

# Research Progress on Speciation Analysis of Lead

Guojun Peng<sup>1,2</sup>, Xiaoyan Zhu<sup>1</sup>, Jianguo Chen<sup>1\*</sup>, Xianzhong Jin<sup>1</sup>, Shaohong Chen<sup>1</sup>, Danyi Wei<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Ningbo Entry-Exit Inspection and Quarantine Bureau, Ningbo

<sup>2</sup>Faculty of Materials Science and Chemical Engineering, Ningbo University, Ningbo

Email: [chenjg@nbcqi.gov.cn](mailto:chenjg@nbcqi.gov.cn), [410066810@qq.com](mailto:410066810@qq.com)

Received: Jun. 3<sup>rd</sup>, 2014; revised: Jun. 11<sup>th</sup>, 2014; accepted: Jun. 23<sup>rd</sup>, 2014

Copyright © 2014 by authors and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

## Abstract

A review on research progress of speciation analysis of lead was presented, with emphasis on the applications of chromatography and capillary electrophoresis hyphenated with spectrometry and mass spectrometry. The prospect of lead speciation analysis was also discussed.

## Keywords

Lead, Speciation Analysis, Determination

# 铅形态分析研究进展

彭国俊<sup>1,2</sup>, 朱晓艳<sup>1</sup>, 陈建国<sup>1\*</sup>, 金献忠<sup>1</sup>, 陈少鸿<sup>1</sup>, 魏丹毅<sup>2</sup>

<sup>1</sup>宁波出入境检验检疫局, 宁波

<sup>2</sup>宁波大学材料科学与化学工程学院, 宁波

Email: [chenjg@nbcqi.gov.cn](mailto:chenjg@nbcqi.gov.cn), [410066810@qq.com](mailto:410066810@qq.com)

收稿日期: 2014年6月3日; 修回日期: 2014年6月11日; 录用日期: 2014年6月23日

## 摘要

围绕色谱、毛细管电泳与光谱、质谱的联用技术及其应用, 综述了铅形态分析的研究进展, 展望了铅形<sup>\*</sup>通讯作者。

态分析的发展前景。

## 关键词

铅, 形态分析, 检测

## 1. 引言

由于现代工农业、交通业的过度发展以及人们环保意识的淡薄, 重金属对水体、土壤以及农作物的污染日趋严重, 铅是最严重的重金属污染物之一。铅在自然界中分布广泛, 又能够在生物体内积蓄, 且因其形态不同, 毒性差异很大。因此, 对于铅元素的分析, 已不能仅仅局限于对铅总量的检测, 痕量铅的形态分析越来越受重视[1] [2]。

元素的形态是指某一元素在环境中实际存在的分子或离子形式, 包括同位素、不同价态、无机化合物、有机络合物、有机金属化合物、大分子络合物等[3]。自然界中铅主要以硫化物结合态、碳酸盐结合态、有机态等形态赋存, 其中, 铅的有机态毒性是无机态毒性的 10~100 倍。曾作为抗爆剂的四烷基铅是有机铅形态的主要来源, 四烷基铅在自然界中不断转化为三烷基铅、二烷基铅和无机铅, 其毒理因不同形态而各不相同。铅易在人体骨骼和软组织中积聚, 引起慢性铅中毒, 导致脑损伤、贫血、神经异常兴奋、肾功能失调等症状, 对健康造成危害[4]。

环境中铅元素形态多样且含量低, 一般在  $\mu\text{g/L}$  至  $\text{ng/L}$  级水平, 故铅形态分析需采用有效的分离手段与灵敏的元素检测器相结合方能实现。分离方法中, 气相色谱(GC)分离技术相对成熟[5]。高效液相色谱(HPLC)则具有常温分离、无需衍生、过程可控等优点。此外, 毛细管电泳技术凭借快速分离、样品用量少、低检测成本等优点在铅形态分析中发挥着重要的作用。元素检测器则多以高灵敏度和高选择性的光谱和等离子体质谱为主。

## 2. 联用技术

### 2.1. 气相色谱(GC)分离技术

以气相色谱为分离系统的联用技术是目前铅形态分析中应用最多、最为成熟的一种分析方法。表 1 列举了近年来以 GC 为分离系统的联用技术在铅形态分析中的应用。GC 主要用于分离挥发性强且热稳定性好的化合物, 对于挥发性差的有机金属类化合物, 则首先要进行衍生生成氢化物或烷基化后再进行 GC 分离。但是, 在衍生过程中易出现衍生化效率低和有机金属化合物的降解等问题, 影响分析结果的准确性[6]。 $\text{NaBH}_4$  是常用的氢化试剂, Gragnard 是常用的烷基化试剂。衍生试剂的选择对分析结果有较大影响, Rosa Peñalver[7] 等用 GC-AES 联用法同时测定有机铅(TML、TEL、TeEL)和有机锰(CMT、MMT), 并分别研究了两种衍生化试剂  $\text{NaBPr}_4$  和  $\text{NaBPh}_4$  对检测限的影响, 结果显示: 使用  $\text{NaBPr}_4$  为衍生剂时灵敏度较用  $\text{NaBPh}_4$  为衍生剂时高出 1~2 个数量级。所以, 在采用 GC 联用技术分析铅形态时, 应选择合适的衍生剂以获得最佳的检测效果。

与 GC 联用的高灵敏检测器主要有原子吸收光谱(AAS)、原子发射光谱(AES)、质谱(MS)、等离子体质谱(ICP-MS)等。由于不同检测器灵敏度存在差异, 找到合适的检测器对铅形态的分析至关重要。E.Beceiro-González 等[5] 考察了 GC-MS 和 GC-MS/MS 两种联用技术在研究有机铅、汞、锡的七种不同形态时的检测效果, 实验结果显示: GC-MS/MS 联用可获得更低的检测限。Josefa R. Baena 等[8] 在采用 GC 联用技术研究有机铅形态时, 对比了三种检测器 EI-MS、MIP-AES 和 ICP-MS 的灵敏度, 得出 ICP-MS

**Table 1.** Speciation analysis of lead by hyphenated technique with Gas Chromatograph  
**表 1. 气相色谱联用技术测定铅的形态**

待测物	基体	预处理	检出限	检测系 <sup>①</sup>	文献
TML, TEL, TeEL	水样、土壤	NaBPr <sub>4</sub> 衍生	0.08~0.10 ng/L	AED	[7]
TML, TEL, DEL, DML	雨水	C <sub>60</sub> , RP-C <sub>18</sub> 吸附 NaBPr <sub>4</sub> 衍生	4.0~12 pg/mL 0.42~0.83 pg/mL 0.40~0.60 pg/mL	MS MIP-AES ICP-TOF-MS	[8]
TML, DML, TEL, DEL	大气固体颗粒	液液萃取 NaBEt <sub>4</sub> 衍生	1.8~9 ng/L	ICP-MS	[9]
Pb <sup>2+</sup> , TML, TEL, DML, DEL	水样	螯合萃取 (加入双硫腙的聚合微珠)	0.12~0.30 ng/mL	AAS	[10]
TML, TEL	海水	NaBPh <sub>4</sub> 衍生	41 ng/L, 25 ng/L	MS	[11]
有机铅	水样	顶空固相微萃取	0.7 μg/L	MS	[12]
TML, TEL	人体尿液	液液萃取	18.4 ng/L, 19.2 ng/L	MS	[13]
TML, DML, TEL, DEL	水样	液液萃取 NaBPr <sub>4</sub> 衍生	0.08~0.13 ng/L	ICP-TOF-MS	[14]
TML, TEL	天然水	顶空固相微萃取 NaBEt <sub>4</sub> 衍生	0.2 ng/L, 0.4 ng/L	MS	[15]
TeML, TeEL	天然水	顶空固相微萃取	1.05 ng/mL, 5.19 ng/mL	MS	[16]
TEL, TML, Pb <sup>2+</sup>	沙土	超临界流体萃取 PeMgBr 衍生	2~19.5 μg/L	MS	[17]
TML, TEL	天然水	顶空固相微萃取	43 ng/L, 22 ng/L 29 ng/L, 14 ng/L	MS	[18]
TML, DML	生物组织和灰尘	顶空固相微萃取	0.03 pg/g, 1.97 pg/g	ICP-TOF-MS	[19]

注: <sup>①</sup>MS 指质谱法; ICP-MS 指电感耦合等离子体质谱法; AAS 指原子吸收光谱法; ICP-TOF-MS 指电感耦合等离子体时间飞行质谱法; AED 指原子发射光谱法; MIP-AES 指微波诱导等离子体原子发射光谱法。

灵敏度最高。在不同基体中铅形态的提取方法以及实验效率的提高方面, 化学工作者们亦做了较多的创新性研究工作。Iván Antonio Leal-Granadillo 等[9]用玻璃纤维过滤器将大气气溶胶吸附到过滤器上, 然后经过液液萃取得到铅形态, 最后采用 GC-ICP-MS 联用技术对样品进行分离检测。Bekir Salih[10]等合成了聚合微珠(EGDMA-HEMA), 富集了溶液中铅的各种形态, 用 GC-AAS 联用技术在 10 分钟内分离测定了无机铅(Pb<sup>2+</sup>)、二甲基铅(DML)、二乙基铅(DEL)、三甲基铅(TML)和三乙基铅(TEL)五种铅形态。Don-Roger Parkinson[12]等研发了一款全自动双臂顶空固相微萃取 - 气相色谱质谱联用(HS-SPME-GC-MS)检测痕量有机金属化合物的装置, 简便高效地分离测定了铅、汞、锡三种元素的多种有机形态。

## 2.2. 液相色谱(HPLC)分离技术

与气相色谱相比, 液相色谱具有更多的优势, 它在室温下实现样品的分离, 简单快速、无需衍生、保持元素原始形态; 此外, 固定相和流动相可灵活变换种类和参数, 使大多数的元素形态得到更好的分离。对于烷基铅及无机铅的分离方法, 通常是在流动相中加入离子对试剂形成络合物后用反相色谱柱进行分离。与 HPLC 联用最多的是 ICP-MS 检测器, 该联用技术接口简单, 检出限低, 成为高灵敏度和高选择性的形态分析系统, 是铅形态分析的主要发展方向。高效液相色谱与各种检测器的联用技术在铅形态分析中的主要应用列于表 2。早在二十世纪九十年代初, Amel Al-Rashdan[20]等就考察了 HPLC-ICP-AES 和 HPLC-ICP-MS 两种联用技术在分离测定无机铅(Pb<sup>2+</sup>)、三甲基铅(TML)、三乙基铅(TEL)和三苯基铅(TPhL)四种铅形态的分析效果, 实验结果显示 HPLC-ICP-MS 的检出限比 HPLC-ICP-AES 高 3 个数量级。从此, HPLC 与 ICP-MS 联用技术在元素形态分析中便得到了广泛应用。Les Ebdon[21]等用反相离子

**Table 2.** Speciation analysis of lead by hyphenated technique with Liquid Chromatograph  
**表 2. 液相色谱联用技术测定铅的形态**

待测物	基体	预处理	检出限	检测系统 <sup>①</sup>	文献
Pb <sup>2+</sup> , TML TEL, TPhL	水样	-	-	ICP-AES ICP-MS	[20]
Pb <sup>2+</sup> , TML, TEL	人造雨水	-	3~14 μg/L	ICP-MS	[21]
TML, TEL	自来水	固相微萃取	11.3 μg/L, 12.6 μg/L	ES-MS	[22]
Pb <sup>2+</sup> , TML, TEL, TPhL	水样	-	1.20~2.33 μg/L	ICP-MS	[23]
Pb <sup>2+</sup> , TML, TEL	鱼肉	微波辅助消解	0.1~0.3 μg/L	ICP-MS	[25]
Pb <sup>2+</sup> , TML, TEL	尿液	-	0.1 μg/L	ICP-MS	[26]
Pb <sup>2+</sup> , TEL, TPhL, TeEL	燃料和微量元素标准物质	-	2.8~77.5 μg/L	ICP-MS	[27]
Pb <sup>2+</sup> , TML, TEL	雨水	-	-	ICP-MS	[28]

注: <sup>①</sup>ICP-AES 指电感耦合等离子体原子发射光谱法; ICP-MS 指电感耦合等离子体质谱法; ES-MS 指电子喷雾质谱法。

对色谱柱分离了 Pb<sup>2+</sup>、TML 和 TEL 三种铅形态, 以 ICP-MS 为检测器, 采用同位素稀释法(IDA)研究了人造雨水中的铅形态。潘元海等[23]建立了高效液相色谱 - 电感耦合等离子体质谱(HPLC-ICP-MS)联用技术研究铅形态的方法, 在近 11 分钟内实现了 Pb<sup>2+</sup>、TML、TEL 和 TPhL 四种铅形态的有效分离。在分析食品、生物样品中的铅形态时 HPLC 联用技术也是常用的方法。Azenha 等[24]采用 RP-HPLC 与 UV、AAS 检测器联用技术, 研究红、白葡萄酒中不同铅形态的体外生物有效性并发现: 红葡萄酒中的铅形态在经过胃肠液消化后改变较大, 更有益于人体健康。Lanfang Chang 等[25]使用反相 LC-ICP-MS 联用技术, 以加拿大 NRCC DORM-2 星鲨的肌肉与 DOLT-3 星鲨的肝脏作为参考样品, 研究了当地市场上的旗鱼的肌肉中的三种铅形态和三种汞形态, 证明了鱼类水产品中的铅形态主要为无机铅。此外, 以 HPLC 为分离系统, 改变洗脱方式, 可以改善分离效果, 提高分析效率。Amel AL-Rashdan 等[27]和 A.A. Brown 等[28]采用合适的梯度洗脱方式, 实现了多种铅形态的快速有效分离, 大大提高了分析效率。

### 2.3. 毛细管电泳(CE)分离技术

毛细管电泳(CE)主要是以弹性石英毛细管为分离通道, 以高压直流电场为驱动力, 依据样品中各组分之间淌度和分配行为上的差异来实现分离的分析方法, 它在元素形态分析研究中意义重大。与传统的色谱分离技术相比, CE 具有分离效果好、分析时间短、样品用量少且检测成本低等优点, 近年来引起了众多分析工作者的重视。与 CE 联用的检测器主要有紫外光谱(UV)、质谱(MS)、电感耦合等离子体质谱(ICP-MS)等。Jorge Muse[29]等详细介绍了毛细管电泳(CE)作为一种高效、经济的分离手段与光谱、质谱等检测器的联用技术在元素形态分析中的应用, 展望了 CE 的发展前景。A.R. Timerbaev[30]等对 CE 与 ICP-MS 和 ES-MS 的联用技术在样品的生物形态分析中的应用进行了综述, 指出在实际生物样品元素分析中, 该技术在分离、检测策略等方面的优势和不足。T. Lee 和 S.J. Jiang[31]将鱼和蚝样品中的无机铅和有机铅萃取出后, 用 CE-ICP-MS 联用技术对其进行分离检测。Wuping Liu[32]等以 EDTA 为衍生剂, 同时对九种有机和无机铅、汞、硒形态柱外衍生成具有紫外吸收的螯合物, 经过 CE 分离后, 进行紫外(UV)检测器直接检测, 并将方法应用于海水样品中的铅、汞、硒形态的分析。

### 3. 其他分析方法

在铅形态分析中, 除气相色谱、液相色谱、毛细管电泳与各种检测器的联用技术应用较多之外, 分

析化学工作者们对电化学方法、电子喷雾质谱法以及毛细管电色谱法在铅形态的分析方面的应用也进行了一定的探索。电化学分析方法具有仪器设备简单、灵敏度高、易于自动化、消耗样品量少、破坏性小等优点，但是灵敏度和选择性相对较差，无法定量测定出所有的烷基铅离子[33]。Fischer[34]等选用灵敏度最佳的CB作络合配体，优化了实验条件，并测定了湖水样品中铅的形态。

电喷雾质谱技术(ES-MS)可以对复杂基体样品直接进行质谱分析，不仅可以检测元素形态，还可以直接得到分子结构，完善了元素的形态分析领域，但目前在铅形态的分析中的应用较少。贾滨等[35]对电喷雾质谱技术的工作原理以及在实际样品分析中的实现方式和技术特点进行了综述。Chen ZuLiang 等[36]采用电喷雾质谱技术确认了水溶液中四种铅的螯合物的存在，为之后的分离检测提供了依据。

毛细管电色谱(CEC)以内含色谱固定相的毛细管为分离柱，兼具毛细管电泳及高效液相色谱的双重分离机理，既可分离带电物质也可分离中性物质。目前，CEC与高灵敏度的检测器ICP-MS联用已成功运用于砷、镉、硒等元素的形态研究中[37]，而在铅形态分析中的应用尚未见报道，值得化学工作者们的进一步探索。

## 4. 展望

对于铅形态分析，高效液相色谱凭借其无需衍生、常温下分离以及简单、高效的分离效果仍将为的分析化学工作者所青睐；毛细管电泳或电色谱由于其分离效果好、样品用量少、分析成本低，将是一种具有发展前景的分离手段。而在元素检测器技术方面，高灵敏度的ICP-MS无疑是目前为止最为可靠的选择。

## 致 谢

感谢宁波市自然科学基金(计划编号为2011A610084)的经济资助。

## 参考文献 (References)

- [1] 方勇, 杨文建, 陈悦, 马宁, 胡秋辉 (2013) 重金属的化学形态及其食品安全. *中国粮油学报*, **6**, 123-128.
- [2] 陈维, 周耀明, 张倩倩, 杨小弟 (2005) 萃取技术和联用技术在铅的形态分析中的应用. *常熟理工学院学报*, **2**, 45-51.
- [3] 梁淑轩, 孙汉文 (2003) 痕量元素形态分析技术及其应用研究进展. *理化检验——化学分册*, **7**, 434-439.
- [4] 吴宏, 黄德乾, 金焰, 田野, 毕树平 (2008) 环境样品中铅、锑、汞、硒形态分析研究进展. *环境检测管理与技术*, **4**, 9-17.
- [5] Beceiro-González, E., Guimaraes, A. and Alpendurada, M.F. (2009) Optimisation of a headspace-solid-phase micro-extraction method for simultaneous determination of organometallic compounds of mercury, lead and tin in water by gas chromatography-tandem mass spectrometry. *Journal of Chromatography A*, **1216**, 5563-5569.
- [6] 周群芳, 江桂斌 (2002) 气相色谱法在有机锡形态化合物形态分离与测定中的应用. *分析科学学报*, **3**, 240-246.
- [7] Peñalver, R., Campillo, N. and Hernández-Córdoba, M. (2011) Comparison of two derivatization reagents for the simultaneous determination of organolead and organomanganese compounds using solid-phase microextraction followed by gas chromatography with atomic emission detection. *Talanta*, **87**, 268-275.
- [8] Baena, J.R., Gallego, M. and Valcárcel, M. (2001) Comparison of three coupled gas chromatographic detectors (MS, MIP-AES, ICP-TOFMS) for organolead speciation analysis. *Analytical Chemistry*, **73**, 3927-3934.
- [9] Leal-Granadillo, I.A., Alonso, J.I.G. and Sanz-Medel, A. (2000) Determination of the speciation of organolead compounds in airborne particulate matter by gas chromatography-inductively coupled plasma spectrometry. *Analytica Chimica Acta*, **423**, 21-29.
- [10] Salih, B. (2000) Speciation of inorganic and organolead compounds by gas chromatography-atomic absorption spectrometry and the determination of lead species after pre-concentration onto diphenylthiocarbazone-anchored polymeric microbeads. *Spectrochimica Acta Part B*, **55**, 1117-1127.
- [11] Campillo, N., Cacho, J.I., Marín, J., Viñas, P. and Hernández-Córdoba, M. (2014) Ultrasound-assisted emulsification microextraction of organolead and organomanganese compounds from seawater and their determination by GC-MS.

*Microchimica Acta*, **181**, 97-104.

- [12] Parkinson, D.R., Bruheim, I., Christ, I. and Pawliszyn, J. (2004) Full automation of derivatization—Solid-phase microextraction-gas chromatography-mass spectrometry with a dual-arm system for the determination of organometallic compounds in aqueous samples. *Journal of Chromatography A*, **1025**, 77-84.
- [13] Pons, B., Carrera, A. and Nerín, C. (1998) Speciation of ionic alkyllead compounds in human urine by gas chromatography-mass spectrometry after butylation through a Grignard reaction. *Journal of Chromatography B: Biomedical Sciences and Applications*, **716**, 139-145.
- [14] Heisterkamp, M. and Adams, F.C. (2001) Gas chromatography-inductively coupled plasma—Time-of-flight mass spectrometry for the speciation analysis of organolead compounds in environmental water samples. *Fresenius' Journal of Analytical Chemistry*, **370**, 597-605.
- [15] Centineo, G., González, E.B. and Sanz-Medel, A. (2004) Multielemental speciation analysis of organometallic compounds of mercury, lead and tin in natural water samples by headspace-solid phase microextraction followed by gas chromatography-mass spectrometry. *Journal of Chromatography A*, **1034**, 191-197.
- [16] 帅琴, 杨薇, 张生辉, 郑楚光, 郑岳君 (2004) 顶空固相微萃取 - 气相色谱质谱联用测定烷基铅的研究. *分析试验室*, **2**, 14-17.
- [17] Zúñiga, M.C., Jover, E., Arancibia, V. and Bayona, J.M. (2009) Development of a methodology for the simultaneous determination of inorganic and organolead compounds using supercritical fluid extraction followed by gas chromatography-mass spectrometry and its application to environmental matrices. *Talanta*, **80**, 504-510.
- [18] Gonzalvez, A., Cervera, M.L., Armenta, S. and de la Guardia, M. (2009) A review of non-chromatographic methods for speciation analysis. *Analytica Chimica Acta*, **636**, 129-157.
- [19] Jitaru, P., Infante, H.G. and Adams, F.C. (2004) Simultaneous multi-elemental speciation analysis of organometallic compounds by solid-phase microextraction and multicapillary gas chromatography hyphenated to inductively coupled plasma-time of flight-mass spectrometry. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, **19**, 867-875.
- [20] Al-Rashdan, A., Heitkemper, D. and Caruso, J.A. (1991) Lead speciation by HPLC-ICP-AES and HPLC-ICP-MS. *Journal of Chromatographic Science*, **29**, 98-102.
- [21] Ebdon, L., Hill, S.J. and Rivas, C. (1998) Lead speciation in rainwater by isotope dilution-high performance liquid chromatography-inductively coupled plasma-mass spectrometry. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, **53**, 289-297.
- [22] Mester, Z., Lord, H. and Pawliszyn, J. (2000) Speciation of trimethyllead and triethyllead by in-tube solid phase microextraction high-performance liquid chromatography electrospray ionization mass spectrometry. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, **15**, 595-600.
- [23] 潘元海, 刘湘生, 何小青, 王长华 (2005) 铅形态的高效液相色谱 - 电感耦合等离子体质谱分析. *分析化学研究简报*, **11**, 1560-1564.
- [24] Azenha, M.A.G.O. and Vasconcelos, M.T.S.D. (2000) Assessment of the Pb and Cu *in Vitro* availability in wines by means of speciation procedures. *Food and Chemical Toxicology*, **38**, 899-912.
- [25] Chang, L.F., Jiang, S.J. and Sahayam, A.C. (2007) Speciation analysis of mercury and lead in fish samples using liquid chromatography-inductively coupled plasma mass spectrometry. *Journal of Chromatography A*, **1176**, 143-148.
- [26] Shum, S.C.K., Pang, H. and Houk, R.S. (1992) Speciation of mercury and lead compounds by microbore column liquid chromatography-inductively coupled plasma mass spectrometry with direct injection nebulization. *Analytical Chemistry*, **64**, 2444-2450.
- [27] AL-Rashdan, A., Vela, N.P. and Caruso, J.A. (1992) Lead speciation by gradient high-performance liquid chromatography with inductively coupled plasma mass spectrometric detection. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, **7**, 551-555.
- [28] Brown, A.A., Ebdon, L. and Hill, S.J. (1994) Development of a coupled liquid chromatography-isotope dilution inductively coupled plasma mass spectrometry method for lead speciation. *Analytica Chimica Acta*, **286**, 391-399.
- [29] Muse, J., Tripodi, V. and Lucangioli, S. (2014) An overview of capillary electrophoresis in element speciation analysis of the environment. *Current Analytical Chemistry*, **10**, 225-230.
- [30] Timerbaev, A.R. (2009) Capillary electrophoresis coupled to mass spectrometry for biospeciation analysis: Critical evaluation. *Trends in Analytical Chemistry*, **28**, 416-425.
- [31] Lee, T. and Jiang, S.J. (2005) Speciation of lead compounds in fish by capillary electrophoresis-inductively coupled plasma mass spectrometry. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, **20**, 1270-1274.
- [32] Liu, W. and Lee, H.K. (1998) Use of triethylenetetraminehexaacetic acid combined with field-amplified sample injection in speciation analysis by capillary electrophoresis. *Analytical Chemistry*, **70**, 2666-2675.

- [33] 孙微, 王磊, 李一峻, 何锡文 (2004) 电化学分析方法在元素形态分析中的应用. *分析化学评述与进展*, **4**, 541-545.
- [34] Fischer, E. and van den Berg, C.M.G. (2001) Determination of lead complexation in lake water by cathodic stripping voltammetry and ligand competition. *Analytica Chimica Acta*, **432**, 11-20.
- [35] 贾滨, 张兴磊, 丁健桦, 杨水平, 陈焕文 (2012) 电喷雾萃取电离萃取技术及其应用进展. *科学通报*, **20**, 1918-1927.
- [36] Chen, Z., Owens, G., Kim, K.R. and Naidu, R. (2007) Confirmation of lead aminocarboxylic complex formation using electrospray ionization mass spectrometry and speciation by anion-exchange chromatography coupled with ICP-MS. *Analytica Chimica Acta*, **599**, 163-169.
- [37] Chen, W.H., Lin, S.Y. and Liu, C.Y. (2000) Capillary electrochromatographic separation of metal ion species with on-line detection by inductively coupled plasma mass spectrometry. *Analytica Chimica Acta*, **410**, 25-35.