

固相萃取—超高效液相色谱—串联质谱法 测定葡萄酒中 12 种合成色素

李 欣 李帮锐 陈东洋 曾 栋 左家信

(湖南省疾病预防控制中心, 湖南 长沙 410005)

摘要: [目的] 建立一种基于固相萃取—超高效液相色谱—串联质谱的葡萄酒中 12 种合成色素测定方法。[方法] 葡萄酒经固相萃取净化、富集处理后, 采用超高效液相色谱分离、质谱多反应监测 (MRM) 模式测定其中的 12 种合成色素, 通过基质匹配曲线校正基质效应对测定的影响。[结果] 12 种合成色素在 0.2~20 000 $\mu\text{g/L}$ 范围内, 峰面积与其质量浓度线性关系良好, 决定系数 $R^2 \geq 0.982 0$ 。对 12 种合成色素进行低、中、高三水平的加标回收率试验, 回收率为 90.8%~105.1%, 相对标准偏差为 2.1%~4.9%。方法的检出限为 0.006~1.500 $\mu\text{g/kg}$, 定量限为 0.02~5.00 $\mu\text{g/kg}$ 。采用该方法对市售不同类型共 10 份葡萄酒样本进行检测, 其中有 5 份样品测出酸性黄 36、酸性靛蓝。[结论] 该方法操作简便、灵敏度高、线性范围宽, 适用于葡萄酒中 12 种合成色素的日常快速检测。

关键词: 超高效液相色谱—串联质谱; 固相萃取; 葡萄酒; 合成色素

Determination of 12 synthetic pigments in wine by solid phase extraction with ultra-high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry

LI Xin LI Bangrui CHEN Dongyang ZENG Dong ZUO Jiaxin

(Physical & Chemical Laboratory Department, Hunan Center for Disease Control and Prevention, Changsha, Hunan 410005, China)

Abstract: [Objective] To establish a method for the detection of 12 synthetic pigments in wine by solid-phase extraction/ultra-high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry (UPLC-MS/MS). [Methods] After the wine is subjected to purification and enrichment via solid-phase extraction, 12 synthetic pigments are determined using ultra-high performance liquid chromatography for separation and mass spectrometry in multiple reaction monitoring (MRM) mode. The influence of matrix effect on the determination is corrected using a matrix-matched calibration curve. [Results] For the 12 synthetic pigments within the range of 0.2~20 000 $\mu\text{g/L}$, the peak area has a good linear relationship with their mass concentration, and the coefficient of determination $R^2 \geq 0.982 0$. The recovery rates for the analytes at different spiked levels range from 90.8% to 105.1%, with relative standard deviations (RSDs) of 2.1%~4.9%. The limits of detection (LODs) of the method are 0.006~1.500 $\mu\text{g/kg}$, and the limits of quantitation (LOQs) are 0.02~5.00 $\mu\text{g/kg}$. The method is used to detect 10 batches of wine samples of different types, of which 5 samples are found to contain acid yellow 36 and indigo carmine. [Conclusion] It is simple, highly sensitive, and offers a wide linear range, making it suitable for the routine determination of the 12 synthetic pigments in wine.

Keywords: ultra-high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry; solid phase extraction; wine; synthetic pigment

基金项目: 湖南省卫生健康高层次人才项目 (编号: 20240304108); 湖南省自然科学基金项目 (编号: 2023JJ60289); 湖南省卫生健康委科研计划项目 (编号: B202312069185)

通信作者: 左家信 (1986—), 男, 湖南省疾病预防控制中心主管技师, 硕士。E-mail: 147466359@qq.com

李帮锐 (1979—), 男, 湖南省疾病预防控制中心主任技师, 博士。E-mail: bangrui_li@126.com

收稿日期: 2024-05-08 **改回日期:** 2025-10-31

引用格式: 李欣, 李帮锐, 陈东洋, 等. 固相萃取—超高效液相色谱—串联质谱法测定葡萄酒中 12 种合成色素[J]. 食品与机械, 2026, 42(3): 49-56.

Citation: LI Xin, LI Bangrui, CHEN Dongyang, et al. Determination of 12 synthetic pigments in wine by solid phase extraction with ultra-high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry[J]. Food & Machinery, 2026, 42(3): 49-56.

葡萄酒是以葡萄为原料经过发酵酿制而成的酒类，在生产过程容易出现褪色或变色现象。不法厂家可能会通过添加合成色素来改善酒的色泽；甚至使用合成色素和其他添加剂勾兑生产假冒伪劣葡萄酒。合成色素违规使用可能会对人体造成不同程度危害^[1]。

全球多数国家和地区都对合成色素的使用及用量作出明确规定。中国《食品安全国家标准 食品添加剂使用标准》(GB 2760—2024)亦对多种合成色素的使用范围与限量进行了严格限定。目前，食品中色素的检测方法主要有薄层色谱法^[2-4]、高效液相色谱法(HPLC)^[5-7]和液质联用法(LC-MS)^[8-15]等。薄层色谱法灵敏度低、操作繁琐；高效液相色谱法应用广，葡萄酒基质干扰多，常规紫外检测器难准确定性；液质联用法虽选择性好，灵敏度高，但基质会干扰离子化，影响测定准确性。超高效液相色谱—串联质谱法(UPLC-MS/MS)具有灵敏度高，选择性好，定性能力强等优点，近年来已被用于合成色素的检测。Eman等^[10]采用HPLC-DAD和UPLC-MS/MS两种方法测定了食品中65种合成色素，结果表明，UPLC-MS/MS具有更高的选择性和灵敏度。葡萄酒含有丰富的多酚、多糖及有机酸等物质，这些基质产生的离子化抑制会显著影响质谱定量的准确性。现有研究多采用稀释法来降低基质效应^[16-21]，但会降低方法的检测灵敏度。针对质谱基质效应的校正，当前主要采用同位素内标法、样本加标法和基质匹配工作曲线法。同位素内标法准确度与稳定性突出，但合成色素的同位素标记物不易获得；样本加标法操作复杂且时间成本高；基质匹配工作曲线法前处理简便、校准可靠，然而至今未见将离子交换固相萃取与UPLC-MS/MS基质匹配工作曲线校正技术结合，用于测定合成色素的报道。

研究拟以混合型弱阴离子交换柱一步净化，富集葡萄酒中柠檬黄、喹啉黄、固绿、酸性黄36、酸性红2G、酸性红14、酸性橙7、诱惑红、新红、酸性靛蓝、亮蓝及日落黄等12种合成色素，通过梯度洗脱、源参数优化最大限度降低基质干扰，并以基质匹配工作曲线校正离子化效率，建立高灵敏、高选择、高通量的固相萃取(SPE)/UPLC-MS/MS方法，旨在为葡萄酒中合成色素的精准测定与风险监控提供技术支撑。

1 材料与方法

1.1 仪器与试剂

1.1.1 仪器与设备

超高效液相色谱：UPLC-I-CLASS型，配二极管阵列检测器，美国Waters公司；

质谱仪：Xevo-TQ-S型，美国Waters公司；

超纯水处理系统：ELIX ADVANTAGER型，美国Millipore公司；

全自动固相萃取仪：Rapid Trace型，瑞典Biotage公司。

1.1.2 材料与试剂

色谱柱：XBridge C₁₈(2.1 mm×150 mm, 3.5 μm)型，Waters Spherisorb S5 SAX(4.0 mm×120 mm, 4.0 μm)型，美国Waters公司；

固相萃取柱：Oasis WAX (300 mg, 3 mL)型，美国Waters公司；

聚酰胺固相萃取柱(1 g, 6 mL)：上海安谱实验科技股份有限公司；

柠檬黄、喹啉黄、固绿、酸性黄36、酸性红2G、酸性红14、酸性橙7、诱惑红、新红、酸性靛蓝、亮蓝、日落黄标准品：德国Dr. Ehrenstorfer公司；

乙腈、甲醇：色谱纯，北京迪科马科技有限公司；

甲酸、氨水：色谱纯，德国Merck公司。

1.2 样品处理

涡旋混匀原样，准确吸取10 mL样本待净化处理。

净化：分别用5 mL甲醇、5 mL 2%甲酸水溶液活化WAX固相萃取柱；将上述10 mL样本液过柱；再依次用5 mL 2%甲酸水和20 mL含2%甲酸的甲醇溶液对固相萃取柱进行淋洗；用10 mL含2%氨水的甲醇溶液洗脱。将收集的洗脱液于60℃水浴氮气吹干，用水定容至1.0 mL，用0.22 μm微孔滤膜过滤，待上机分析。

1.3 分析方法

1.3.1 色谱条件 色谱柱为XBridge C₁₈(2.1 mm×150 mm, 3.5 μm)柱；柱温40℃；进样量10 μL；流量0.3 mL/min；流动相A为含0.05%甲酸的5 mmol/L乙酸铵水溶液，B为乙腈。梯度洗脱程序见表1。

表 1 梯度洗脱条件

Table 1 Gradient elution conditions		
时间/min	溶剂 A/%	溶剂 B/%
0~6.0	100~20	0~80
6.0~7.0	20	80
7.0~7.1	20~100	80~0
7.1~10.0	100	0

1.3.2 质谱条件 离子源：电喷雾离子源，负离子模式；扫描方式：多反应监测(MRM)；电离电压2.5 kV；脱溶剂气温度550℃；脱溶剂气流速800 L/h。12种人工色素的前体离子、子离子及碰撞电压等质谱采集参数见表2。

1.4 标准溶液的配制

精密称取柠檬黄、喹啉黄、固绿、酸性黄36、酸性红2G、酸性红14、酸性橙7、诱惑红、新红、酸性靛蓝、亮蓝、日落黄各10.0 mg，分别置于10 mL容量瓶中，用水稀释溶解并定容，配制成1.0 mg/mL的标准储备液。再将标准储备液用水稀释成质量浓度为200 mg/L的标准中间液。

表2 12种合成色素的质谱分析条件[†]

合成色素	保留时间/min	前体离子(m/z)	子离子(m/z)	碰撞电压/eV
柠檬黄	2.48	466.5	198.0*	38
			422.8	40
新红	2.57	271.0	292.0*	15
			172.5	15
酸性靛蓝	2.80	209.8	80.2*	15
			179.0	15
喹啉黄	3.27	215.3	184.2*	15
			162.0	15
日落黄	3.59	202.8	171.5*	15
			182.0	20
诱惑红	3.99	224.5	207.0*	15
			237.0	15
酸性红2G	4.29	463.3	360.0*	25
			343.5	25
酸性红14	4.87	456.7	378.0*	25
			171.0	25
固绿	5.02	380.7	342.5*	20
			170.5	20
亮蓝	5.17	746.2	171.0*	45
			562.5	45
酸性橙7	6.54	326.7	171.8*	25
			156.5	25
酸性黄36	7.25	351.7	156.4*	30
			80.7	30

† *为定量离子。

临用时用空白葡萄酒逐级稀释标准溶液,配制3组基质加标系列标准溶液:亮蓝、酸性红2G、固绿、新红、酸性靛蓝、日落黄标准系列质量浓度为20~20 000 μg/L;柠檬黄、酸性红14、喹啉黄标准系列质量浓度为50~20 000 μg/L;酸性黄36、酸性橙7、诱惑红标准系列质量浓度为0.2~20 000 μg/L。

1.5 数据处理

质谱数据利用Masslynx V4.1软件进行处理;采用Excel 2019对试验数据进行统计学分析处理;使用Origin 8.5软件对试验数据绘图。

2 结果与讨论

2.1 固相萃取柱的选择

由于待测的12种色素均含有1~3个磺酸基,带有负电荷,因此选择含有胺基官能团的混合型弱阴离子交换柱(WAX)和聚酰胺柱作为净化、富集手段,开展加标回收试验。取10 mL样品两份,每份添加1 mL质量浓度为20 mg/L的混合标准溶液,按1.2的方法进行样品处理,按表1的程序洗脱后测定,并计算加标回收率。如图1所示,12种色素经聚酰胺柱净化后的回收率为11%~50%,

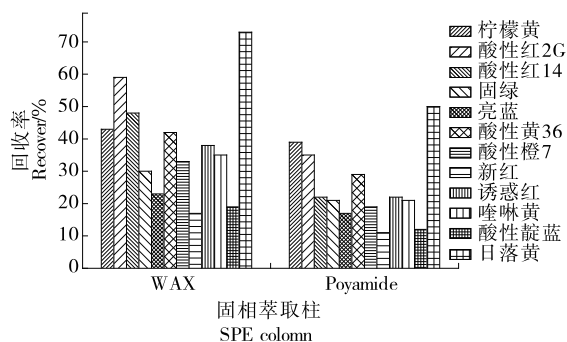


图1 固相萃取柱对加标回收率的影响

Figure 1 Influence of solid-phase extraction columns on spiked recovery rates

经WAX柱处理后的回收率为19%~73%。两种净化柱的样本加标回收率均不理想,但WAX柱的回收率明显优于聚酰胺柱,因此选择WAX柱继续开展后续试验。

2.2 回收率低原因分析

方法加标回收率低的原因主要来源两个方面:①固相萃取净化过程,样本上样、淋洗阶段可能存在穿透现象,导致目标物损失;样本洗脱阶段可能存在洗脱剂洗脱能力不强,或洗脱体积不够,导致目标物没有从萃取柱上完全洗脱下来。②质谱测定过程,可能存在样本基质抑制目标物离子化效率,导致响应值偏低。

2.2.1 固相萃取过程 方法通过液相色谱对比测定空白加标样本与基质加标样本来确定固相萃取过程是否存在目标化合物损失。取两份空白葡萄酒样本各10 mL,向其中一份加入100 mg/L的12种色素混标20 μL,得到空白加标样本。空白样本和空白加标样本按1.2的方法进行处理。然后向空白样本制备液中加入100 mg/L色素混标20 μL,得到基质加标样本。将空白加标样本和基质加标样本用超高效液相色谱仪测定,结果如图2所示,两种样本的12种色素响应值基本一致。由此可见,固相萃取过程目标物基本没有损失,前处理步骤对回收率影响较小。

2.2.2 质谱测定过程 方法加标回收率低,而前处理过程目标物基本没有损失,表明质谱测定过程可能存在基质效应。采用柱后灌流技术对可能存在的基质效应进行确认。柱后灌流试验通过色谱柱后的三通装置得以实现。空白样本制备液流经色谱柱,通过三通装置与流动注射的目标物标准溶液混合进入质谱分析。质谱仪持续采集目标物的响应信号。根据柱后灌流谱图中目标物出峰时间点附近基线的抬升或塌陷来确定基质对目标物质谱测定的增强或抑制作用。以回收率20%以下的新红和酸性靛蓝作为考察对象,研究样本基质对质谱响应的影响。如图3所示,在新红(2.22 min)和酸性靛蓝(2.31 min)出峰附近柱后灌流谱图基线出现明显塌陷,表明样本基质严重抑制质谱的离子化效率。

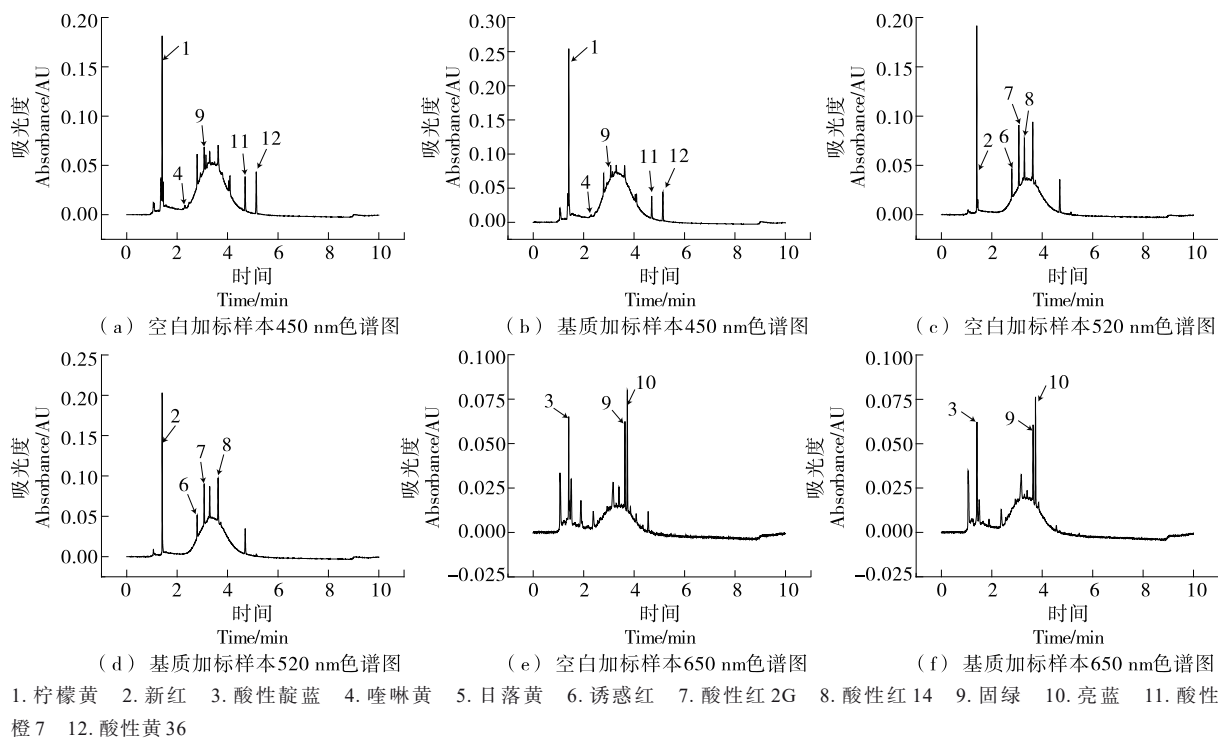


图2 空白加标样本与基质加标样本测定谱图

Figure 2 Chromatograms of spiked blank sample and matrix sample

2.3 色谱条件优化

经过固相萃取净化,部分目标化合物仍存在严重的基质抑制。因此,通过加强色谱分离来降低样本基质对

目标物测定的干扰。

根据目标物带负电特征,选用含有硅基季铵键合吸附剂的 Waters Spherisorb S5 SAX 色谱柱对 12 种色素进行

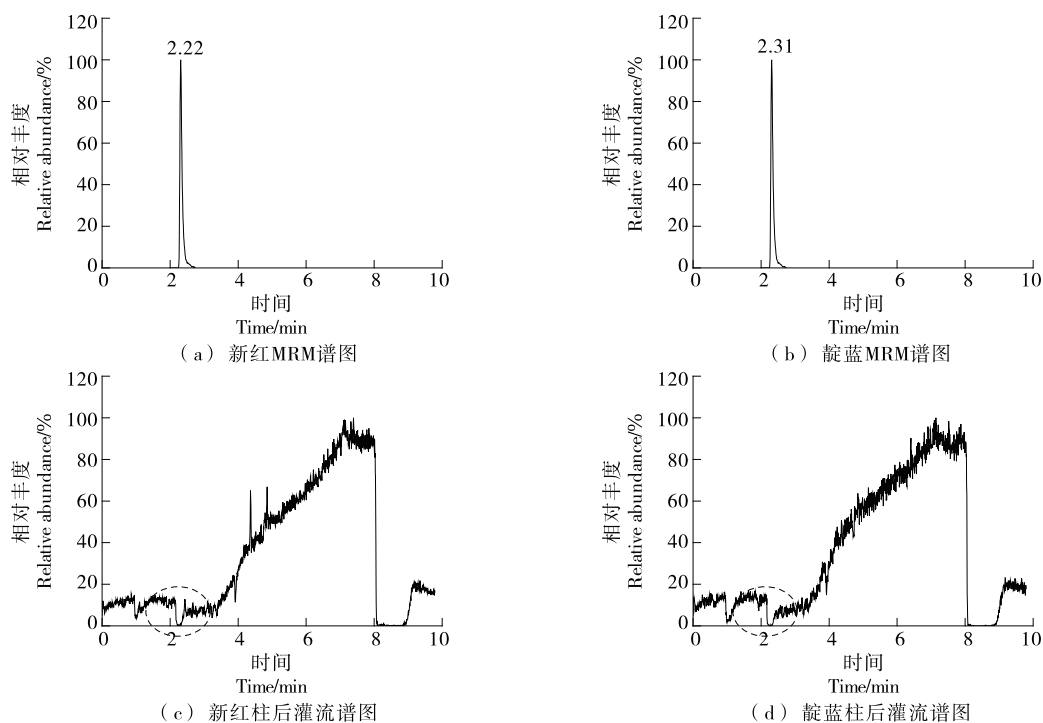


图3 柱后灌流试验

Figure 3 Post-column irrigation test

分离。结果只有酸性黄36和酸性橙G7两种化合物出峰。分析上述12种色素的结构式发现,仅酸性黄36和酸性橙G7只含有1个磺酸基,其他10种色素均含有2个以上的磺酸基。推测含有多个磺酸基的色素分子与色谱柱的硅基季铵键合吸附剂静电作用较强,导致其不能被流动相淋洗冲出色谱柱。因而以XBridge C₁₈柱为分离柱,采用含0.05%甲酸的5 mmol/L乙酸铵水溶液与乙腈作为试验的流动相,对梯度条件进行优化以加强基质与目标化合物的分离。优化后的梯度程序见表3。采用优化后的梯度洗脱条件进行测定,目标化合物得到进一步分离,质谱基质抑制效应得到有效改善。12种色素峰形尖锐对称,

保留时间适中,见图4。在此条件下,采用基质匹配工作曲线对样品基质效应进行校正,方法回收率获得满意结果,详情见图5。

表3 优化后的梯度洗脱条件

Table 3 Optimized gradient elution conditions

时间/min	溶剂 A/%	溶剂 B/%
0~11.0	100~20	0~80
11.0~12.0	20	80
12.0~12.1	20~100	80~0
12.1~15.0	100	0

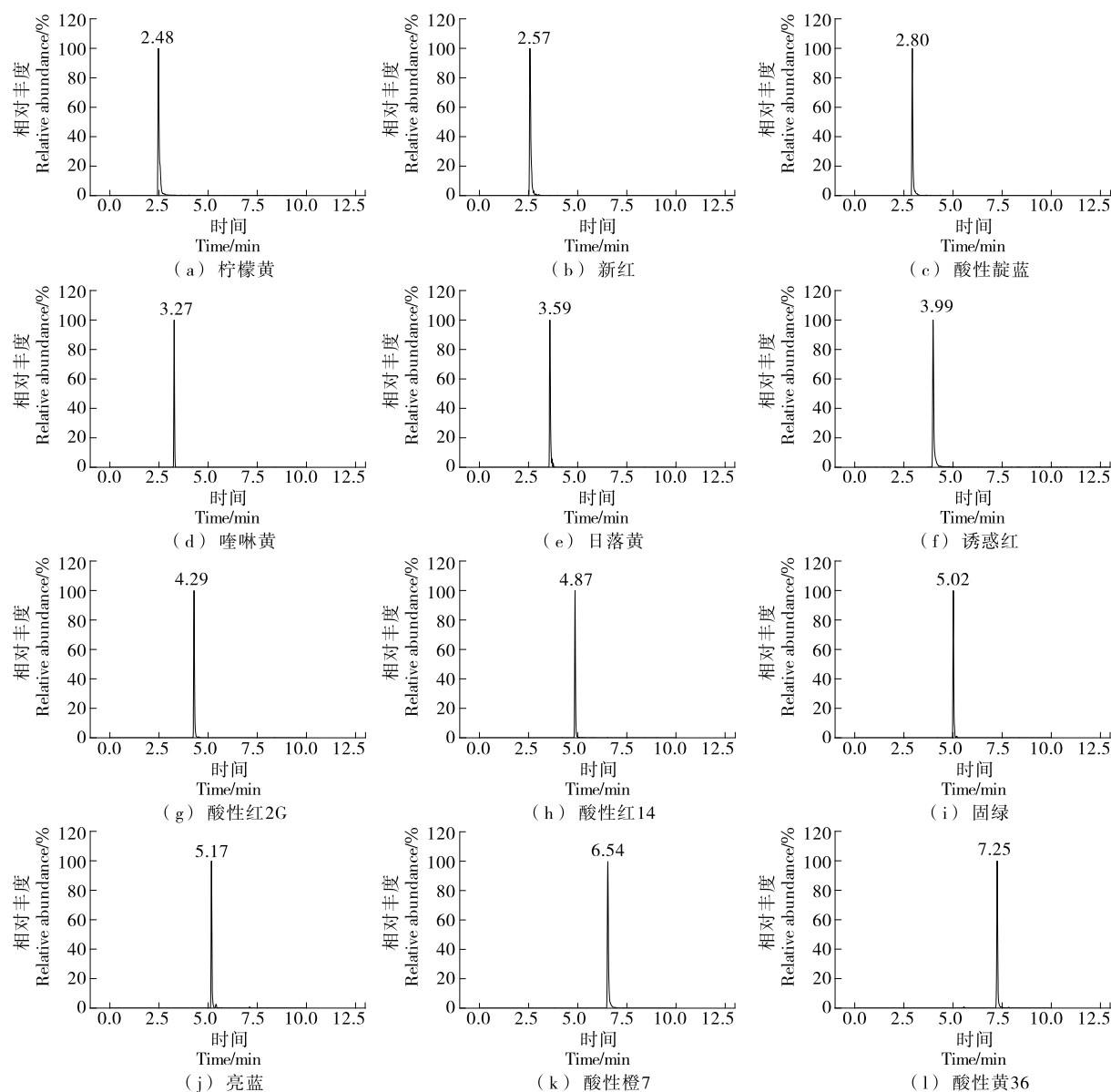


图4 12种合成色素离子流色谱图

Figure 4 Ion current chromatograms of 12 synthetic pigments

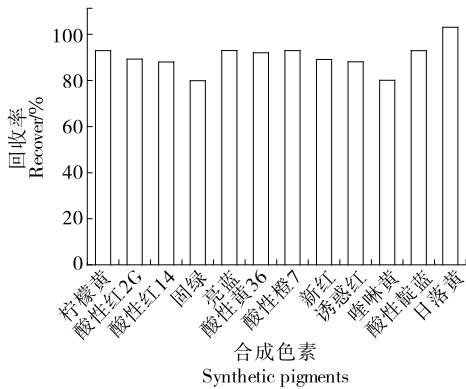


图 5 校正基质效应后的加标回收率
Figure 5 Recovery rates after correction of matrix effects

2.4 质谱条件优化

12 种合成色素分子结构中含有 1~3 个磺酸盐基官能团,采用负离子模式直接进样进行质谱分析,含有 1 个磺酸盐基的化合物形成稳定的 $[M-Na]^-$ 离子峰;含有 2 个磺酸盐基的化合物可形成 $[M-2Na+H]^-$ 和 $[M-2Na]^{2-}$ 离子峰;含有 3 个磺酸盐基的化合物可形成 $[M-3Na+2H]^-$ 、 $[M-3Na+H]^{2-}$ 和 $[M-3Na]^{3-}$ 离子峰。酸性黄 36 和酸性橙 G7 形成了稳定的 $[M-Na]^-$ 离子峰;柠檬黄、酸性红 2G 和酸性红 14 形成了稳定的 $[M-2Na+H]^-$ 离子峰;酸性靛蓝、日落黄、喹啉黄、诱惑红形成了稳定的 $[M-2Na]^{2-}$ 离子峰;新红形成了 $[M-3Na+H]^{2-}$ 离子峰。固绿和亮蓝分子结构比较特殊,不仅含有 3 个磺酸盐基官能团,还有 1 个季铵盐官能团,分别形成了稳定的 $[M-3Na]^{2-}$ 离子峰和 $[M-3Na+H]^-$ 离子峰。先通过质谱全扫描确定

化合物的分子离子,再将分子离子作为前体离子,对二级离子进行全扫描,通过优化碰撞电压等质谱条件,选取响应值高、干扰较小的 2 个子离子作为定性及定量离子,12 种人工色素化合物质谱条件优化结果见表 2。

2.5 线性关系和检出限

分别精确移取色素标准储备溶液,稀释成适宜质量浓度的标准系列溶液,按优化后的条件进样分析。以色素峰面积对质量浓度作基质匹配曲线得到色素的线性方程。由表 4 可知,12 种人工合成色素在 0.2~20 000 $\mu\text{g/L}$ 范围内线性关系良好,决定系数 $R^2\geq 0.982\ 0$ 。以 3 倍信噪比作为检出限,10 倍信噪比作为定量限。

2.6 回收率与精密度

向空白样品中分别加入混合标准溶液至色素质量浓度为 0.1,0.5,2.0 mg/L ,制成 3 个添加水平的加标样品,进行加标回收试验,对 3 个质量浓度加标样品均平行测定 6 次,计算回收率和相对标准偏差(RSD),结果见表 5。由表 5 可知,方法的回收率为 90.8%~105.1%,RSD 为 2.1%~4.9%。表明该方法具有良好的准确度和精密度。

2.7 样品测定

用上述建立的方法对市售的 10 份葡萄酒样品进行检测,结果显示,有 2 份样品检出酸性黄 36 和酸性靛蓝,有 3 份样本仅检出酸性黄 36,其余样品中均未检出上述 12 种人工合成色素。酸性黄 36 的检出质量分数为 0.16~0.52 $\mu\text{g/kg}$;酸性靛蓝的检出质量分数为 9.20,11.50 $\mu\text{g/kg}$,结果见表 6。

表 4 12 种人工合成色素的线性方程、相关系数、线性范围、检出限、定量限					
Table 4 Linear equation, correlation coefficient, linear range, LODs and LOQs of 12 synthetic pigments					
合成色素	线性方程	决定系数	线性范围/ $(\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1})$	检出限/ $(\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1})$	定量限/ $(\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1})$
柠檬黄	$y=35.059x-12\ 970$	0.994 0	50~20 000	1.5	5.0
新红	$y=3.966\ 9x+2\ 632.3$	0.982 0	20~20 000	0.6	2.0
酸性靛蓝	$y=3.499\ 6x+2\ 012.3$	0.982 0	20~20 000	0.6	2.0
喹啉黄	$y=0.902\ 9x+315.54$	0.994 0	50~20 000	1.5	5.0
日落黄	$y=4.081\ 6x+161.93$	0.994 0	20~20 000	0.6	2.0
诱惑红	$y=204.75x+1\ 358.9$	0.996 0	0.2~20 000	0.006	0.02
酸性红 2G	$y=4.665\ 7x+98.75$	0.998 0	20~20 000	0.6	2.0
酸性红 14	$y=335.29x-12\ 038$	0.999 6	50~20 000	1.5	5.0
固绿	$y=0.731\ 8x+115.54$	0.996 0	20~20 000	0.6	2.0
亮蓝	$y=5.998\ 5x+560.15$	0.998 0	20~20 000	0.6	2.0
酸性橙 7	$y=23.716x+9\ 427.1$	0.994 0	0.2~20 000	0.012	0.04
酸性黄 36	$y=109.44x+30\ 266$	0.994 0	0.2~20 000	0.012	0.04

表 5 方法的回收率和相对标准偏差

Table 5 Method recovery rate and relative standard deviations ($n=6$)

合成色素	添加水平/(mg·L ⁻¹)	回收率/%	RSD/%	合成色素	添加水平/(mg·L ⁻¹)	回收率/%	RSD/%
柠檬黄	0.1	94.2	2.2	酸性红 2G	0.1	97.4	3.9
	0.5	97.3	3.2		0.5	105.1	2.8
	2.0	98.2	2.9		2.0	98.4	3.3
新红	0.1	92.7	4.3	酸性红 14	0.1	92.6	3.8
	0.5	93.1	2.9		0.5	96.2	3.0
	2.0	97.5	2.6		2.0	96.2	3.2
酸性靛蓝	0.1	96.9	3.2	固绿	0.1	103.6	3.5
	0.5	95.5	4.3		0.5	91.8	4.6
	2.0	94.2	4.9		2.0	95.2	4.7
喹啉黄	0.1	96.2	3.1	亮蓝	0.1	92.4	2.6
	0.5	93.5	3.9		0.5	98.5	3.6
	2.0	91.9	2.1		2.0	90.9	3.5
日落黄	0.1	92.9	2.2	酸性橙 7	0.1	97.3	3.8
	0.5	96.0	2.5		0.5	92.8	4.1
	2.0	97.6	3.6		2.0	97.2	3.7
诱惑红	0.1	95.5	3.6	酸性黄 36	0.1	93.1	2.1
	0.5	97.3	2.8		0.5	96.8	3.4
	2.0	92.8	3.4		2.0	103.8	2.8

表 6 样品测定结果

Table 6 Results of sample determination

编号	化合物	测定值/(μg·kg ⁻¹)	RSD/%
样品 2	酸性黄 36	0.52	2.0
	酸性靛蓝	11.50	1.8
样品 3	酸性黄 36	0.16	1.6
	酸性靛蓝	9.20	1.2
样品 6	酸性黄 36	0.43	1.7
样品 7	酸性黄 36	0.18	1.9
样品 8	酸性黄 36	0.49	2.1

3 结论

该研究建立了超高效液相色谱—串联质谱法测定葡萄酒中人工色素的分析方法。柱后灌注试验证实,样品中的复杂基质会干扰质谱离子化效率,样品经混合型弱阴离子交换柱净化富集处理后,采用基质匹配法进行校正可以有效改善基质效应。方法加标回收率为 90.8%~105.1%,相对标准偏差为 2.1%~4.9%,方法的检出限为 0.006~1.500 μg/kg。该方法操作简便,具有较强抗干扰能力,灵敏度、准确度和精密度均能达到葡萄酒中人工色素含量测定的要求。后续可以尝试将该方法应用于其他食品样中人工色素含量的测定,以便扩展方法的实用性。

参考文献

[1] 张莲莲,李岩.食品添加剂对食品安全的影响探析[J].现代食

品, 2023, 29(7): 143-145.
ZHANG L L, LI Y. Analysis on the influence of food additives on food safety[J]. Modern Food, 2023, 29(7): 143-145.
[2] 方益,戴意飞,何鹏飞,等.人工合成色素检测方法研究进展[J].山东化工, 2020, 49(20): 44-45.
FANG Y, DAI Y F, HE P F, et al. Research progress of synthetic pigment detection methods[J]. Shandong Chemical Industry, 2020, 49(20): 44-45.
[3] 翁志兵,王鹏红,赵力,等.层析填料中顽固色素去除的新方法研究[J].食品与生物技术学报, 2022, 41(2): 106-111.
WENG Z B, WANG P F, ZHAO L, et al. A new method of removing stubborn pigments from chromatographic resin[J]. Journal of Food Science and Biotechnology, 2022, 41(2): 106-111.
[4] 戚平,刘佳,毛新武,等.食品中色素检测的研究进展[J].食品与机械, 2018, 34(11): 167-173.
QI P, LIU J, MAO X W, et al. Progresses on the detection of the food colours[J]. Food & Machinery, 2018, 34(11): 167-173.
[5] 邸万山.高效液相色谱内标法测定葡萄酒中的人工合成色素[J].中国食品添加剂, 2021, 32(1): 102-106.
DI W S. Determination of synthetic pigment in wine by HPLC internal standard method[J]. China Food Additives, 2021, 32(1): 102-106.
[6] 王丽君.高效液相直接进样法测定葡萄酒中的苋菜红和胭脂红[J].现代食品, 2021(15): 164-166.
WANG L J. Determination of amaranth and carmine in wine by HPLC with direct injection[J]. Modern Food, 2021(15): 164-166.

- [7] 陈东洋, 张昊, 冯家力, 等. 固相萃取—高效液相色谱法同时测定食品中 4 种合成色素[J]. 分析试验室, 2020, 39(2): 203-206.
- CHEN D Y, ZHANG H, FENG J L, et al. Simultaneous determination of four pigments in food by solid phase extraction combined with high performance liquid chromatography[J]. Chinese Journal of Analysis Laboratory, 2020, 39(2): 203-206.
- [8] QI P, ZHOU Q Q, LIN Z H, et al. Qualitative screening and quantitative determination of multiclass water-soluble synthetic dyes in foodstuffs by liquid chromatography coupled to quadrupole Orbitrap mass spectrometry[J]. Food Chemistry, 2021, 360: 129948.
- [9] ABDULLAH A, MOHAMMED A, AHMED A, et al. Fast and simple method for the detection and quantification of 15 synthetic dyes in sauce, cotton candy, and pickle by liquid chromatography/tandem mass spectrometry[J]. Arabian Journal of Chemistry, 2020, 13(2): 3 882-3 888.
- [10] EMAN A, GHADA A E, Omayma M E, et al. Fast sensitive and accurate analysis of the most common synthetic food colorants in 65 egyptian commercial products using new HPLC-DAD and UPLC-ESI-MS/MS methods[J]. Food Analytical Methods, 2022, 15: 3 444-3 457.
- [11] HU Z B, QI P, WANG N, et al. Simultaneous determination of multiclass illegal dyes with different acidic-basic properties in foodstuffs by LC-MS/MS via polarity switching mode[J]. Food Chemistry, 2020, 309: 125745.
- [12] 龚蕾, 韩智, 彭青枝, 等. 超高效液相色谱—串联质谱法同时检测肉制品中 17 种合成色素的含量[J]. 食品工业科技, 2023, 44(21): 309-315.
- GONG L, HAN Z, PENG Q Z, et al. Determination of 17 kinds of synthetic colorants in meat products by UPLC-MS/MS [J]. Science and Technology of Food Industry, 2023, 44(21): 309-315.
- [13] 胡文彦, 刘新梅, 刘其南, 等. 超声辅助提取—液相色谱—串联质谱法同时测定马卡龙中人工合成色素与天然色素[J]. 食品安全质量检测学报, 2019, 10(9): 2 678-2 683.
- HU W Y, LIU X M, LIU Q N, et al. Simultaneous determination of synthetic and natural pigments in macaron with ultrasound-assisted extraction-liquid chromatography-electrospray ionization tandem mass spectrometry[J]. Journal of Food Safety & Quality, 2019, 10(9): 2 678-2 683.
- [14] FREDERIC M, JEAN M O, MARCO M, et al. Determination of 18 water-soluble artificial dyes by LC-MS in selected matrices[J]. Food Chemistry, 2016, 197: 1 249-1 255.
- [15] LI X Q, ZHANG Q H, MA K, et al. Identification and determination of 34 water-soluble synthetic dyes in foodstuff by high performance liquid chromatography-diode array detection-ion trap time-of-flight tandem mass spectrometry[J]. Food Chemistry, 2015, 182: 316-326.
- [16] 王雪莲, 马博雅, 王首忠, 等. 高效液相色谱—串联质谱法同时测定食品中 9 种人工色素[J]. 食品安全质量检测学报, 2018, 9(1): 128-134.
- WANG X L, MA B Y, WANG S Z, et al. Simultaneous determination of 9 kinds of synthetic colorants in food by high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Journal of Food Safety & Quality, 2018, 9(1): 128-134.
- [17] 胡江涛, 何成艳, 刘兴睿, 等. 固相萃取—超高效液相色谱串联质谱法同时测定食品中 8 种禁用色素[J]. 安徽农业科学, 2020, 48(1): 204-207.
- HU J T, HE C Y, LIU X R, et al. Simultaneous determination of eight banned pigments in food by solid phase extraction-high-performance liquid chromatography tandem mass spectrometry[J]. Journal of Anhui Agricultural Sciences, 2020, 48(1): 204-207.
- [18] 杨熙, 吴惠勤, 黄芳, 等. 高效液相色谱—串联质谱法同时测定粉条中 6 种人工合成色素[J]. 分析试验室, 2015, 34(6): 672-676.
- YANG X, WU H Q, HUANG F, et al. Determination of six kinds of synthetic pigments in starch noodles by HPLC-MS/MS[J]. Chinese Journal of Analysis Laboratory, 2015, 34(6): 672-676.
- [19] 陈晓红, 李小平, 赵永纲, 等. 固相萃取超快速液相色谱—串联质谱同时测定熟肉制品中常用人工合成色素[J]. 卫生研究, 2015, 44(4): 636-640.
- CHEN X H, LI X P, ZHAO Y G, et al. An ultrafast liquid chromatography- tandem mass spectrometric method for simultaneous determination of common artificial synthetic pigments in cooked meat products[J]. Journal of Hygiene Research, 2015, 44(4): 636-640.
- [20] 邓欣, 蒋娅兰, 黄芳, 等. 亚 3 微米色谱分离—串联质谱法同时筛查中药材中非法添加的 30 种人工色素[J]. 分析试验室, 2018, 37(4): 454-460.
- DENG X, JIANG Y L, HUANG F, et al. Simultaneous determination of thirty artificial pigments illegally added into the Chinese medicinal materials by sub-three-micron high performance liquid chromatography tandem mass spectrometry[J]. Chinese Journal of Analysis Laboratory, 2018, 37(4): 454-460.
- [21] 聂磊, 葛淑丽, 杨晋青, 等. 超高效液相色谱—质谱法同时测定彩妆中的 17 种禁用合成着色剂[J]. 香料香精化妆品, 2019 (2): 27-32.
- NIE L, GE S L, YANG J Q, et al. Simultaneous determination of seventeen forbidden colorants in cosmetics by high performance liquid chromatography-triple quadrupole tandem mass spectrometry[J]. Flavour Fragrance Cosmetics, 2019(2): 27-32.