

doi: 10.3969/j.issn.1004-4957.2018.12.006

# 硅烷化 GC-MS 指纹图谱在卷烟品牌分析中的应用

赖燕华\*, 卢浥良, 李焕威, 王 予, 林宝敏, 林 云, 刘 熙

(广东中烟工业有限责任公司 技术中心, 广东 广州 510385)

**摘 要:** 采用硅烷化衍生化法结合气相色谱-质谱(GC-MS)法对卷烟烟丝中的主要化学成分进行检测, 获得了21个卷烟样品的烟丝硅烷化GC-MS指纹图谱数据, 并应用聚类分析和主成分分析法对烟丝硅烷化GC-MS指纹图谱数据进行综合评价。结果表明, 该方法可用于不同品牌卷烟的比较和区分, 硅烷化成分的含量分布特征能反映不同品牌卷烟的特性, 可为卷烟品牌的风格表征、品质维护和真伪鉴别提供参考。

**关键词:** 硅烷化; 气相色谱-质谱法; 指纹图谱; 聚类分析; 主成分分析

中图分类号: O657.63; TS452.4 文献标识码: A 文章编号: 1004-4957(2018)12-1439-06

## Application of GC-MS Fingerprint with Silanized Derivatization in Discrimination of Different Cigarette Brands

LAI Yan-hua\*, LU Yi-liang, LI Huan-wei, WANG Yu, LIN Bao-min,  
LIN Yun, LIU Xi

(Technology Centre, China Tobacco Guangdong Industrial Co., Ltd., Guangzhou 510385, China)

**Abstract:** A gas chromatography-mass spectrometry (GC-MS) with silanized derivatization was developed for the determination of major tobacco constituents in 21 cigarette samples of three brands. The obtained GC-MS fingerprint data were processed by cluster analysis and principal component analysis, respectively. Results showed that the method could be used in the comparison and discrimination on cigarettes of different brands, and the proportion distribution of various silanized components reflected fairly well the characteristics of different brands of cigarettes. The developed method could provide a reference for cigarette style characterization, quality maintenance and authenticity discrimination.

**Key words:** silanization; gas chromatography-mass spectrometry (GC-MS); fingerprint; cluster analysis; principal component analysis

卷烟产品是烟丝与卷烟辅材的集成产品, 由于卷烟叶组配方、香精香料和加工工艺的不同导致卷烟烟丝具有更大的复杂性和多变性, 所以对不同品牌卷烟的烟丝进行鉴别具有较大难度。随着市场对卷烟产品需求的不断提升, 优质烟叶种植量和市场需求量的矛盾日益突出, 在不断加大原料叶组中薄片和梗丝调配比例的情况下, 卷烟特有的香味风格特征也被削弱。在此情况下, 利用现代分析技术对卷烟产品进行深入分析, 探究不同品牌卷烟烟丝的关键性化学成分含量分布对于品牌卷烟的维护具有重要意义。

硅烷化气相色谱法的原理是通过硅烷化衍生反应使三甲基硅烷基取代衍生对象的羟基、羧基、巯基、氨基及亚氨基的活泼氢, 提高衍生对象的挥发性, 将非挥发性物质转化为挥发性衍生物, 可克服气相色谱对极性高、挥发性低、热稳定性差的物质不能直接进样分析的缺点<sup>[1]</sup>, 从而扩大大气相色谱的测定范围。烟草中含有羟基、羧基、巯基、氨基及亚氨基的化合物有醇类、有机酸、糖类、氨基酸等物质, 其对烟草和卷烟的质量有重要影响。其中烟草中的有机酸占烟叶干物质总量的12%~16%<sup>[2]</sup>, 许多有机酸及其衍生物是烟草香味的重要成分, 直接影响烟叶及其制品的质量。葡萄糖、果糖等糖类物质是烟草及烟草液中的重要成分, 在烟草制品中起黏合、加料、加香、产酸以及保润等作用<sup>[3]</sup>。丙二醇、丙三醇等多元醇类化合物能够保持烟草水分, 可避免卷烟在保存过程中水分挥发造成的口感

收稿日期: 2018-06-20; 修回日期: 2018-08-10

基金项目: 广东中烟工业有限责任公司资助项目(粤烟工[2017]科字第09号)

\* 通讯作者: 赖燕华, 博士, 研究方向: 化学计量学在烟草化学中的应用研究, E-mail: laiyh@gdzygy.com

下降,减少加工过程中的糙碎,作为常用的保润剂在烟草中得到广泛应用<sup>[4-5]</sup>。氨基酸也是烟草中的一类重要化合物,对烟叶的香味品质有重要贡献。在烟草调制、醇化或发酵加工直至燃烧过程中,游离氨基酸与还原糖(或碳水化合物)之间发生酶催化及非酶催化的棕色化反应,生成多种具有烤香或爆米花香味的杂环类化合物<sup>[6]</sup>。因此,利用烟丝硅烷化成分对不同品牌卷烟烟丝进行鉴别具有可行性。

对于烟草中有机酸、糖类物质、氨基酸及丙二醇、丙三醇等保润剂成分的分析有多种检测方法<sup>[7-12]</sup>,上述成分在不同卷烟中的含量差异及对感官质量影响方面的研究也有一定进展。赖燕华等<sup>[13]</sup>采用逐步回归分析法建立了卷烟感官风格品质与有机酸之间的关系模型,发现异戊酸、丙二酸、苯乙酸和柠檬酸等有机酸对卷烟香韵表现或感官品质存在不同影响。甘学文等<sup>[14]</sup>以果糖和苯丙氨酸为原料制备中间体,研究了其在卷烟燃烧过程中卷烟香气成分及含量的变化情况,证实了果糖-苯丙氨酸中间体具有增强卷烟香气的作用。殷延齐等<sup>[15]</sup>对 15 种品牌卷烟烟丝中的游离态氨基酸含量进行了主成分分析和聚类分析,发现各种氨基酸的含量分布特征能反映不同品牌卷烟的特性。朱保昆等<sup>[16]</sup>的研究表明甘油、丙二醇等保润剂对卷烟产品的感官舒适度有显著影响。但利用烟丝硅烷化成分鉴别成品卷烟烟丝的报道较少。

本文采用硅烷化气相色谱-质谱(GC-MS)指纹图谱方法同时测定卷烟烟丝中的多种有机酸、糖类物质、氨基酸及丙二醇、丙三醇等成分,并根据化学模式识别原理,采用聚类分析和主成分分析法对各种卷烟进行了分类和比较,探索了利用烟丝硅烷化成分对卷烟品牌进行表征和区别的可能性。

## 1 实验部分

### 1.1 仪器与试剂

Agilent 6890/5973 GC-MS 联用仪、DB-5 MS 色谱柱(60 m × 0.25 mm × 0.25 μm)、Agilent 7683 自动进样器(美国 Agilent 公司)。

N, O-双(三甲基硅烷基)三氟乙酰胺(BSTFA, 美国 Regis Technologies 公司); N, N-二甲基甲酰胺(DMF, 德国 CNW Technologies GmbH); 乙酸苯乙酯-D3(内标, 纯度 98%, 加拿大 CDN isotopes 公司); 2-硫代巴比妥酸(纯度 ≥ 98.0%), 正十七烷(内标)、磷酸、焦谷氨酸、甘油酸(纯度均 ≥ 99.0%), 1, 2-丙二醇、甘油、果糖、葡萄糖、蔗糖、苹果酸、柠檬酸、脯氨酸(纯度均 ≥ 99.5%), 购于美国 Sigma-Aldrich 公司; 甘油酸钙盐、L-苏阿糖酸半钙盐(纯度 99%, Aldrich 公司)。

选取不同厂家 3 个牌号的市售烤烟型商品卷烟, 共 21 个样品, 其中品牌 A 卷烟 9 个(样品编号 1~9), 品牌 B 卷烟 6 个(样品编号 10~15), 品牌 C 卷烟 6 个(样品编号 16~21)。

### 1.2 溶液的配制

内标溶液 IS1: 称取 500 mg 乙酸苯乙酯-D3, 置于 50 mL 容量瓶中, 用二氯甲烷溶解并稀释至刻度。

内标溶液 IS2: 称取 1 500 mg 十七烷, 置于 50 mL 容量瓶中, 用二氯甲烷溶解并稀释至刻度。

提取溶液: 准确移取 2.0 mL IS1 内标溶液和 2.0 mL IS2 内标溶液至 100 mL 容量瓶中, 用 DMF 和 BSTFA 溶液(体积比 2:8)稀释至刻度, 得提取衍生溶液。

标准储备液: 准确称量约 80 mg 1, 2-丙二醇、96 mg 脯氨酸、30 mg 甘油、450 mg 苹果酸、80 mg 柠檬酸、90 mg 肌醇、1 800 mg 果糖、1 800 mg 葡萄糖和 250 mg 蔗糖, 置于 100 mL 棕色容量瓶中, 加入超纯水溶解并稀释至刻度, 得混合标准储备液。

### 1.3 标准工作溶液的制备

取 10、25、50、100、200、500 μL 标准储备液, 分别置于 2 mL 色谱瓶中, 用氮吹仪于室温下吹干, 再加 1 mL 提取衍生溶液, 于 70 °C 烘箱中衍生化反应 30 min, 得到 GC-MS 分析标准工作溶液。

### 1.4 GC-MS 条件

进样口温度: 250 °C; 进样量: 1 μL; 分流进样, 分流比: 30:1; 载气: 氮气, 恒流模式, 流量 1 mL/min; 程序升温: 初始温度 50 °C, 保持 2 min, 以 5 °C/min 升至 110 °C, 保持 2 min, 再以 2 °C/min 升至 190 °C, 保持 15 min, 最后以 20 °C/min 升至 280 °C, 运行 15 min。电离方式: EI; 离子

源温度: 230 °C; 传输线温度: 280 °C; 扫描方式: 全扫描(SCAN)和选择离子监测(SIM), SCAN 范围为 35~1 000。

## 1.5 样品处理

按照行业标准方法 YC/T31<sup>[16]</sup> 将卷烟样品制备成烟末, 准确称取 10 mg 烟末, 置于 2 mL 色谱瓶中, 加入 1 mL 提取衍生溶液, 于 70 °C 烘箱中进行提取和衍生化反应 30 min, 冷却至室温后, 取上层清液, 用 0.45 μm 有机滤膜过滤, 转移至 2 mL 干净色谱瓶中, 得到 GC-MS 分析样品溶液。以各化合物的量与相应内标物量的比值为横坐标, 目标物定量离子色谱峰的面积与内标峰面积比值为纵坐标, 绘制标准曲线进行定量。

## 2 结果与讨论

### 2.1 烟丝的硅烷化 GC-MS 指纹图谱

按照“1.1~1.5”实验方法, 得到了 21 个卷烟样品的硅烷化 GC-MS 指纹图谱, 并通过标准谱库检索及标准品保留时间比对, 共定性 14 种硅烷化化学成分(表 1), 主要包括氨基酸、有机酸/无机酸、糖和多元醇。实验考察了 DMF 与衍生化试剂的比例、衍生化反应温度及时间的影响, 确定 DMF 与 BSTFA 的比例为 2:8, 衍生化反应温度和时间分别为 70 °C 和 30 min, 此时 14 种目标化合物的衍生化效果好且趋于稳定。3 个不同品牌卷烟烟丝硅烷化衍生物的 GC-MS 指纹图谱见图 1。

表 1 卷烟烟丝的硅烷化化学成分信息

Table 1 Information of the silanized chemical components in cigarette samples

Type	Name	SIM ions ( <i>m/z</i> )	Internal standard	Content (mg/g)	RSD (%, <i>n</i> = 5)
Amino acids	Proline(脯氨酸)	45*, 103	IS1	1.85	3.3
	5-Oxoproline(焦谷氨酸)	147*, 156	IS1	1.66	7.4
Acids	Phosphoric acid(磷酸)	147*, 314	IS1	4.54	7.2
	Glyceric acid(甘油酸)	189*, 292	IS1	2.83	6.8
	Malic acid(苹果酸)	233*, 335	IS1	17.36	1.5
	Threonic acid(苏阿糖酸)	147*, 292	IS1	6.54	3.3
	Citric acid(柠檬酸)	273*, 347	IS2	3.56	7.1
	2-Thiobarbituric acid(2-硫代巴比妥酸)	147*, 345	IS2	16.49	1.7
Sugars and alcohols	1, 2-Propanediol(1, 2-丙二醇)	117*, 147	IS1	3.50	7.6
	Glycerine(甘油)	205*, 229	IS1	1.06	6.0
	Fructose(果糖)	217*, 437	IS2	46.42	1.5
	Glucose(葡萄糖)	204*, 217	IS2	34.98	4.0
	Inositol(肌糖)	147*, 217	IS2	3.27	7.6
	Sucrose(蔗糖)	217*, 361	IS2	8.26	3.4

\* quantitative ion

由图 1 可知, 脯氨酸、苏阿糖酸、葡萄糖的硅烷化衍生物均出现 2 个峰, 而果糖的硅烷化衍生物出现 3 个峰。改变衍生化试剂的比例、衍生化温度及时间, 脯氨酸、苏阿糖酸、葡萄糖和果糖的硅烷化衍生物仍出现 2 个或 3 个峰, 说明并非衍生化不完全所致, 而是由于这些物质存在多个异构体, 与 BSTFA 发生衍生化反应后, 不同异构体的衍生化产物在该色谱条件下实现了分离<sup>[7]</sup>。另外, 每个样品的气相色谱-质谱分析时间达 90 min, 分析时间较长, 且果糖、葡萄糖、蔗糖等出峰较晚的化合物含量较高, 1, 2-丙二醇、甘油、脯氨酸、磷酸等出峰较早的化合物含量相对较低。因此, 综合考虑保留时间和含量等因素, 确定以乙酸苯乙酯-D3 和正十七烷为双内标进行定量分析。由图 1 可知, 乙酸苯乙酯-D3 和正十七烷与 14 种烟丝硅烷化成分实现了良好的色谱分离。由于内标物乙酸苯乙酯-D3 的出峰位置和强度与 1, 2-丙二醇、脯氨酸、磷酸、甘油、甘油酸、苹果酸、焦谷氨酸和苏阿糖酸比较接近, 因此可用于这些化合物含量计算; 而正十七烷则用作果糖、柠檬酸、2-硫代巴比妥酸、葡萄糖、肌糖和蔗糖的内标物。14 种目标化合物在 3 个品牌中均有检出, 其中果糖(峰 13、14 和 15)和葡萄糖(峰 18 和 19)在 3 个品牌中的含量差异较大, 品牌 A 的糖类含量明显较低, 仅通过指纹图谱的直观比较, 很难判断不同品牌烟丝的归属, 因此需对指纹图谱数据做进一步分析。

应用本方法对 1 号卷烟样品进行重复性测试,按照“1.5”样品处理方法和“1.4”GC-MS 条件平行测定 5 次,计算方法的相对标准偏差(RSD),结果见表 1。14 种化合物测定结果的 RSD 为 1.5%~7.6%,表明本方法的重复性良好。

## 2.2 不同品牌烟丝硅烷化成分的含量分布

运用箱线图对 3 个品牌卷烟的烟丝硅烷化成分含量进行比较,图 2 列出了部分硅烷化成分的箱线图。14 种烟丝硅烷化成分的分布情况如下:

①卷烟品牌 B 的烟丝脯氨酸含量上、下四分位跨度较大,其含量范围较宽,但卷烟品牌 A、B 的脯氨酸含量总体上明显低于品牌 C;②卷烟品牌 C 的烟丝焦谷氨酸含量上、下四分位跨度较大,含量范围较宽,但总体上其烟丝焦谷氨酸含量低于品牌 A、B;③3 个品牌的烟丝磷酸含量上、下四分位均较为集中,总体上品牌 B 的磷酸含量大于品牌 A、C;④甘油酸、苹果酸、苏阿糖酸、柠檬酸、果糖、葡萄糖、肌糖的含量呈现品牌 A < 品牌 B < 品牌 C 的趋势;⑤品牌 C 烟丝 2-硫代巴比妥酸的含量跨度较大,总体上品牌 A 的烟丝 2-硫代巴比妥酸含量低于其他两个品牌;⑥卷烟 C 的烟丝蔗糖含量明显高于其他两个品牌;⑦1, 2-丙二醇和甘油含量在 3 个品牌间无明显差异。

## 2.3 烟丝硅烷化成分对不同品牌卷烟的区分能力

箱线图可以大致判断硅烷化成分在 3 个品牌烟丝中的分布,但无法明确区分不同品牌卷烟。为明确 21 个样品间的相似性和差异性,对其硅烷化成分含量进行标准化处理后,采用聚类分析法和主成分分析法进行分析,结果分别如图 3、4 所示。

由图 3 可知,当距离为 1.0 时,样品分为两类,品牌 A 卷烟(样品 1~9 号)独自聚成一类,距其他两个卷烟较远,实现了很好的区分。品牌 B 卷烟(样品 10~15 号)和品牌 C 卷烟(样品 16~21 号)距离相对较近,但在距离约 0.6 处相互区分开,各自聚为一类。聚类分析的结果表明,烟丝硅烷化成分可以很好地区分不同品牌卷烟。

21 个样品的主成分分析结果表明,前 2 个主成分因子的累计方差贡献率为 82%,其中第一主成分(PC1)和第二主成分(PC2)的方差贡献率分别为 68% 和 14%,因此提取前 2 个主成分概括烟丝硅烷化的总信息量,对样品进行综合评价。由图 4 可知,21 个样品在第一主成分和第二主成分构成的空间内聚为 3 类:样品 1~9 聚成第 1 类,样品 10~15 聚成第 2 类,样品 16~21 聚成第 3 类,3 个品牌各自很好地区分,表明相同品牌的卷烟存在较好的相似性,而不同品牌卷烟的硅烷化成分存在较大差异,与聚类分析的结果一致。

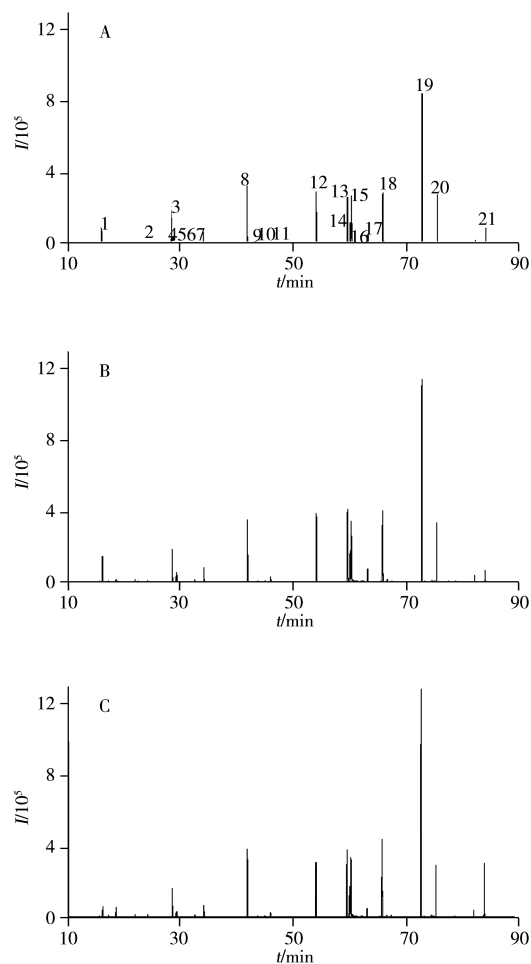


图 1 品牌 A(A)、B(B)和 C(C)卷烟的烟丝硅烷化衍生物 GC-MS 指纹图谱

Fig. 1 GC-MS fingerprint of silanizing derivatives in cut tobacco of cigarette brands A(A), B(B) and C(C)

1. 1, 2-propylene glycol(1, 2-丙二醇);
- 2, 6. proline(脯氨酸);
3. phenethyl acetate-D3(乙酸苯乙酯-D3, IS1);
4. phosphoric acid(磷酸);
5. glycerol(甘油);
7. glyceric acid(甘油酸);
8. malic acid(苹果酸);
9. pyroglutamic acid(焦谷氨酸);
- 10, 11. threonic acid(苏阿糖酸);
12. heptadecane(十七烷, IS2);
- 13, 14, 15. fructose(果糖);
16. citric acid(柠檬酸);
17. 2-thiobarbituric acid(2-硫代巴比妥酸);
- 18, 19. glucose(葡萄糖);
20. inositol(肌糖);
21. sucrose(蔗糖)

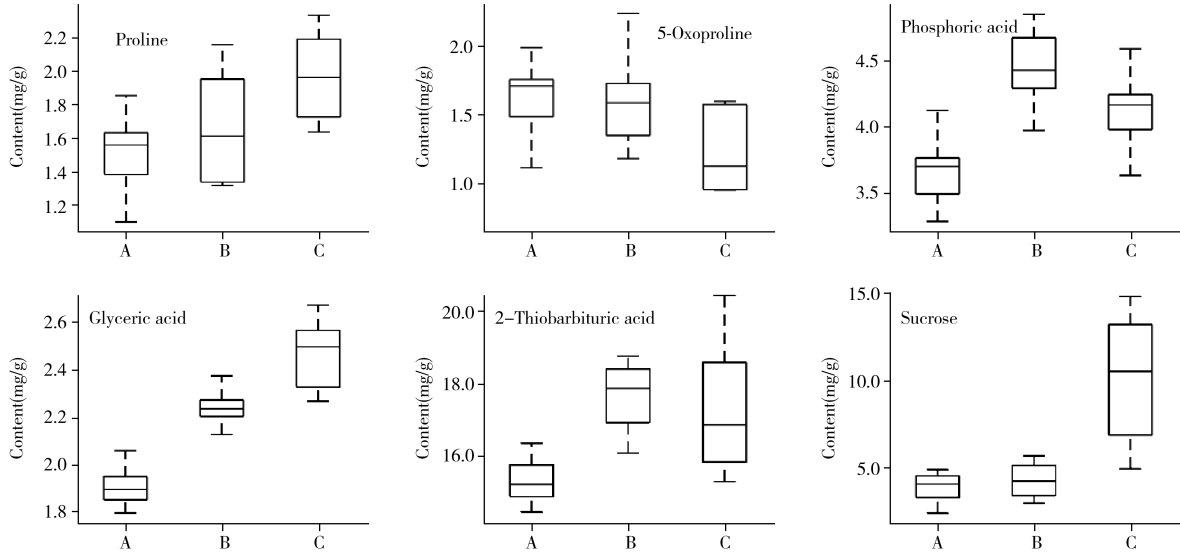


图2 不同品牌烟丝的部分硅烷化成分箱线图

Fig. 2 Box and whisker plots of the silanized chemical components in cigarette tobacco of different brands

3 类样品在 PC1 上的得分也呈现明显趋势：卷烟品牌 A < 卷烟品牌 B < 卷烟品牌 C。结合 14 种硅烷化成分在第一主成分上的载荷，由图 4 可以看出：葡萄糖、甘油酸、果糖、肌糖、苹果酸、苏阿糖酸、蔗糖、柠檬酸在第一主成分上的载荷最大，其次为脯氨酸、磷酸、2-硫代巴比妥酸，焦谷氨酸在第一主成分上的载荷最小，表明品牌 C 卷烟烟丝中葡萄糖、甘油酸、果糖、肌糖、苹果酸、苏阿糖酸、蔗糖、柠檬酸的含量最高，品牌 A 卷烟烟丝中焦谷氨酸的含量最高，品牌 B 介于两者之间，与箱线图的分析结果基本一致。

因此可将 3 个品牌卷烟的烟丝硅烷化成分主要特征概括为：①品牌 A 除了焦谷氨酸含量较高外，糖类成分（葡萄糖、果糖、蔗糖、肌糖）、酸类成分（甘油酸、苹果酸、苏阿糖酸、柠檬酸、2-硫代巴比妥酸、磷酸）和脯氨酸含量均低于其他两品牌；②品牌 C 卷烟烟丝的糖类成分（葡萄糖、果糖、蔗糖、肌糖）、酸类成分（甘油酸、苹果酸、苏阿糖酸、柠檬酸）及脯氨酸含量最高；③品牌 B 卷烟烟丝中糖、有机酸、氨基酸的含量介于品牌 A、C 之间；④3 个品牌卷烟烟丝中的保湿剂成分（1, 2-丙二醇和甘油）含量无明显差别。

聚类分析和主成分分析的结果表明，烟丝硅烷化成分可以很好地区分不同品牌卷烟。3 个卷烟品牌的硅烷化成分差异主要在于糖和酸含量的不同，而糖和酸均是卷烟料液中常用的原料，其种类的选择、用量及协调性对料液的处理效果具有重要影响<sup>[17]</sup>。相同品牌聚成一类，可能是由于同一品牌厂家的烟叶库存结构相同，加之主流料液的应用，使得相同品牌产品烟丝糖、酸成分的含量及比例整体上具有相似性，导致同一品牌样品在聚类图及主成分分析图中聚成一团。反之，不同品牌卷烟由于各厂

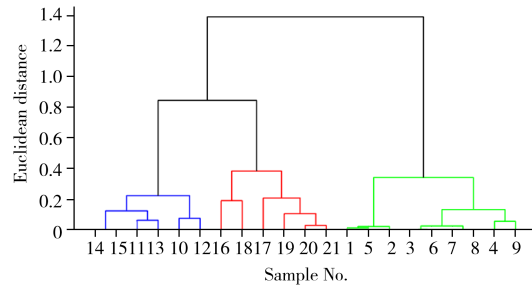


图3 烟丝硅烷化成分的聚类分析结果

Fig. 3 Cluster analysis result of different cigarette brands based on the silanized chemical components in cut tobacco

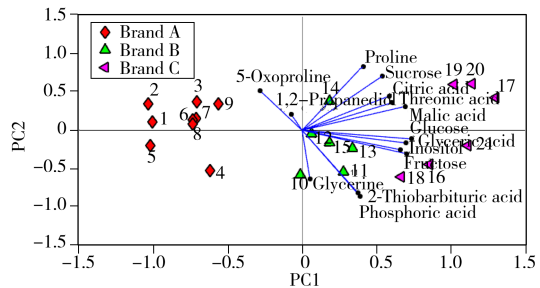


图4 不同品牌卷烟烟丝硅烷化成分的主成分分析双图

Fig. 4 Principle component analysis bi-plot of different cigarette brands based on the silanized chemical components in cut tobacco

家的叶组配方和添加料液存在较大差异,因此烟丝中糖、酸的成分含量和比例差异大,使不同品牌卷烟可以很好地相互区分开。

### 3 结 论

本文运用硅烷化衍生化法对卷烟烟丝样品中的主要化学成分进行检测,得到了21个样品的硅烷化GC-MS指纹图谱,并通过箱线图、聚类分析及主成分分析对实验得到的烟丝硅烷化成分含量进行了处理。结果发现21个样品被分成3类,相同品牌聚成一类,而不同品牌卷烟样品在聚类分析树状图和主成分分析得分图中均能很好地相互区分,说明不同品牌卷烟的硅烷化成分存在较大的差异,表明烟丝硅烷化GC-MS指纹图谱可以有效表征和区分卷烟品牌,从而为卷烟品牌风味表征、质量评价及控制提供有益的参考。

#### 参考文献:

- [1] Yu L, Zhang Y C, Zhou C P, Wang M L, Liu B Z. *Acta Tabacaria Sin.* (余苓,张怡春,周春平,王美琳,刘百战. 中国烟草学报), **2007**, 13(3): 18-20.
- [2] Wang R X. *Tobacco Chemistry*. Beijing: Agriculture Press China (王瑞新. 烟草化学. 北京: 中国农业出版社), **2003**.
- [3] Wei Y L. *Food Ind.* (魏玉磊. 食品工业), **2010**, (3): 62-64.
- [4] Liu Y, He L, Wang W Y, Duan Y Q, Liu J, Jiang J X. *J. Instrum. Anal.* (刘亚,何靓,王文元,段焰青,刘娟,蒋举兴. 分析测试学报), **2013**, 32(9): 1101-1105.
- [5] Li Z, Yang G Y, Huang H T, Shi H L, Liu W, Jiang C Q. *Chin. J. Anal. Chem.* (李忠,杨光宇,黄海涛,施红林,刘巍,蒋次清. 分析化学), **2002**, 30(6): 687-689.
- [6] Zhao T, Shi H Z, Ji X M, Gu S L, Wu C K, Hou L J, Yang C. *Acta Tabacaria Sin.* (赵田,史宏志,姬小明,顾少龙,吴纯奎,侯留记,杨程. 中国烟草学报), **2011**, 17(2): 13-17.
- [7] Liu B Z, Xu L, Hu B X, Zhang Y, Zhuang Y D. *Tobacco Sci. Technol.* (刘百战,徐亮,胡便霞,张映,庄亚东. 烟草科技), **2000**, (1): 25-27.
- [8] Ren W L, Yu L, Shen X J, Wu D. *Chin. J. Appl. Chem.* (任雯黎,余苓,沈晓洁,吴达. 计算机与应用化学), **2013**, 30(7): 788-792.
- [9] Tang J G, Yuan D L, Qiao D N. *Chem. Anal. Meterage*(汤建国,袁大林,乔丹娜. 化学分析计量), **2012**, 21(1): 17-19.
- [10] Cao H Y, Jin Y C, Kong W S, Cui Z W, Chen Y K, Chen Z Y. *J. Anhui Agric. Sci.* (曹红云,金永灿,孔维松,崔柱文,陈永宽,陈章玉. 安徽农业科学), **2010**, 38(31): 17823-17825.
- [11] Xue X M, Hu L Z, Ye W Q, Liu Y, Wang A, Ji M. *Acta Tabacaria Sin.* (薛训明,胡立中,叶为全,刘勇,王安,计敏. 中国烟草学报), **2012**, 18(2): 1-5.
- [12] Zhang R, Si X X, Yi A E, Zhang H, Ding Z T, Zhang F M, Zhu R Z. *Chin. J. Anal. Lab.* (张蓉,司晓喜,伊奥尔,张红,丁中涛,张凤梅,朱瑞芝. 分析实验室), **2014**, 33(8): 963-966.
- [13] Lai Y H, Wang J X. *J. Instrum. Anal.* (赖燕华,汪军霞. 分析测试学报), **2015**, 34(6): 696-700.
- [14] Gan X W, Wang G Y, Deng S B, Zhang C H, Cui H P, Liu S G, Yu J Y, Cheng T, Zhang X M. *Food Mach.* (甘学文,王光耀,邓仕彬,张春晖,崔和平,刘曙光,于静洋,成涛,张晓鸣. 食品与机械), **2017**, 33(5): 77-82.
- [15] Yin Y Q, Liu H M, Xia Q L, Xie F W, Wang S. *Tobacco Sci. Technol.* (殷延齐,刘惠民,夏巧玲,谢复炜,王晟. 烟草科技), **2007**, (10): 36-40.
- [16] Zhu B K, Wang M F, Li X Y, Zhe W, Liao T G. *Tobacco Sci. Technol.* (朱保昆,王明锋,李先毅,者为,廖头根. 烟草科技), **2011**, (10): 12-16.
- [17] Wang Y X. *Tobacco Sci. Technol.* (王月侠. 烟草科技), **1998**, (4): 11-13.