, 75
3-Methylbutyric acid(3-甲基丁酸)	$C_5H_{10}O_2$	102.13	7.933	159, 75
Pent-4-enoic acid(4-戊烯酸)	$C_5H_8O_2$	100.12	8.905	157, 75
Hexanoic acid(己酸)	$C_6H_{12}O_2$	116.16	10.636	173, 75
3-Hydroxybutyric acid(3-羟基丁酸)	$C_4H_8O_3$	104.10	10.961	147, 131
2-Hydroxybutyric acid(2-羟基丁酸)	$C_4H_8O_3$	104.10	12.517	147, 131
Furoic acid(糠酸)	$C_5H_4O_3$	112.08	12.597	169, 125
Benzoic acid(苯甲酸)	$C_7H_6O_2$	122.12	15.936	179, 105

## 2.2 变压器油中甲酸、乙酸与糠酸含量的 HPLC 测定

**2.2.1 变压器油中羧酸含量的测定** 按“1.2”方法配制甲酸、乙酸和糠酸的标准变压器油样, 采用“1.3.3”方法进行分散液液微萃取后, 对水萃取相进行 HPLC 测定。在“1.4.3”实验条件下, 甲酸、乙酸和糠酸均得到较好分离(图 2a), 其保留时间分别为 1.827、2.592、7.695 min。新油样测定的色谱图见图 2b, 在新油样中未检出目标化合物, 可知目标化合物为老化产物。

**2.2.2 线性关系与检出限** 配制甲酸和乙酸质量浓度为 0.05、0.5、5.0、10.0、50.0 mg/L, 糠酸质量浓度为 0.001、0.01、0.1、1.0、2.0 mg/L 的混合羧酸标准变压器油样, 进行 DLLME/HPLC 测定。因甲酸的色谱峰与死体积峰未完全分开( $R=1.0 < 1.5$ ), 根据色谱相关理论, 当色谱峰的分离度  $R=1.0$  时, 裸露峰面积为 95.4%, 可认为基本分离<sup>[19]</sup>。故甲酸的峰面积计算采用手动积分方式进行。由表 2 可知, 3 种目标羧酸在一定的质量浓度范围内线性良好, 相关系数( $r$ )均不小于 0.998; 富集倍数为 8~10 倍; 方法检出限( $S/N=3$ )为 7.0~47.3  $\mu\text{g/L}$ , 相对标准偏差(RSD)分别为 2.4%、3.3% 和 3.6%。

**2.2.3 老化油样中甲酸、乙酸与糠酸的测定** 按“1.3.1”方法进行加速热老化实验, 对不同老化时间的样品进行测定并做加标回收率实验, 老化 12 d 油样和老化 24 d 油样加标样的色谱图见图 2c~d。结果发现, 老化油样中乙酸出峰附近有一未知老化产物出峰。进一步对不同老化时间(3、6、9、12、15、18、21、24、27、30 d)的样品进行测定, 发现老化时间在 3~18 d 内, 乙酸与该未知老化产物的

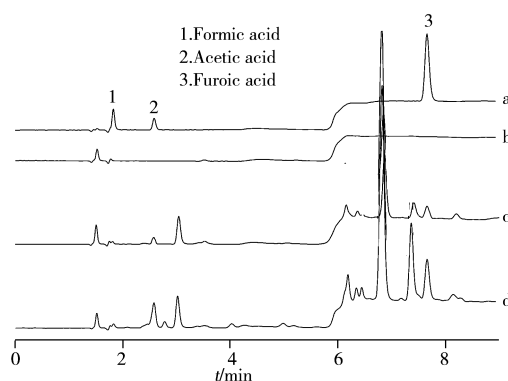


图 2 混合羧酸标准油样(a)、新油样(b)、老化 12 d 油样加标(c)和老化 24 d 油样加标(d)的色谱图  
Fig. 2 Chromatograms of standard substances(a), fresh transformer oil(b), the spiked sample of aged 12 d(c) and the spiked sample of aged 24 d(d)  
detection wavelength: 210 nm

含量较低时, 两色谱峰完全分开。随着老化时间的增长, 二者含量增加, 老化 21~30 d 的油样中乙酸出峰受到干扰, 但因乙酸的色谱峰面积远大于未知干扰物, 因此该未知老化产物对乙酸测定产生的干扰较小, 对有干扰的样品, 则采用手动积分计算乙酸的峰面积。

表2 甲酸、乙酸和糠酸的线性方程、线性范围、相关系数( $r$ )、相对标准偏差、检出限及富集倍数( $n=8$ )

Table 2 Linear equations, linear ranges, correlation coefficients( $r$ ), RSDs, LODs and enrichment factors(EFs) of formic acid, acetic acid and furoic acid( $n=8$ )

Analyte	Linear equation	Linear range(mg/L)	$r$	RSD(%)	LOD( $\mu\text{g/L}$ )	EF
Formic acid	$y = 3.6156x + 1.5727$	0.05~50.0	0.9992	2.4	36.1	8
Acetic acid	$y = 2.1348x + 1.8104$	0.05~50.0	0.9982	3.3	47.3	8
Furoic acid	$y = 441.67x - 9.3604$	0.01~2.0	0.9998	3.6	7.0	10

\*  $y$ : peak area;  $x$ : concentration of target analyte(mg/L)

老化 12 d 和老化 24 d 油样的加标回收率测定结果见表 3。结果显示, 3 种目标羧酸的加标回收率为 91.7%~107%, RSD 为 3.2%~4.9%。另外, 老化油样中的乙酸含量高于甲酸, 由于老化变压器油中乙酸含量与变压器绝缘纸降解生成的乙醇含量具有正相关性, 因此该结果与文献<sup>[6-7]</sup>报道的老化变压器油中绝缘纸降解产生的乙醇量明显高于甲醇的结论相符。

表3 老化 12 d 和 24 d 油样中甲酸、乙酸和糠酸的测定结果及加标回收率( $n=6$ )

Table 3 Detection results and recoveries of formic acid, acetic acid and furoic acid in oil samples aged for 12 d and 24 d( $n=6$ )

Analyte	Aging time(d)	Content( $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ )	Spiked( $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ )	Found( $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ )	RSD(%)	Recovery(%)
Formic acid	12	0.12	0.20	0.33	4.9	105
	24	0.21	0.40	0.61	4.5	100
Acetic acid	12	0.79	1.60	2.43	3.2	102
	24	3.86	8.00	12.41	4.3	107
Furoic acid	12	0.08	0.15	0.22	4.4	93.3
	24	0.13	0.24	0.35	4.2	91.7

### 3 结 论

本文以甲酸、乙酸和糠酸为目标分析物, 研究了 BSTFA 硅烷化衍生/GC-MS 测定老化变压器油中短碳链羧酸的定性分析方法; 并以水为萃取剂, 建立了 DLLME/HPLC 测定老化变压器油中 3 种目标产物的定量方法。所建立的方法操作简单, 对老化变压器油中羧酸的定性分析检出率高, 定量分析准确可靠, 且环境友好。运用该方法在老化变压器油样品中检出 14 种短碳链羧酸, 并对老化特征量可能的氧化产物甲酸、乙酸和糠酸的含量进行了同时测定, 为变压器油纸绝缘老化特征量的应用和研究提供了科学数据。

#### 参考文献:

- [1] Yang L J, Liao R J, Sun H G, Sun C X, Xiang B. *Trans. China Electrotech. Soc.* (杨丽君, 廖瑞金, 孙会刚, 孙会新, 向彬. 电工技术学报), **2009**, 24(8): 27-33.
- [2] Li H Y, Zhang W J, He M, He Z Y. *J. Instrum. Anal.* (李海燕, 张伟杰, 何梦, 何泽宇. 分析测试学报), **2016**, 35(3): 311-316.
- [3] Liao R J, Lin Y D, Yang L J, Zhao X T. *Proceedings of the CSEE* (廖瑞金, 林元棣, 杨丽君, 赵学童. 中国电机工程学报), **2017**, 37(10): 3037-3044.
- [4] Li Q M, Zhou Y, Yan J Y, Wang Z D. *High Volt. Eng.* (李庆民, 周勇, 闫江燕, 王兆东. 高电压技术), **2016**, 42(6): 1827-1833.
- [5] Li H Y, He M, Huang L, Jiang S B, Lin H, Ni X F. *High Volt. Eng.* (李海燕, 何梦, 黄林, 姜胜宝, 林浩, 倪学锋. 高电压技术), **2015**, 41(6): 1959-1964.
- [6] von Steinkirch Souza E M P, Mildemberger L, Akcelrud L, Andreoli M C, dos Santos K, da Silva G C, da Motta H N, Gulmine J V, Munaro M. *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, **2016**, 23(5): 3209-3214.
- [7] Schaut A, Autru S, Eeckhoudt S. *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, **2011**, 18(2): 533-540.
- [8] Munajad A, Subroto C, Suwarno S. *Energies*, **2018**, 11(2): 364.
- [9] Okabe S, Ueta G, Tsuboi T. *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, **2013**, 20(1): 346-355.

(下转第 395 页)

## 参考文献:

- [1] Akhtar S, Anjum F M, Anjum M A. *Food Res. Int.*, **2011**, 44(3): 652–659.
- [2] Zhang D Y, Yang J X. *Chem. Enterp. Manage.* (张旦亚, 杨吉兴. 化工管理), **2017**, (20): 113.
- [3] D'Oyly – Watkins C. *Nature*, **1964**, 203(4941): 129–131.
- [4] Li W F, Yang Q X, Lin Z P, Guan P, Guo P R. *J. Instrum. Anal.* (李卫峰, 杨秋霞, 林泽鹏, 管鹏, 郭鹏然. 分析测试学报), **2018**, 37(4): 381–384.
- [5] Chen D, Huang Z X, Han X. *Nanotech. Precis. Eng.* (陈达, 黄志轩, 韩汐. 纳米技术与精密工程), **2017**, 15(1): 26–30.
- [6] Rai P K, Pathak A K, Ghatak S. *J. Food Meas. Charact.*, **2013**, 7(3): 114–121.
- [7] Zou T T, Xu Z L, Yang J J, Wang H, Sun Y M, Shen Y D. *J. Instrum. Anal.* (邹婷婷, 徐振林, 杨金易, 王弘, 孙远明, 沈玉栋. 分析测试学报), **2018**, 37(10): 1174–1181.
- [8] Chen Z Y, Lu Y L, Liang Y, Zeng C, Zhang Z M, Li G K. *J. Instrum. Anal.* (陈正毅, 卢雅琳, 梁豫, 曾晨, 张卓旻, 李攻科. 分析测试学报), **2017**, 36(5): 650–654.
- [9] Ouyang Y. *J. Instrum. Anal.* (欧阳雨. 分析测试学报), **2012**, 31(8): 996–1000.
- [10] Peng Y, Zhang Z M, Lu H M, Liang Y Z, Liu C, Chen Q Z, Liu G K. *J. Instrum. Anal.* (彭颖, 张志敏, 卢红梅, 梁逸曾, 刘察, 陈启振, 刘国坤. 分析测试学报), **2017**, 36(5): 627–632.
- [11] Stiles P L, Dieringer J A, Shah N C, Duyn R P. *Annu. Rev. Anal. Chem.*, **2008**, 1(7): 601–626.
- [12] Karanja C W, Hong W L, Younis W, Eldesouky H E, Seleem M N, Cheng J X. *Anal. Chem.*, **2017**, 89(18): 9822–9829.
- [13] Markiewicz – Keszyccka M, Casado – Gavalda M P, Cama – Moncunill X, Cama – Moncunill R, Dixit Y, Cullen P J, Sullivan C. *Food Chem.*, **2018**, 244(1): 324–330.
- [14] Liu S S, Zhang J, Lin S H. *Laser Optoelectron. Prog.* (刘珊珊, 张俊, 林思寒. 激光与光电子学进展), **2018**, 55(2): 463–469.
- [15] Chen D, Luo W X, Huang Z X, Li Q F. *Nanotech. Precis. Eng.* (陈达, 骆文欣, 黄志轩, 李奇峰. 纳米技术与精密工程), **2017**, 15(5): 384–388.
- [16] Fang K T, Ge G N, Liu M Q. *Sci. China*, **2002**, 45(8): 1080–1088.

(责任编辑: 盛文彦)

.....  
(上接第389页)

- [10] Wang X L, Li Q M, Zhang Y, Yang R, Gao S G. *High Volt. Eng.* (王学磊, 李庆民, 张颖, 杨芮, 高树国. 高压技术), **2017**, 43(1): 247–255.
- [11] Lundgaard L E, Hansen W, Ingebrigtsen S. *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, **2008**, 15(2): 540–546.
- [12] Hao J, Liao R J, Yang L J, Liang S W, Tang C. *High Volt. Eng.* (郝建, 廖瑞金, 杨丽君, 梁帅伟, 唐超. 高压技术), **2010**, 36(9): 2160–2166.
- [13] Chen F Q, Song C M, Fang D H, Pang T, Deng J H, Zeng Q C. *Chin. J. Anal. Lab.* (陈飞钦, 宋春满, 方敦煌, 逢涛, 邓建华, 曾千春. 分析实验室), **2010**, (S1): 60–63.
- [14] Hu Z H, Chang X N, Dai T, Wu J C, Liu P F. *J. Instrum. Anal.* (胡志宏, 常旭念, 代探, 吴嘉纯, 刘鹏飞. 分析测试学报), **2017**, 36(5): 633–639.
- [15] Yang H, Fan W L, Xu Y. *Food Ferment. Ind.* (杨会, 范文来, 徐岩. 食品与发酵工业), **2017**, 43(5): 192–197.
- [16] Rousová J, Chintapalli M R, Lindahl A, Caseya J, Kubátová A. *J. Chromatogr. A*, **2018**, 1544: 49–61.
- [17] Khezeli T, Daneshfar A, Sahraei R. *Talanta*, **2016**, 150: 577–585.
- [18] Wang Y F, Li H Y, Yang Z, Zhang W J, Hua J. *J. Sep. Sci.*, **2017**, 40(24): 4805–4812.
- [19] Wuhan University. *Analytical Chemistry*. 5th ed. II. Beijing: Higher Education Press(武汉大学. 分析化学. 第五版下册. 北京: 高等教育出版社), **2007**: 499–501.

(责任编辑: 丁岩)