

烟草和烟气化学



UPLC-MS/MS 同时测定电子烟烟液中安赛蜜等 5 种合成甜味剂

杨飞¹, 李中皓¹, 严俊², 王颖¹, 刘珊珊¹, 邓惠敏¹, 边照阳¹, 范子彦¹, 唐纲岭^{1*}

1 国家烟草质量监督检验中心, 河南郑州高新技术产业开发区枫杨街2号 450001;

2 广西中烟工业有限责任公司, 广西南宁北湖南路28号 530001

摘要: 【目的】通过对实验条件的优化, 建立了一种测定电子烟烟液中 5 种人工合成甜味剂 (安赛蜜、甜蜜素、糖精钠、阿斯巴甜和纽甜) 的超高效液相色谱-串联质谱 (UPLC-MS/MS) 方法。【方法】样品经超纯水稀释、C₁₈ 分散固相萃取净化后, 以 BEH C₁₈ 色谱柱分离, 甲醇-0.1% 甲酸水溶液为流动相, 外标法定量。【结果】结果表明: ① 5 种甜味剂在 0.25~5.0 μg/mL 的标准工作曲线范围内线性关系良好 ($r > 0.998$), 检出限 (LOD) 和定量限 (LOQ) 分别为 0.02~0.05 和 0.07~0.17 mg·kg⁻¹, 回收率为 92.5%~105.2%, 相对标准偏差 (RSDs) < 5.0%。② 采用该方法对 10 个电子烟烟液样品进行了检测, 1 个样品检出甜蜜素, 含量为 2.48 mg·kg⁻¹, 2 个样品检出纽甜, 含量在 3.35~4.52 mg·kg⁻¹ 之间。【结论】该方法操作简单、快速、灵敏度高、有机溶剂消耗少, 适用于电子烟烟液中多种甜味剂的同时检测。

关键词: 电子烟; 烟液; 安赛蜜; 甜蜜素; 糖精钠; 阿斯巴甜; 纽甜; UPLC-MS/MS

引用本文: 杨飞, 李中皓, 严俊, 等. UPLC-MS/MS 同时测定电子烟烟液中安赛蜜等 5 种合成甜味剂 [J]. 中国烟草学报, 2019, 25 (2)

电子烟是近几年来兴起的一种新型烟草制品, 又称电雾化卷烟, 电子烟主要由电池杆 (包括发光二极管、电池、气动开关、控制电路、雾化器等元器件) 和烟弹 (包括贮液腔和吸嘴) 组成^[1]。电子烟通过芯片和气流感应器控制烟雾输出量及工作状态, 加热后, 将含有烟碱和香精的溶液雾化成微粒。其中烟弹中的烟液是核心, 主要成分是含烟碱的丙二醇、甘油或聚乙二醇等^[2-3]。同时, 为了满足不同吸烟者对电子烟产品口感与风味多样化的需求, 会添加各种香精。烟液中香味成分的含量很低, 却是决定电子烟感官品质最重要的因素之一^[4-5]。

甜味剂是一类可以提升食品甜味和口感的添加剂, 具有甜度高、热量低、价格低廉、不易发生龋齿等优点, 在食品生产中应用极其广泛。GB2760-2014《食品安全国家标准 食品添加剂使用标准》规定了允许使用的食品添加剂, 其中安赛蜜、糖精、甜蜜素、纽甜和阿斯巴甜等 5 种属于最常用的人工合成食品甜味剂^[6], 其化学名称和使用限量见表 1。合理使用人工合成食品甜味剂是安全的, 不会对食用者的健康产生风险。但如果超限量、超范围, 或者使用劣质的人工合成食

品甜味剂, 则会对消费者的身体健康产生一定的负面影响^[7-9]。因此研究电子烟烟液中多种人工合成甜味剂不仅是技术发展的需求, 也是实际应用的需要。

目前, 对于人工合成甜味剂的测定主要集中于饮料、白酒、乳制品等。测定方法主要有离子色谱法^[10]、毛细管电泳法^[11]、高效液相色谱法^[12-13]、液相色谱-质谱法^[14-16]等。由于人工合成甜味剂的物理化学性质、电化学性质、光谱性质的不同, 液相色谱法很难满足多种甜味剂同时检测的要求, 离子色谱法和毛细管电泳法也由于灵敏度低等原因应用不多。随着各国对甜味剂使用要求越来越严格, 使得开发更为简单快速、灵敏度高的检测方法成为必要。由于液相色谱-串联质谱的选择性强、灵敏度高以及抗基质干扰能力强, 目前已广泛应用于食品添加剂的测定^[17-19]。

本研究结合超高效液相色谱-串联质谱分析速度快, 灵敏度高, 特异性强的优点, 通过优化色谱、质谱条件, 同时采用分散固相萃取净化方式, 建立了电子烟烟液中多种甜味剂同时检测的高效液相色谱-串联质谱法。该方法操作简单, 分析时间短和灵敏度高, 适合实验室中对甜味剂的批量检测。

作者简介: 杨飞 (1985—), 硕士, 工程师, 主要从事烟草化学、烟草质量检验研究, Tel: 0371-67672619, Email: Yangfei0797@163.com

通讯作者: 唐纲岭 (1972—), Tel: 0371-67672613, Email: tglcttc@163.com

收稿日期: 2018-08-24; **网络出版日期:** 2019-02-03

表 1 5 种甜味剂的化学名称和部分限量要求
Tab.1 Chemical name and partial limit requirements of 5 sweeteners

化合物名称	英文名称	化学名称	GB2760-2014 中部分食品的限量要求 / (g/kg)
甜蜜素	Sodium cyclamate	环己基氨基磺酸钠	面包、糕点: 1.6 饮料: 0.65
糖精钠	Saccharin sodium	邻苯甲酰磺酰亚胺钠	冷冻饮品: 0.15 调制乳: 0.6 风味发酵乳: 1.0
阿斯巴甜	Aspartame	L-天冬氨酰-L-苯丙氨酸甲基酯	蛋白饮料、碳酸饮料、风味饮料: 0.6 面包: 4.0
安赛蜜	Acesulfame	乙酰磺胺酸钾	风味发酵乳: 0.35 冷冻饮品: 0.3 烘焙食品: 0.3 调制乳: 0.02
纽甜	Neotame	N-[N-(3,3-二甲基丁基)-L- α -天冬氨酰]-L-苯丙氨酸-1-甲酯	风味发酵乳: 0.1 烘烤食品: 0.08 风味饮料、植物蛋白饮料、碳酸饮料: 0.033

1 材料与方法

1.1 材料、试剂和仪器

10 种不同品牌的电子烟烟液, 编号为 1#~10#, 其中 1#~4# 为烟草原味, 5#~6# 为薄荷味, 7#~10# 为水果香型, 全部通过网络购买。

安赛蜜、甜蜜素、糖精钠、阿斯巴甜和纽甜标准品 (> 98.0%, 德国 Augsburg 公司); 甲酸、甲醇 (色谱纯, 德国 Merck 公司); N-丙基乙二胺 (PSA) 吸附剂、石墨化炭黑吸附剂和 C18 吸附剂 (40 μm , 美国 Agilent 公司); 水为超纯水。

Waters TQD 四极杆串联质谱仪 [配备电喷雾电离源 (ESI)]、Waters Acquity I Class 超高效液相色谱仪、ACQUITY UPLC BEH C18 柱 (100 mm \times 2.1 mm, 1.7 μm) (美国 Waters 公司); VX200 涡旋振荡仪 (美国 Labnet 公司); Milli-Q 超纯水系统 (美国 Millipore 公司); AE163 电子天平 (感量: 0.0001 g, 瑞士 Mettler Toledo 公司)。

1.2 方法

1.2.1 样品前处理

称取 0.2 g 电子烟烟液 (精确至 0.01 g), 并置于 5.0 mL 容量瓶中。用超纯水稀释至刻度, 摇匀; 移取 1.5 mL 溶液至 2.0 mL 离心管中, 并加入 25 mg C18 吸附剂, 涡旋振荡 2 min, 经 0.22 μm 水相滤膜

过滤。滤液进 UPLC-MS/MS 分析。

1.2.2 标准工作溶液的配制

分别称取 10 mg 5 种甜味剂标准品, 于同一个 100 mL 容量瓶用超纯水定容, 制得 5 种甜味剂质量浓度为 100 $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$ 的混合标准储备液。

分别移取混合标准储备液 25、50、100、200、500 μL 至 5 个 10 mL 容量瓶中, 用超纯水稀释并定容, 制得不同质量浓度的标准工作溶液。标准工作溶液中 5 种甜味剂质量浓度分别为 0.25、0.5、1.0、2.0、5.0 $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$ 。

1.2.3 检测条件^[19]

色谱柱: ACQUITY UPLC BEH C18 柱 (100 mm \times 2.1 mm, 1.7 μm) 柱; 柱温: 40 $^{\circ}\text{C}$; 进样量: 2 μL ; 流速: 0.2 mL/min; 流动相: A 相为甲醇, B 相为 0.1% (体积分数) 甲酸水溶液; 梯度洗脱程序: 0~2 min 为 5% A, 2~6 min 为 5% A~30% A, 6~12 min 为 30% A~90% A, 12~13 min 为 90% A; 13~13.5 min 为 90% A~5% A; 13.5~15 min 为 5% A; 质谱扫描方式: 负离子扫描; 离子源: 电喷雾电离源 (ESI); 离子源温度: 150 $^{\circ}\text{C}$; 脱溶剂气温度: 450 $^{\circ}\text{C}$; 脱溶剂气流量: 650 L/h; 锥空气流量: 50 L/h; 停留时间: 100 ms; 毛细管电压: 2.8 KV; 采集模式: 多反应监测 (MRM)。

1.3 数据分析

数据采集采用 MassLynxV4.1 软件。平均值、回收率和相对标准偏差的计算采用 Microsoft Excel 2007 版软件。

2 结果与讨论

2.1 实验条件的优化

2.1.1 流动相的选择

分别考察水 - 甲醇、水 - 乙腈体系及其甲酸对 5 种甜味剂的分离影响。结果表明, 甲醇和乙腈对 5 种甜味剂的分离效果相近, 在不添加酸的情况下, 5 种甜味剂的峰形不对称, 存在明显拖尾情况, 考虑到乙

腈的毒性较甲醇大, 因此选用甲醇 - 水作为流动相, 并在水溶液中加入甲酸。结果表明, 在流动相中加入体积分数为 0.1% 的甲酸后 5 种甜味剂的信号明显降低, 但是色谱峰形得到明显改善。推测其原因是: 糖精钠又称邻苯甲酰磺酰亚胺钠, 甜蜜素其化学名称为环己氨基磺酸钠, 安赛蜜又称为乙酰磺胺酸钾, 阿斯巴甜和纽甜为氨基酸的酯类, 这些化合物均呈碱性, 容易与 C18 柱残留硅醇基发生吸附作用而导致峰拖尾, 采用弱酸性流动相可以改善拖尾现象。因此选择甲醇 - 水 (0.1% 甲酸) 为流动相。采用优化后的色谱条件对 5 种甜味剂进行分析, 其选择离子色谱图如图 1 所示, 可以看出, 5 种甜味剂的分离效果较好。

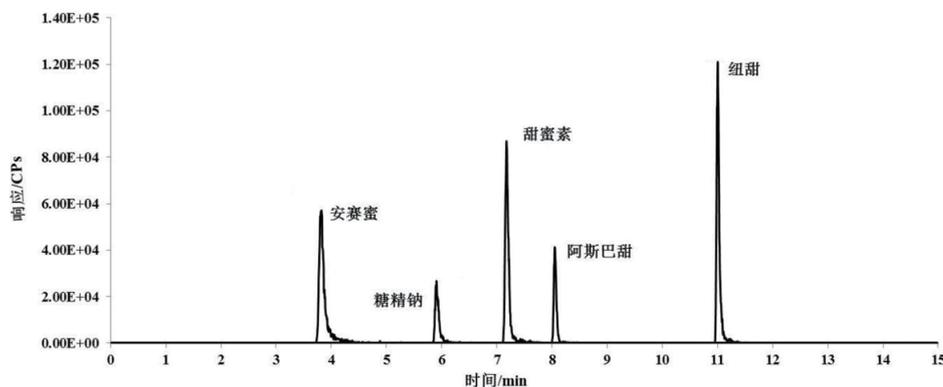


图 1 5 种甜味剂的多反应监测色谱图

Fig.1 MRM chromatograms of 5 sweeteners

2.1.2 质谱条件的确定

取 10 mg/mL 标准溶液, 以蠕动注射进样方式在 ESI⁺ 和 ESI⁻ 模式下进行全扫描。结果显示, 5 种甜味剂在负离子模式下的响应值均高于正离子模式, 因此选择负离子扫描。在负离子 (ESI⁻) 模式下, 阿斯巴甜和纽甜 [M-H]⁻, 甜蜜素 [M-Na]⁻, 糖精钠 [M-Na-2H₂O]⁻, 安赛蜜 [M-K]⁻ 丰度较高, 因此将其选择为母离子。以母离子为前体离子, 进行产物离子扫描, 选取丰度较强、信号稳定的碎片离子作为定性和定量离子。其中甜蜜素的母离子 m/z 178.0 裂解时只得到 m/z 80.1 一个碎片离子, 因此选择 178.0 作为定性离子。最后, 优化毛细管电压、脱溶剂气流量、锥孔气流量、离子源温度、锥孔电压、碰撞电压等参数条件, 使各个离子对的响应最高。优化得到的 5 种甜味剂在负离子模式下的质谱参数如表 2 所示。

2.1.3 前处理条件的优化

由于不同厂家的烟液样品中乙醇、丙三醇等醇类的含量不同, 在进行液相色谱分离时这些醇类会对甜味剂在色谱柱中的保留性能产生影响, 导致被分析物

表 2 5 种甜味剂的质谱参数

Tab.2 MS parameters of 5 sweeteners

化合物名称	分子量	离子对	锥孔电压 (V)	碰撞能量 (V)
甜蜜素	201.2	178.0/80.1*	-27	-33
		178.0/178.0	-27	-20
糖精钠	241.2	182.9/42.3*	-55	-45
		182.9/61.8	-55	-40
阿斯巴甜	294.3	293.3/200.1*	-63	-22
		293.3/261.4	-63	-15
安赛蜜	201.2	161.8/78.0*	-30	-41
		161.8/82.1	-30	-19
纽甜	378.5	377.4/200.3*	-65	-26
		377.4/345.3	-65	-10

Note:* Quantitative ion pair.

在色谱柱上的保留作用减弱, 使峰位前移, 保留时间不稳定。为了消除烟液中醇类物质对分析结果的影

响,且这5种甜味剂均易溶于水,所以直接用水对样品稀释后进行检测即可。稀释的方法不仅可以降低醇类对色谱峰形影响,而且可以降低基质效应,但是同时也会降低方法的检出限。经过不同稀释体积对比,最终确定稀释体积5 mL。同时为了进一步降低基质干扰,减少样品中的杂质对仪器的污染,分别采用

25 mg 常用的分散固相萃取材料(PSA、C18和石墨化炭黑)对稀释后的样品进行分散固相萃取净化。结果(表3)显示:C18效果最好,各甜味剂的回收率在92.6%~102.2%,且相对标准偏差小于6.0%,可以满足定量的要求;石墨化炭黑效果最差,其对所有甜味剂均有不同程度的吸附,导致回收率偏低。

表3 分散固相萃取试剂对5种甜味剂回收率的影响(n=5)
Tab.3 Effect of dispersive solid phase extraction reagent on recoveries of 5 sweeteners

分散固相 萃取试剂	甜蜜素		糖精钠		阿斯巴甜		安赛蜜		纽甜	
	平均回收 率/%	RSD/%								
PSA	84.3	5.0	86.6	6.5	88.7	3.9	84.9	5.4	90.6	4.8
C18	92.6	4.6	98.6	5.2	95.8	5.8	102.2	3.5	99.4	3.8
石墨化炭黑	75.2	4.8	78.5	5.4	68.6	3.9	74.6	4.4	72.7	6.6

2.2 方法评价

2.2.1 标准曲线、检出限和定量限

以5种甜味剂定量离子对的色谱峰面积(Y)(CPs)为纵坐标,标准工作溶液中5种甜味剂的浓度(X)($\mu\text{g}/\text{mL}$)为横坐标作图,得到标准工作曲线。标准工作曲线形式为 $Y = AX + B$,其中A和B

分别表示为斜率和截距。以各种甜味剂信噪比(S/N)为3时的进样浓度确定为每种甜味剂的LOD。以各种甜味剂信噪比(S/N)为10时的进样浓度确定为每种甜味剂的LOQ。结果(表4)显示,各甜味剂在0.25~5 $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$ 的浓度范围内线性关系良好,相关系数大于0.998,可以满足定量分析要求。

表4 5种甜味剂的标准工作曲线、相关系数、检出限及定量限
Tab.4 Standard working curve, correlation coefficients, LODs and LOQs of 5 sweeteners

化合物	保留时间/min	标准工作曲线	相关系数	检出限/ $(\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1})$	定量限/ $(\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1})$
纽甜	11.10	$Y=2901x+172$	0.9985	0.02	0.07
阿斯巴甜	8.05	$Y=1122x+187$	0.9990	0.04	0.13
糖精钠	5.92	$Y=800x+31$	0.9995	0.05	0.17
甜蜜素	7.24	$Y=2639X+20$	0.9987	0.03	0.11
安赛蜜	3.86	$Y=2694X+60$	0.9992	0.03	0.11

2.2.2 方法的回收率及精密度

通过加标样品的回收率实验来验证该方法的重复性,并以RSD来评价精密度。在不同浓度水平(LOQ, 10倍LOQ, 20倍LOQ)的加标样品上进行回收率实验。每个浓度水平重复测定6次,计算样品中各种甜味剂的回收率和RSD。结果(表5)显示,回收率在92.5%~105.2%,且RSD均小于5.0%。

2.2.3 实际样品的测定

采用本方法对市售的10款电子烟烟液样品进行了5次平行测定,结果(表6)显示:2个样品中检出有纽甜,含量分别为3.35和4.52 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$;1个样

表5 不同浓度下的加标回收率和相对标准偏差(n=6)
Tab.5 Recoveries and RSDs of 5 sweeteners under different concentrations (n=6)

化合物	LOQ		10倍LOQ		20倍LOQ	
	回收率/%	RSD/%	回收率/%	RSD/%	回收率/%	RSD/%
纽甜	93.6	3.6	95.5	3.8	92.8	3.6
阿斯巴甜	92.5	4.0	103.4	4.4	94.6	4.5
糖精钠	94.5	3.8	97.7	3.0	105.2	4.2
甜蜜素	98.8	4.2	95.7	4.0	98.4	3.5
安赛蜜	102.3	3.5	96.8	4.2	96.6	3.8

表 6 实际样品的测定
Tab.6 The determination of real samples

样品	纽甜		阿斯巴甜		糖精钠		甜蜜素		安赛蜜	
	平均值 / (mg·kg ⁻¹)	RSD/%	平均值 / (mg·kg ⁻¹)	RSD/%	平均值 / (mg·kg ⁻¹)					
1#	3.35	4.0	/	/	/	/	/	/		
2#	/	/	/	/	/	/	/	/		
3#	/	/	/	/	/	/	/	/		
4#	/	/	/	/	/	/	/	/		
5#	4.52	3.8	/	/	/	/	/	/		
6#	/	/	/	/	/	/	/	/		
7#	/	/	/	/	/	/	/	/		
8#	/	/	/	/	/	2.48	4.4	/		
9#	/	/	/	/	/	/	/	/		
10#	/	/	/	/	/	/	/	/		

注：/ 为未检出。

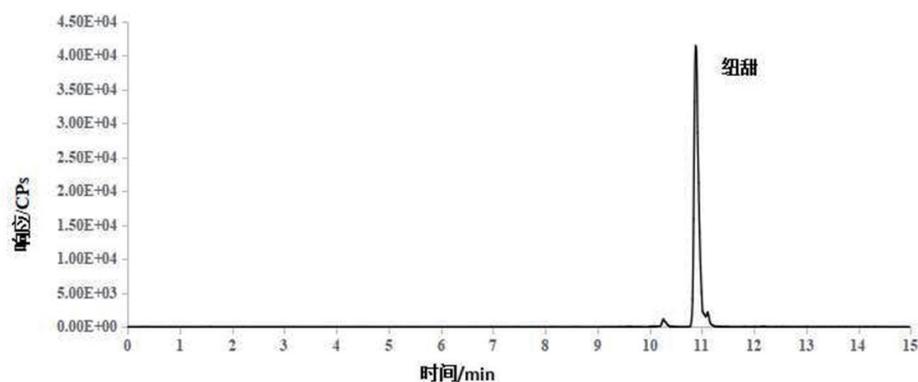


图 2 5# 样品的选择离子色谱图

Fig.2 SIM chromatograms of 5# sample

品检出有甜蜜素，含量为 2.48 mg·kg⁻¹，且相对标准偏差均小于 5.0%。图 2 为 5# 样品的选择离子色谱图。

2.2.4 方法对比

文献报道方法^[16]采用超纯水超声提取，定容后过滤进行 LC-MS/MS 检测。采用本方法与文献报道方法对 1# 和 8# 样品进行检测和对比分析，结果(表 7)显示，本方法检测结果与文献报道方法检测结果之间无明显差异，说明两种方法的一致性良好，但是本方法采用 C18 固相萃取净化后，样品更干净，减轻了对仪器的污染。

2.2.5 方法的耐用性

耐用性也称之为稳健性，根据 GB/T 27417-2017^[20] 和 GB/T32465-2015^[21]，一个好的分析方法应该不受环境等一些因素的微小变化而变化。耐用性试验是考察环境或其他条件变量对分析方法影响的一项

表 7 不同方法的测定结果对比

Tab.7 Comparison of testing results by different methods (mg·kg⁻¹)

样品 编号	纽甜			甜蜜素		
	本方法	文献 方法	相对偏 差 /%	本方法	文献 方法	相对偏 差 /%
1#	3.35	3.18	2.6	/	/	/
8#	/	/	/	2.48	2.65	3.3

检验程序。进行耐用性试验的目的在于鉴别这些必须仔细控制的实验条件，并针对检测结果准确度有较大影响的因素，提出有效控制措施。通常需要考虑影响检测过程与结果的微小条件(因素)包括但不限于以下内容：人员、仪器、实验材料、环境等。

本文在不同试验条件下对 1# 样品进行了 7 因素 2 水平的考察，耐用性试验因素详见表 8，按照表 9

的测试编号组合,共做8次试验,结果以s、t、u、v、y、w、x、y、z表示。数据统计以流速为例,当流速由A水平变为a水平时,对结果产生影响的分析方法为:涉及A的所有结果的平均值 $\bar{X}_A = (s+t+u+v)/4$,涉及a的所有结果的平均值 $\bar{x}_a = (w+x+y+z)/4$ 。由A变为a之后对结果的影响用 $\bar{X}_A - \bar{x}_a$ 来表示。比较7个因素的 $\bar{X} - \bar{x}$ 差值的绝对值,按从大到小排列,如果某个

因素变化对结果有较大影响的话,那么该因素的差值绝对值将远远大于其他因素的差值绝对值,出现这种情况,应严格控制相应的检测条件,并在有关的文件中做明确的说明。

数据统计结果(表10)显示:在7个因素中,样品进样量影响排在首位,在检测中应当注意这个因素,严格规定其检测条件。

表8 耐用性试验因素

Tab.8 The factors in the ruggedness test

因素	流速	进样量	柱温	试验人员	进样时间	试剂	仪器
水平1	A (0.20mL/min)	B (2 μ L)	C (40 $^{\circ}$ C)	D (人员1)	E (处理完立即进样)	F (德国 Merck)	G (Waters TQD)
水平2	a (0.22mL/min)	b (5 μ L)	c (35 $^{\circ}$ C)	d (人员2)	e (处理后隔1天进样)	f (上海安普)	g (AB 4000)

表9 耐用性试验组合

Tab.9 Combination of the ruggedness test

因素试验次数	1	2	3	4	5	6	7	8
流速	A	A	A	A	a	a	a	a
进样量	B	B	b	b	B	B	b	b
柱温	C	c	C	c	C	c	C	c
试验人员	D	D	d	d	d	d	D	D
进样时间	E	e	E	e	e	E	e	E
试剂	F	f	f	F	F	f	f	F
仪器	G	g	g	G	g	G	G	g
检测结果	s	t	u	y	w	x	y	z
	3.35	3.18	3.30	3.40	3.26	3.19	3.42	3.53

表10 耐用性试验结果统计

Tab.10 The results of the ruggedness tests

	A	B	C	D	E	F	G
1	3.35	3.35	3.35	3.35	3.35	3.35	3.35
2	3.18	3.18	3.30	3.18	3.30	3.40	3.40
3	3.30	3.26	3.26	3.42	3.19	3.26	3.19
4	3.40	3.19	3.42	3.53	3.53	3.53	3.42
平均值 \bar{X}	3.31	3.25	3.33	3.37	3.34	3.39	3.34
	a	b	c	d	e	f	g
1	3.26	3.30	3.18	3.30	3.18	3.18	3.18
2	3.19	3.40	3.40	3.40	3.40	3.30	3.30
3	3.42	3.42	3.19	3.26	3.26	3.19	3.26
4	3.53	3.53	3.53	3.19	3.42	3.42	3.53
平均值 \bar{x}	3.35	3.41	3.33	3.29	3.32	3.27	3.32
差值 $ \bar{X} - \bar{x} $	0.04	0.17	0.01	0.08	0.03	0.11	0.02
排序	4	1	7	3	5	2	6

3 结论

通过对实验条件的优化,建立了 UPLC-MS/MS 同时测定电子烟烟液中安赛蜜、糖精钠、甜蜜素、阿斯巴甜和纽甜 5 种人工合成甜味剂的方法。在最优化的实验条件下,5 种人工合成甜味剂的回收率在 92.5%~105.2% 之间,相对标准偏差在 3.0%~4.5% 之间。该方法以超纯水作为提取溶剂,绿色环保,定量结果准确可靠,前处理过程简单快速、分析时间短,能满足实验室的日常检测需要。

参考文献

- [1] 管莹,高茜,李雪梅,等.电子烟烟液体位毒理学评价用细胞筛选研究[J].中国烟草学报,2018,24(5):84-90.
GUAN Ying, GAO Qian, LI Xuemei, et al. Screening of cells for in vitro toxicology test of e-liquid[J]. Acta Tabacaria Sinica, 2018, 24(5): 84-90.
- [2] 樊美娟,赵乐,崔华鹏,等.电子烟中化学成分风险研究进展[J].中国烟草学报,2018,24(3):120-129.
FAN Meijuan, ZHAO Le, CUI Huapeng, et al. Research advances in risk evaluation of chemical components associated with e-cigarettes[J]. Acta Tabacaria Sinica, 2018, 24(3): 120-129.
- [3] 李磊,周宁波,屈湘辉.新型烟草制品市场发展及法律监管[J].中国烟草学报,2018,24(2):100-110.
LI Lei, ZHOU Ningbo, QU Xianghui. Market development and regulation of novel tobacco products[J]. Acta Tabacaria Sinica, 2018, 24(2): 100-110.
- [4] 杨洋,徐建,刘金莉,等.电子烟液中烟碱稳定性及其释放行为分析[J].中国烟草学报,2017,23(6):16-21.
YANG Yang, XU Jian, LIU Jinli, et al. Stability and release behavior of nicotine in e-liquids[J]. Acta Tabacaria Sinica, 2017, 23(6): 16-21.
- [5] 丁彩霞,李钢,郑赛晶,等.固相萃取-气相色谱-质谱法分析电子烟烟液中的香味成分[J].分析实验室,2016,35(7):846-849.
DING Caixia, LI Gang, ZHENG Saijin, et al. Analysis of aroma components in E-liquid by solid phase extraction-gas chromatography-mass spectrometry[J]. Chinese Journal of Analysis Laboratory, 2016, 35(7): 846-849.
- [6] GB2760-2014 食品安全国家标准 食品添加剂使用标准[S].
GB2760-2014 National Food Safety Standard for Uses of Food Additives[S].
- [7] 武太鹏,马康.合成甜味剂检测技术的研究进展[J].化学分析量,2017,26(6):109-115.
WU Taipeng, MA Kang. Research Development of Detection Technology of Synthetic Sweetener[J]. Chemical Analysis and Meterage, 2017, 26(6): 109-115.
- [8] Chattopadhyay S, Raychaudhuri U, Chakraborty R. Artificial sweeteners-a review[J]. Journal of Food Science and Technology, 2014, 51(4): 611-621.
- [9] Larsen J C. Artificial sweeteners[J]. Nutrafoods, 2012, 11(1): 3-9.
- [10] 桂建业,孙威,张辰凌,等.离子色谱-串联质谱法分析环境水体中痕量人工甜味剂[J].分析化学,2016,44(3):361-366.
GUI Jianye, SUN Wei, ZHANG Chenling, et al. An Innovative Approach to Sensitive Artificial Sweeteners Analysis by Ion Chromatography-Triple Quadrupole Mass Spectrometry[J]. Chinese Journal of Analytical Chemistry, 2016, 44(3): 361-366.
- [11] Horie M, Ishikawa F, Oishi M, et al. Rapid determination of cyclamate in foods by solid-phase extraction and capillary electrophoresis[J]. Journal of Chromatography A, 2007, 1154(1-2): 423-428.
- [12] Zhao Y G, Cai M Q, Chen X H, et al. Analysis of nine food additives in wine by dispersive solid-phase extraction and reversed-phase high performance liquid chromatography[J]. Food Research International, 2013, 52(1): 350-358.
- [13] 包懿,石金娥,刘斌,等.高效液相色谱/二极管阵列法快速测定白酒、配制酒与葡萄酒中 5 种人工合成甜味剂[J].分析测试学报.2017,36(05):674-678.
BAO Yi, SHI Jine, LIU Bin, et al. Rapid Determination of Five Artificial Sweeteners in White Spirit, Mixed Liquor and Wine by High Performance Liquid Chromatography/Diode Array Detector[J]. Journal of Instrumental Analysis, 2017, 36(05): 674-678.
- [14] 嵇超,冯峰,陈正行,等.高效液相色谱-串联质谱法测定葡萄酒中的 5 种人工合成甜味剂[J].色谱,2010,28(8):749-753.
JI Chao, FENG Feng, CHEN Zhengxing, et al. Determination of five synthetic sweeteners in wines using high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry[J]. Chinese Journal of Chromatography, 2010, 28(8): 749-753.
- [15] 刘晓霞,丁利,刘锦霞,等.高效液相色谱-串联质谱法测定食品中 6 种人工合成甜味剂[J].色谱,2010,28(11):1020-1025.
LIU Xiaoxia, DING Li, LIU Jinxia, et al. Simultaneous determination of six synthetic sweeteners in food by high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry[J]. Chinese Journal of Chromatography, 2010, 28(11): 1020-1025.
- [16] Chang C S, Tai S Y. Detection of 10 sweeteners in various foods by liquid chromatography/tandem mass spectrometry[J]. Journal of Food & Drug Analysis, 2014, 22(3): 318-328.
- [17] Pawe Kubica, Jacek Namieśnik, Andrzej Wasik. Determination of eight artificial sweeteners and common Stevia rebaudiana glycosides in non-alcoholic and alcoholic beverages by reversed-phase liquid chromatography coupled with tandem mass spectrometry[J]. Analytical and Bioanalytical Chemistry (2015) 407: 1505-1512.
- [18] 李晶,杨叶昆,陈建华,等.超高效液相色谱-串联质谱法测定香精香料中的甜味剂和色素[J].理化检验-化学分册,2015,51(12):1724-1728.
LI Jing, YANG Yekun, CHEN Jianhua, et al. Simultaneous Determination of sweeteners and pigments in essences and spices by UHPLC-MS/MS[J]. Physical testing and chemical analysis part B: chemical analysis, 2015, 51(12): 1724-1728.
- [19] 李晶,徐济仓,缪明明,等.固相萃取-超高效液相色谱/串联质谱同时检测饮料中 13 种禁限用食品添加剂[J].分析科学学报,2013,29(4):488-492.
LI Jing, XU Jicang, MIAO Mingming, et al. Solid phase extraction-ultra high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry for simultaneous determination of 13 restricted food additives in beverages[J]. Journal of analytical science, 2013, 29(4): 488-492.
- [20] GB/T 27417-2017 合格评定 化学分析方法确认和验证指南[S]. GB/T27417-2017 Conformity assessment-Guidance on validation and verification of chemical analytical methods[S].
- [21] GB/T 32465-2015 化学分析方法验证确认和内部质量控制要求[S]. GB/T 32465-2015 Requirement for verification validation of detection methods and internal quality control on chemical analysis[S].

Simultaneous determination of 5 synthetic sweeteners in e-liquid by UPLC-MS/MS

YANG Fei¹, LI Zhonghao¹, YAN Jun², WANG Ying¹, LIU Shanshan¹, DENG Huimin¹,
BIAN Zhaoyang¹, FAN Ziyang¹, TANG Gangling^{1*}

1 China National Tobacco Quality Supervision & Test Center, Zhengzhou 450001, China;

2 China Tobacco Guangxi Industrial Co., Ltd., Nanning 530001, China

Abstract: An ultra-high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry (UPLC-MS/MS) method for simultaneous determination of 5 synthetic sweeteners, i.e. Sodium cyclamate, Saccharin sodium, Aspartame, Acesulfame and Neotame, in refill liquids of e-cigarette was developed by optimizing experimental condition. Samples were diluted with ultrapure water and purified by C18. Their extracts were separated on BEH C18 column using methanol-0.1% formic acid as mobile phase. Results were quantified by external standard method. These results showed that: 1) Good linear relation was obtained within the range of standard working solution, with $r > 0.998$. The limits of detection (LODs) and quantification (LOQs) were 0.02~0.05 and 0.07~0.17 mg kg⁻¹, respectively. The added standard recoveries of blank samples were within the range of 92.5%~105.2%, with a relative standard deviation less than 5.0%. 2) Ten e-cigarette samples were tested by this method. One sample was detected as cyclamate with a content of 2.48 mg kg⁻¹. Two samples were found to contain neotame, with the content between 3.35 and 4.52 mg kg⁻¹. The method proposed in this study has the advantages of simple operation, rapid speed, high sensitivity and robustness, which is suitable for simultaneous detection of various sweeteners in refill liquids of electronic cigarette.

Keywords: e-cigarette; refill liquid; acesulfame; sodium cyclamate; saccharin sodium; aspartame; neotame; UPLC-MS/MS

Citation: YANG Fei, LI Zhonghao, YAN Jun, et al. Simultaneous determination of 5 synthetic sweeteners in e-liquid by UPLC-MS/MS [J]. Acta Tabacaria Sinica, 2019, 25 (2)

*Corresponding author. Email: tglcttc@163.com

《中国烟草科学》2019年第2期目次

- | | |
|--|---|
| <p>· 遗传育种</p> <p>烤烟种质资源黑胫病抗性再鉴定
.....李 媛, 刘国祥, 佟 英, 等</p> <p>不同产区晾晒烟资源多样性的鉴定与评价
.....鞠馥竹, 赵文涛, 刘元德, 等</p> <p>· 栽培营养</p> <p>不同土壤改良措施对植烟土壤理化性状及烟草青枯病的影响
.....章文水, 张 瀛, 王雪仁, 等</p> <p>毕节市植烟土壤耕层厚度空间分布及其与地形因子的相关性
.....王 鑫, 符德龙, 徐梦洁, 等</p> <p>有机无机复混肥对水稻土烤烟养分积累、分配与利用的影响
.....朱英华, 田维强, 苟剑渝, 等</p> <p>· 生理生态</p> <p>植物生长调节剂对烤烟上部叶质量的影响
.....赵环宇, 孙光伟, 王玉军, 等</p> <p>烟草 PP2C 家族基因降雨量响应表达模式分析
.....何晓健, 张 柳, 王 戈, 等</p> | <p>· 植物保护</p> <p>烤烟蒴麻间作对烟草根结线虫防效及烟叶产质量的影响
.....张宗锦, 闫芳芳, 孔垂旭, 等</p> <p>· 调制加工</p> <p>雪茄茄衣晾晒过程中烟叶颜色和含水量变化及其相关分析
.....高娅北, 钟 秋, 王松峰, 等</p> <p>· 品质化学</p> <p>广东烟区烤烟主要化学成分可用性评价
.....王晓宾, 王 军, 刘 兰, 等</p> <p>不同烤烟品种中部叶主要品质性状差异分析
.....范幸龙, 周子方, 张建强, 等</p> <p>重庆烤烟化学成分与感官品质典型相关分析
.....江厚龙, 彭 奎, 张 艳, 等</p> <p>恩施主产烟区烤烟香气香型香韵特征
.....任晓红, 朱家明, 王 瑞, 等</p> <p>· 现代烟草农业</p> <p>烟叶生产大数据管理信息系统设计及应用
.....刘光亮, 徐 茜, 徐辰生, 等</p> |
|--|---|