

陶瓷釉层中铅溶出量的数学预测模型

肖黎, 孙长江, 董占华, 李健, 杜津, 李婉莹
(曲阜师范大学, 山东 日照 276826)

摘要: **目的** 探究陶瓷釉层中重金属铅溶出量的数学预测模型, 建立重金属铅的快速溶出和检测方法。**方法** 通过溶出实验测得在不同温度、不同时间下铅的溶出量数据, 然后分析铅溶出量与溶出时间、溶出温度的关系, 找到其中规律, 通过数据拟合构建铅溶出量对时间、温度的数学预测模型, 从而实现铅的快速溶出与测定。**结果** 构建的铅溶出量预测模型对体积分数为4%的乙酸溶出实验数据进行拟合, 得出相关系数(R^2)大于0.98; 用体积分数为8%, 14%的乙酸浸泡液中铅的溶出量实验数据对模型进行验证, 结果发现 R^2 均大于0.98; 用前5 h实验数据拟合的模型参数, 对8~24 h的铅溶出量进行预测, 预测结果与实验数据的Pearson相关系数皆大于0.99。**结论** 铅溶出量预测模型能够很好地拟合实验数据, 通用性较强, 可以预测出22℃下24 h时铅的溶出量, 从而能够实现陶瓷釉层中铅的快速溶出与测定。**关键词:** 陶瓷釉层; 重金属; 溶出; 预测模型

中图分类号: TS206.4 文献标识码: A 文章编号: 1001-3563(2020)07-0083-08

DOI: 10.19554/j.cnki.1001-3563.2020.07.011

Mathematical Prediction Model for the Release of Lead in Ceramic Glaze

XIAO Li, SUN Chang-jiang, DONG Zhan-hua, LI Jian, DU Jin, LI Wan-ying
(Qufu Normal University, Rizhao 276826, China)

ABSTRACT: The work aims to explore the mathematical prediction model for the lead release in ceramic glaze and establish a rapid extraction and detection method for toxic metal lead. The data of release of lead extracted at different temperatures and at different time were measured by the extraction experiment. Then, the relationship among lead release, dissolution time and dissolution temperature was analyzed to find the law of lead release. A mathematical prediction model of the lead release versus time and temperature was established by fitting the experimental data, thus achieving the rapid extraction and determination of the lead. The established lead release prediction model fitted the release of lead extracted by the acetic acid with volume fraction of 4%, and the correlation coefficient (R^2) was greater than 0.98. The proposed model was verified by the release of lead in acetic acid solution with volume fraction of 8% and 14%, and the results showed that R^2 was greater than 0.98. The model parameters fitted with the experimental data for the first 5 h were used to predict the lead release for 8-24 h. Pearson correlation coefficient between the predicted results and the experimental data was greater than 0.99. The lead release prediction model can properly fit the experimental data and has strong

收稿日期: 2019-10-08

基金项目: 国家自然科学基金(31601557); 曲阜师范大学科技计划(xkj201616); 国家级大学生创新创业训练计划(201710446019)

作者简介: 肖黎(1995—), 女, 曲阜师范大学硕士生, 主攻食品包装; 孙长江(1996—), 男, 学士, 主要研究方向为食品包装。

通信作者: 董占华(1982—), 女, 博士, 曲阜师范大学副教授、硕导, 主要研究方向为食品包装与安全。

universality. It can predict the lead release for 24 h at 22 °C, so as to achieve rapid extraction and determination of the lead in ceramic glaze.

KEY WORDS: ceramic glaze; heavy metal; migration; prediction model

近年来,世界各地食品卫生安全事件频发,食品安全形势严峻,与食品直接接触的包装材料对食品安全的影响也不得不令人重视,食品包装材料的安全性研究也日渐成为食品安全科学领域的研究热点^[1-7]。陶瓷作为一种重要的包装材料,有良好的物理强度和耐腐蚀性,同时兼具美观、易漂洗等优良特性,深受人们喜爱。但是日用陶瓷中铅、镉等重金属有害物质向被包装食品中的迁移已经成为影响食品安全的重要因素。为了保护国民身体健康,许多国家和地区都制定了陶瓷类食品包装材料中重金属溶出的限量标准和对应检测方法^[8-11]。目前国内外对陶瓷材料中铅、镉的检测方法大致相同,都是在避光条件下对与食物接触的表面用体积分数为4%的乙酸溶液在(22±2)°C条件下浸泡24 h±20 min,然后用仪器测定其溶出量。标准检测方法周期较长,不能满足当前陶瓷出口任务急、交货周期短的要求,特别是对于同一厂家生产的多批次同种陶瓷材料进行检测时,每批次都需要进行24 h以上的测定,浪费大量时间和人力物力。为了提高检测效率,节约资源,探究一种重金属快速溶出与检测的方法势在必行。文中对陶瓷釉层中铅溶出量与溶出时间、溶出温度的相关性进行研究,根据溶出量随时间、温度变化的特点,拟合构建铅溶出量随溶出时间、溶出温度变化的数学模型,并且运用实验数据进行验证和预测。

1 实验

1.1 原理与方法

陶瓷釉层中重金属的溶出一般会受到温度、时间等因素的影响^[12-15]。随着温度的升高、时间的延长,重金属的溶出量会增大。通过在0.5~24 h, 20~60 °C等条件下的实验得到铅溶出量的实验数据,分析数据找到其中规律,根据规律拟合出曲线,确定出铅溶出量的数学预测模型。同时用体积分数为8%, 14%的乙酸溶液进行实验,用于检验模型。由于同一工厂产出的不同批次的同种产品,其原材料、制作工艺及生产条件等基本相同,在此条件下,可以通过该模型进行短时间高温实验,预测出国标条件(22 °C, 24 h)下铅的溶出量,从而缩短溶出时间,提高了实验效率,实现快速检测。

1.2 仪器与材料

主要仪器: Prodigy7 电感耦合等离子体发射光谱仪(美国利曼公司), MGC-450HP-2 智能人工气候箱(上海一恒科学仪器有限公司), TS-RO-100L/h 实验室超纯水设备(陶氏水处理设备有限公司), XMT-8000 自动温控烧制炉(淄博华兴窑炉技术有限公司)。

主要材料: 铅国家标准溶液(1 g/L), 济南众标科技有限公司; 冰乙酸, 分析纯, 国药集团化学试剂有限公司; 铅丹、石英、长石、高岭土、氢氧化钙、碱性洗涤剂(洗洁精, 符合 GB/T 9985, 上海和黄白猫有限公司)。

1.3 陶瓷样品制备

选用宜兴陶瓷公司生产的850 °C高温素烧过的陶瓷坯体, 经过除尘处理后进行施釉, 干燥后放入自动温控烧制炉中釉烧以制成陶瓷样品。再取陶瓷样品根据国家标准在多种温度时间条件下进行浸泡溶出实验。

釉料主要配方为: 铅丹(氧化铅) 60 g、石英(硅微粉) 20 g、长石(钾长石粉) 5 g、高岭土(煅烧高岭土) 8 g、氢氧化钙 7 g。该配方中主要含有 SiO₂, Al₂O₃, CaO, Na₂O, K₂O, Fe₂O₃, MgO, PbO 等成分。

将釉料和去离子水放入球磨机中球磨1 min后配制釉浆,(釉浆相对密度控制在1.38~1.40范围内,)然后将陶瓷坯体浸入釉浆中进行施釉, 2 s后取出放置于阴凉通风处自然晾干。再将施釉干燥后的陶瓷坯体放入烧制炉中, 在1020 °C高温下进行釉烧。进行浸泡溶出实验之前, 把烧制完成的陶瓷样品用碱性洗涤剂洗净后用清水冲洗6遍, 后用去离子水冲洗3遍, 烘干备用。

1.4 溶出实验

根据 GB 31604.49^[16]配制体积分数为4%的乙酸作为浸泡液。为了检验实验结果, 同时配制体积分数为8%和14%的乙酸进行对比实验。准确量取冰乙酸40, 80, 140 mL, 分别转移至1 L容量瓶中, 定容, 摇匀, 配制得到体积分数为4%, 8%, 14%的乙酸溶液, 装瓶备用。

将人工气候箱温度设置为20 °C, 待温度恒定后, 将陶瓷样品分别完全浸入体积分数为4%, 8%和14%的乙酸溶液中放入人工气候箱, 分别于实验0.5, 1, 2, 5, 8, 12, 18, 24 h时各取2 mL浸出液作为样本, 并对其标记, 取样后及时补充等量等体积分数的

乙酸溶液,完成 1 次溶出实验。以此法在 30, 40, 50, 60 °C 条件下再各进行 1 次溶出实验。

1.5 重金属铅的测定

取 1 g/L 的标准铅溶液 2 mL, 转移到 100 mL 容量瓶中, 定容, 摇匀, 得到体积分数为 20 mg/L 的铅标准溶液。再分别取 0.5, 2.5, 5, 25 mL 体积分数为 20 mg/L 的铅溶液, 分别置于 100 mL 的容量瓶中, 定容, 摇匀, 得到 0.1, 0.5, 1, 5, 20 mg/L 的系列标准铅溶液, 装瓶备用。

用电感耦合等离子体发射光谱仪测定配制好的系列标准溶液, 选定铅元素波长为 220.353 nm, 与标准溶液实际浓度对比, 得到元素的标准曲线和相关系数。铅元素信号值与浓度呈现出良好的线性关系, 相关系数为 0.9996, 检出限为 0.009 mg/L, 符合实验要求, 可以进行测定实验。

用电感耦合等离子体发射光谱仪测定浸泡液样本中铅元素的浓度。

2 结果与分析

2.1 铅溶出量与溶出时间的关系

通过电感耦合等离子体发射光谱仪测定得到铅

向乙酸溶液的迁移数据见图 1。

由图 1 可知, 实验进行的前 2 h 铅溶出得较快, 随着时间的推移, 溶出速度减缓。这是由于随着样品中铅离子的迁移溶出, 陶瓷表面形成了 1 层富硅层, 对铅的溶出起到了扩散屏障的作用^[17]。此外, 铅的溶出量也受到实验温度的影响, 温度越高, 溶出量越大。

2.2 铅溶出量的经验公式

很多学者对陶瓷中铅的溶出动力学进行了研究, 并推导出模拟铅在酸溶液中浸出的经验公式^[12,14-15], 目前较为典型的经验公式有:

$$C = a \exp(-bt^{-c}) \quad (1)$$

$$C = a\sqrt{t} \quad (2)$$

$$C = a\sqrt{t} + bt \quad (3)$$

式中: C 为铅的溶出质量浓度 (mg/L); t 为溶出时间 (h); a, b, c 为各公式参数。

用式 (1—3) 对体积分数为 4% 的乙酸实验数据进行了拟合, 拟合图像见图 2。

为了对各个公式的准确性进行评价, 利用 Matlab 计算以下 4 个统计学评价指标, 同时从公式是否方便后续研究铅溶出量与温度的关系等方面对其进行评价。

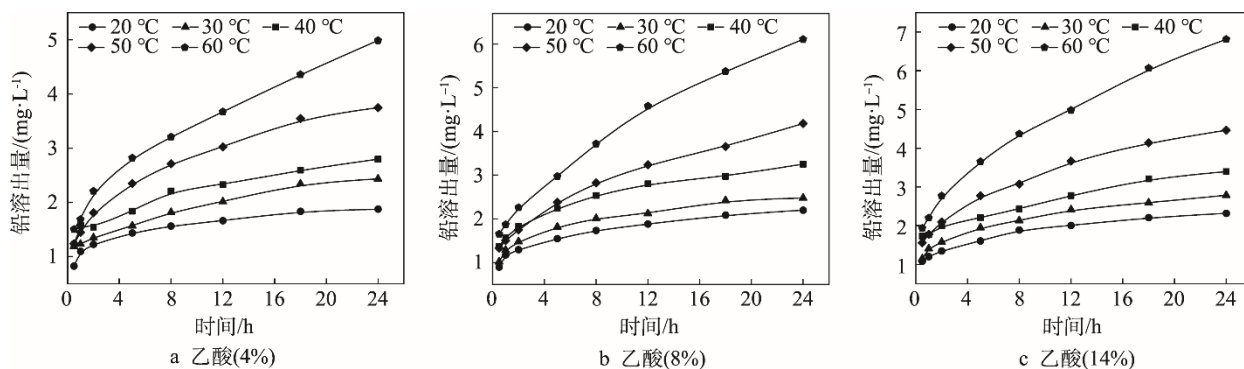


图 1 铅向乙酸浸泡液迁移的质量浓度

Fig.1 Mass concentration of lead released to acetic acid

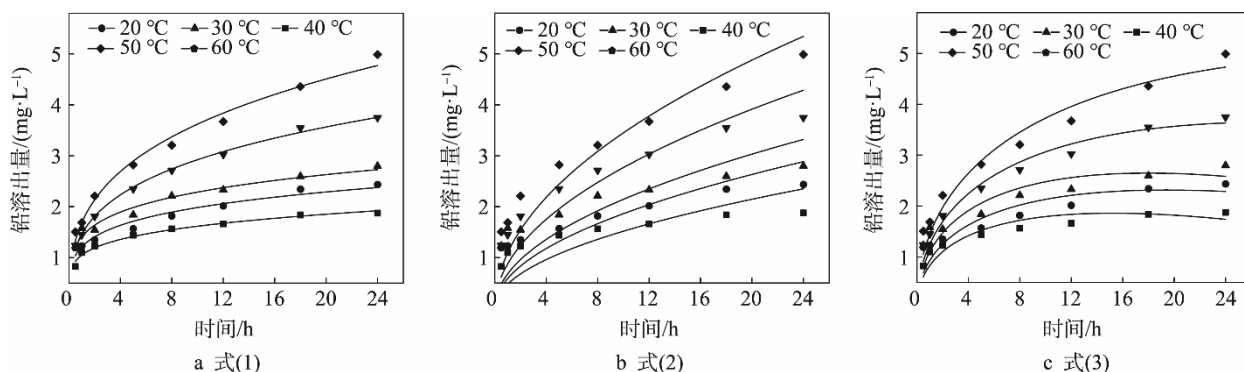


图 2 已有公式对实验数据的拟合结果

Fig.2 Fitting results of experimental data with the existing formulas

1) R -square (决定系数)。 $R^2 = 1 - \frac{\sum (C_a - C_p)^2}{\sum (C_a - \bar{C}_a)^2}$,

R^2 越接近 1, 公式拟合效果越好。

2) Adjusted R -square (决定校正系数)。其值越接近 1, 拟合效果越好。

3) SSE (误差平方和)。其值越接近 0, 拟合效果越好。

4) RMSE (标准差)。表示实验数据与拟合值之间的标准误差, 其值越接近 0 越好。

上述 4 个评价指标中, C_a 为铅浓度的拟合值 (mg/L); C_p 为铅浓度的实验测定值 (mg/L); $\bar{C}_a$ 为铅浓度拟合值的均值 (mg/L); n 为样本数量; p 为特征数量。

根据这些评价指标对已有的 3 个公式用此次实验数据拟合的结果进行评价, 公式的评价指标见表 1。

表 1 已有公式拟合后的评价指标
Tab.1 Evaluation indicators of the existing fitting formulas

实验温度/°C	评价指标	式(1)	式(2)	式(3)
20	R^2	0.982	-0.427	0.779
	R_a^2	0.974	-0.427	0.742
30	R^2	0.958	0.047	0.705
	R_a^2	0.941	0.047	0.656
40	R^2	0.970	-0.047	0.733
	R_a^2	0.958	-0.047	0.689
50	R^2	0.997	0.746	0.961
	R_a^2	0.996	0.746	0.955
60	R^2	0.987	0.843	0.950
	R_a^2	0.982	0.843	0.942
SSE		0.313	8.480	2.059
RMSE		0.088	0.460	0.227

由图 2 可知, 式 (1) 的预测值与实测值更为接近, 式 (2—3) 的预测值相比实测值偏差较大, 式 (3) 出现了负增长。同时通过表 1 也不难看出, 式 (1) 的 R^2 和 R_a^2 都在 0.9 以上, 式 (2—3) 的 R^2 和 R_a^2 的部分数值达不到 0.8, 证明式 (1) 描述的铅溶出量随时间的变化规律与其实规律更接近, 式 (2—3) 描述的规律与实际有偏差。同时, 通过表 1 还能发现式 (1, 3) 的 SSE 和 RMSE 与式 (2) 相比更小, 证明式 (1, 3) 的拟合值与实验数据的偏差较式 (2) 更小。通过以上分析发现, 式 (1) 的拟合效果最好, 式 (3) 次之, 式 (2) 的拟合效果最差。

同时, 这 3 个公式都描述了铅溶出量随时间的变化规律, 没有考虑溶出温度对铅溶出量的影响, 这不能充分体现陶瓷中铅溶出的规律, 因此, 文中在参考

这些经验公式的基础上, 结合铅溶出量的实验数据, 探究二元函数公式, 构建铅溶出量受时间温度共同影响的数学预测模型。

3 铅溶出量数学预测模型

3.1 铅溶出量的动力学分析

通过分析发现, 在一定温度下, 铅溶出量 C 与溶出时间 t 成幂函数关系。初步用幂函数对数据进行拟合, 拟合公式为:

$$C = a \times b^t \quad (4)$$

式中: C 为铅溶出量 (mg/L); t 为溶出时间 (h); a, b 为公式参数。式 (4) 对图 1 实验数据拟合的结果见图 3, 参数及部分评价指标见表 2。

表 2 各温度下式 (4) 的参数及 R^2
Tab.2 Parameters and R^2 of formula (4) at different temperatures

温度/°C	a	b	R^2
20	1.046	0.190	0.984
30	1.209	0.214	0.962
40	1.413	0.208	0.972
50	1.469	0.297	0.998
60	1.696	0.328	0.989

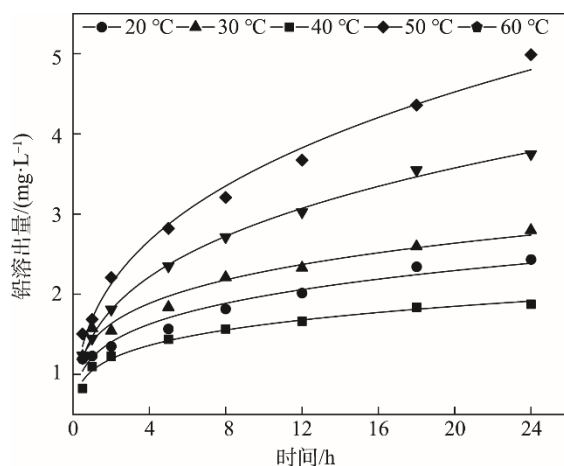


图 3 式(4)对实验数据拟合的结果

Fig.3 Fitting results of experimental data with formula (4)

从图 3 可以看出, 曲线的预测值与实际数据点非常接近, 从表 2 可知, 式 (4) 对不同温度铅溶出量拟合的相关系数均在 0.95 以上, 这说明公式与数据点相关性较好, 证明该函数的拟合效果好。另外通过对表 2 中用式 (4) 对铅溶出量拟合得到的参数 a 和 b 进行分析发现, 不同温度下 a 和 b 的参数各不相同, 这说明 a 和 b 可能与温度相关, 下面将对参数 a, b 与温度的关系进行分析。

3.2 温度对溶出量的影响

把不同温度下式 (4) 的参数 a 和 b 绘制为散点图, 见图 4。

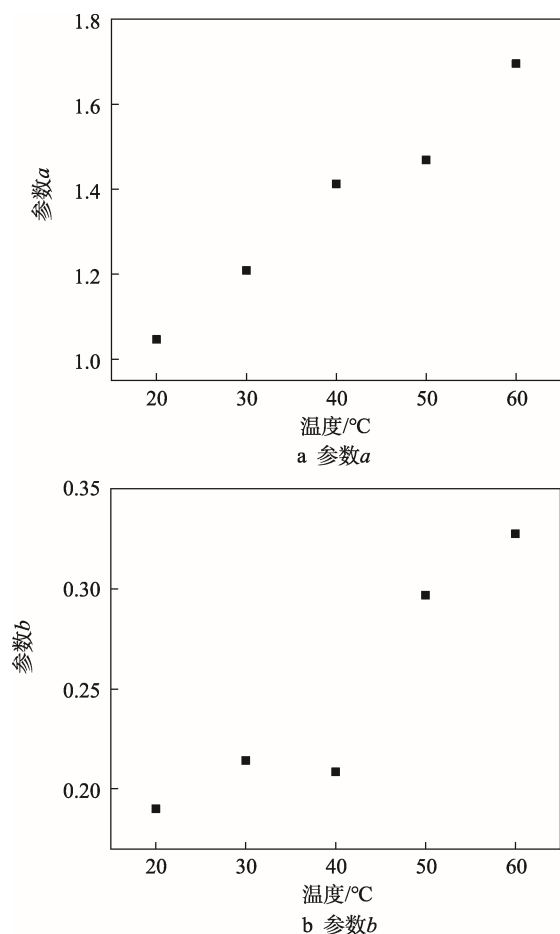


图 4 不同温度下的参数

Fig.4 Parameters at different temperatures

用 Origin 对数据和图像进行拟合发现, 参数 a 与温度 t 为三次函数关系, 函数如式 (5), 参数 b 的自然对数与温度 t 为二次函数关系, 函数如式 (6)。

$$a = a_0 + a_1 t + a_2 t^2 + a_3 t^3 \quad (5)$$

$$b = \exp(b_0 + b_1 t + b_2 t^2) \quad (6)$$

式中: a, b 为式 (1) 的参数; t 为溶出温度 (°C); 初步推测参数 a_0-a_3, b_0-b_2 可能受陶瓷样品的种类、烧成温度、釉料配方等其他因素的影响, 具体情况有待进一步研究。其中, 参数值 a_0 为 0.181, a_1 为 0.065, a_2 为 -1.310×10^{-3} , a_3 为 1.079×10^{-5} , b_0 为 -1.730 , b_1 为 -4.607×10^{-4} , b_2 为 1.835×10^{-4} 。

3.3 铅溶出量数学预测模型的构建

由式 (4—6) 可得出, 陶瓷中铅溶出量-温度-时间的数学预测模型为:

$$C = (a_0 + a_1 t + a_2 t^2 + a_3 t^3) \times \theta^{\exp(b_0 + b_1 t + b_2 t^2)} \quad (7)$$

式中: C 为陶瓷釉层中重金属铅溶出量 (mg/L);

θ 为溶出时间 (h); t 为溶出温度 (°C); a_0-a_3, b_0-b_2 为模型的参数。

把体积分数为 4% 的乙酸实验数据代入数学预测模型中进行曲面拟合验证, 拟合图像见图 5, 评价指标 R^2 为 0.990, R_a^2 为 0.988, SSE 为 0.352, RMSE 为 0.938。

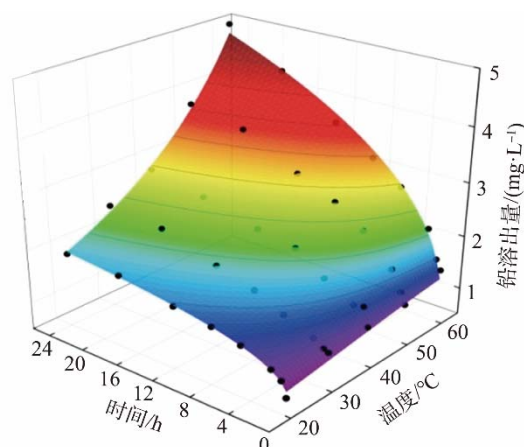


图 5 模型与实测数据的拟合图像

Fig.5 Fitting image between model and measured data

通过图 5 发现, 实际铅浓度在模型图像上下极小范围内均匀分布, 说明预测值与实测值的偏差较小。通过表 4 可以看出, R^2 和 R_a^2 均大于 0.98, 说明该模型对体积分数为 4% 的乙酸实验数据拟合效果较好, 能较好地描述铅溶出量与温度和时间关系。同时, SSE 和 RMSE 较小, 也能说明该模型拟合效果好。

3.4 模型的通用性检验

为了验证模型对不同浓度乙酸浸泡液实验数据的通用性, 该模型对体积分数为 8%, 14% 的乙酸浸泡液溶出实验数据进行了拟合, 模型拟合图像见图 6, 模型参数及评价指标见表 3。

由图 6 可知, 模型的预测值相比实际值差距较小。同时分析表 5 数据可知, R_a^2 均在 0.98 以上, 说明模型能体现铅溶出量随时间和温度变化的规律, RMSE 均在 1 以下, 说明拟合偏差小, 所以该模型也能拟合体积分数为 8%, 14% 的乙酸实验数据, 即模型通用性强。

3.5 模型的预测能力检验

把 3 种浸泡液前 5 h 的实验数据代入数学预测模型中, 求出 8~24 h 铅溶出量的预测值。把预测值与实际的测定值进行对比, 见表 4, 过程中求出的参数见表 5。通过计算发现三者的 Pearson 相关系数分别为 0.995, 0.995 和 0.996, 均在 0.8~1.0 范围内, 为极显著相关。此外, 用模型对国标条件 (22 ± 2 °C, 24 h) 铅溶出量进行预测, 结果为 1.846 mg/L, 实际测定值

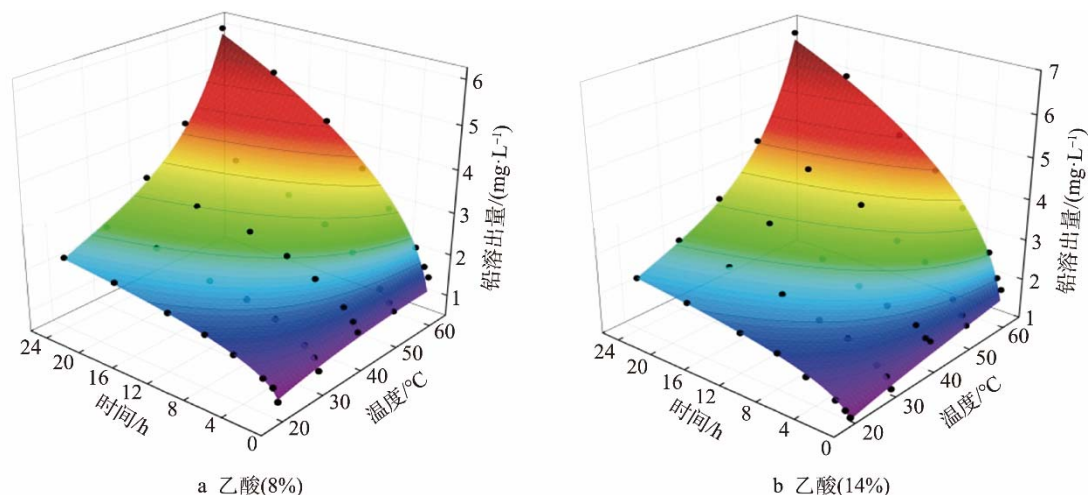


图 6 不同浸泡液数据拟合的图像
Fig.6 Fitting images of different solution data

表 3 体积分数为 8%, 14% 的乙酸浸泡液溶出数据拟合的参数
Tab.3 Fitting parameters of the release of lead in 8% and 14% acetic acid solution

参数及评价指标	a_0	a_1	a_2	a_3	b_0	b_1
乙酸(8%)	0.458	0.043	-6.258×10^{-4}	4.263×10^{-6}	-1.339	-0.019
乙酸(14%)	0.484	0.048	-7.977×10^{-4}	7.476×10^{-6}	-1.273	-0.024
参数及评价指标	b_2	R^2	R_a^2	SSE	RMSE	
乙酸(8%)	4.288×10^{-4}	0.99	0.988	0.521	0.114	
乙酸(14%)	4.651×10^{-4}	0.992	0.991	0.501	0.112	

表 4 浸泡液在 8~24 h 铅溶出量的实测值与式 (7) 预测值对比
Tab.4 Comparison of measured release of lead in the solution for 8-24 h and lead release predicted with formula (7)

温度/°C	时间/h	乙酸(4%)/(mg·L ⁻¹)		乙酸(8%)/(mg·L ⁻¹)		乙酸(14%)/(mg·L ⁻¹)	
		实测值	预测值	实测值	预测值	实测值	预测值
20	8	1.565	1.525	1.737	1.718	1.889	1.828
20	12	1.663	1.636	1.885	1.877	2.005	1.990
20	18	1.838	1.756	2.086	2.050	2.207	2.166
20	24	1.876	1.846	2.201	2.183	2.319	2.300
30	8	1.818	1.771	2.012	2.116	2.132	2.114
30	12	2.016	1.901	2.123	2.317	2.414	2.275
30	18	2.344	2.039	2.422	2.537	2.593	2.449
30	24	2.435	2.143	2.479	2.706	2.787	2.580
40	8	2.211	2.065	2.536	2.381	2.438	2.445
40	12	2.329	2.231	2.805	2.618	2.779	2.636
40	18	2.596	2.409	2.975	2.878	3.210	2.841
40	24	2.798	2.544	3.253	3.079	3.396	2.996
50	8	2.713	2.502	2.824	2.714	3.074	3.014
50	12	3.025	2.745	3.237	3.003	3.668	3.298
50	18	3.547	3.011	3.655	3.323	4.142	3.609
50	24	3.748	3.216	4.181	3.570	4.465	3.848
60	8	3.207	3.286	3.719	3.347	4.370	4.281
60	12	3.673	3.714	4.582	3.736	4.981	4.865
60	18	4.359	4.198	5.375	4.171	6.068	5.530
60	24	4.988	4.579	6.106	4.510	6.812	6.055

表 5 浸泡液在 0.5~5 h 溶出数据拟合式 (7) 的参数
Tab.5 Parameters of release of lead in the solution for 0.5-5h with fitting formula (7)

浸泡液质量分数/%	a_0	a_1	a_2	a_3	b_0	b_1
4	0.564	0.032	-4.606×10^{-4}	4.172×10^{-6}	-1.459	-0.024
8	-0.172	0.101	-2.310×10^{-3}	1.994×10^{-5}	-1.514	-2.450×10^{-3}
14	0.200	0.071	-1.350×10^{-3}	1.202×10^{-5}	-0.785	-0.055

为 1.876 mg/L，误差百分比小于 2%，这证明该模型可以实现通过测定高温短时间陶瓷中铅的溶出量数据，预测出国标条件下对应的溶出量，即通过该模型能提高检测效率。

4 结语

通过分析陶瓷样品中重金属铅在体积分数为 4% 的乙酸溶液中，其溶出量与温度、时间的关系，确定出其中的变化规律，然后拟合构建了在不同温度、时间条件下铅的溶出量数学预测模型，并对其进行了实验验证。通过验证发现，模型对数据点拟合的相关系数均大于 0.98，这说明该模型在不同浸泡液中通用性强。此外，该模型能实现通过 5 h 实验预测在不同温度下 8~24 h 铅的溶出量，预测结果与实验数据的 Pearson 相关系数大于 0.99，证明模型的适用范围广，拟合效果好，且通过该模型能缩短检测时间。这为我国陶瓷制品的出口快速通关以及陶瓷材料重金属溶出量控制提供了技术参考。

参考文献：

[1] 段丽丽, 句荣辉, 王辉, 等. 市售五类食品的包装材料类别及有害物质迁移调查研究[J]. 北京农业职业学院学报, 2018, 32(4): 52—58.
DUAN Li-li, JU Rong-hui, WANG Hui, et al. Investigation and Study on the Types of Packaging Materials and the Migration of Hazardous Substances of the Five Categories of food on the Market[J]. Journal of Beijing Vocational College of Agriculture, 2018, 32(4): 52—58.

[2] GEUEKE B, GROH K, MUNCKE J. Food Packaging in the Circular Economy: Overview of Chemical Safety Aspects for Commonly Used Materials[J]. Journal of Cleaner Production, 2018, 193(20): 491—505.

[3] PARK S J, CHOI J C, PARK S R, et al. Migration of Lead and Arsenic From Food Contact Paper into a Food Simulant and Assessment of Their Consumer Exposure Safety[J]. Food Additives & Contaminants Part A, 2018, 35(12): 2493—2501.

[4] 李慧玲, 覃振真. 食品包装中重金属来源和检测技术探讨[J]. 食品安全导刊, 2017(30): 102.
LI Hui-ling, QIN Zhen-zhen. Source and Detection Technology of Heavy Metals in Food Packaging[J].

China Food Safety Magazine, 2017(30): 102.

[5] 陈扉然, 万维萧, 李博斌, 等. 黄酒陶瓷包装容器中重金属铅和镉的迁移研究[J]. 酿酒科技, 2016(8): 17—20.
CHEN Fei-ran, WAN Wei-xiao, LI Bo-bin, et al. The Migration of Heavy Metals (Pb & Cd) in Ceramic Containers of Yellow Rice Wine[J]. Liquor-making Science & Technology, 2016(8): 17—20.

[6] 靳贵英, 莫淑萍. 食品药品塑料包装材料有害物质分析研究进展[J]. 今日药学, 2017(11): 785—792.
JIN Gui-ying, MO Qiu-ping. Analysis of Harmful Substances in Plastic Packaging Materials for Food and Medicine[J]. Pharmacy Today, 2017(11): 785—792.

[7] 钱浩杰, 穆宏磊, 郜海燕, 等. 聚乳酸抗菌包装中麝香草酚在食品模拟物中迁移规律[J]. 食品科学, 2018, 39(3): 274—281.
QIAN Hao-jie, MU Hong-lei, GAO Hai-yan, et al. Migration Behavior of Thymol from Polylactic Acid Packaging Material to Food Stimulant[J]. Food Science, 2018, 39(3): 274—281.

[8] GB 4806.4—2016, 食品安全国家标准 陶瓷制品[S]. GB 4806.4—2016, National Standard for Food Safety Ceramic[S].

[9] ISO 8391-2—1986, Ceramic Cookware in Contact with Food; Release of Lead and Cadmium; Part 2: Permissible Limits[S].

[10] GB 31604.34—2016, 食品安全国家标准 食品接触材料及制品铅的测定和迁移量的测定[S].
GB 31604.34—2016, National Standard for Food Safety-determination of Lead in Food Contact Materials and Food Products and Determination of the Amount of Migration[S].

[11] DEMONT M, BOUTAKHRIT K, FEKETE V, et al. Migration of 18 trace Elements from Ceramic Food Contact Material: Influence of Pigment, PH, Nature of Acid and Temperature[J]. Food & Chemical Toxicology, 2012, 50(3/4): 734—743.

[12] 董占华. 陶瓷食品包装材料中重金属有害物的迁移试验与理论研究[D]. 无锡: 江南大学, 2015: 62—72.
DONG Zhan-hua. Experimental and Theoretical Study on Migration of Heavy Metals from Ceramic Food Packaging Material[D]. Wuxi: Jiangnan University, 2015: 62—72.

[13] 董黎明, 李杨杨, 周祺, 等. 白酒陶瓷包装的重金属溶出研究概况与展望[J]. 食品科学技术学报, 2018(2): 84—94.

- DONG Li-ming, LI Yang-yang, ZHOU Qi, et al. Survey and Prospect on Dissolution of Heavy Metals from Ceramic Packaging of Baijiu[J]. Journal of Food Science and Technology, 2018(2): 84—94.
- [14] DONG Z H, LU L X, LIU Z G. Migration Model of Toxic Metals from Ceramic Food Contact Materials into Acid Food[J]. Packaging Technology and Science, 2015, 28(6): 545—556.
- [15] 葛红梅, 谭斌, 迟英杰. 日用陶瓷铅镉溶出量与浸泡时间的相关性研究以及回归分析法预测铅镉溶出量[J]. 检验检疫科学, 2000(5): 40—43.
- GE Hong-mei, TAN Bin, CHI Ying-jie. Correlation Between the Leaching Amount of Lead and Cadmium and the Soaking Time of Domestic Ceramics and the Regression Analysis Method to Predict the Leaching Amount of Lead and Cadmium[J]. Inspection and Quarantine Science, 2000(5): 40—43.
- [16] GB 31604.49—2016, 食品安全国家标准 食品接触材料及制品砷、镉、铬、铅的测定和砷、镉、铬、镍、铅、锑、锌迁移量的测定[S].
- GB 31604.49—2016, National Food Safety Standards Determination of Arsenic, Cadmium, Chromium and Lead in Food Contact Materials and Products, and Determination of Migration of Arsenic, Cadmium, Chromium, Nickel, Lead, Antimony and Zinc[S].
- [17] LYNCH M E. The Effect of Microwaves on Aqueous Corrosion of Glass[D]. Virginia: Virginia Polytechnic Institute and State University, 2006: 6—14.