

doi: 10.3969/j.issn.1004-4957.2020.06.005

电感耦合等离子体质谱法同时测定电子烟气溶胶中7种重金属元素

陆怡峰¹, 李永霞^{2*}, 张琿姿², 刘 鸿¹, 姚鹤鸣¹, 郑赛晶¹, 陈 勇¹

(1. 上海烟草集团有限责任公司技术中心, 上海 200082; 2. 上海牡丹香精香料有限公司, 上海 201200)

摘要: 建立了金捕集-电感耦合等离子体质谱法同时测定电子烟气溶胶中铬、镍、砷、铅、镉、锑、汞7种重金属元素的方法。实验优化了电子烟气溶胶的捕集条件, 采用含2.0 mg/L金元素的5.0% (体积比)硝酸溶液捕集吸收气溶胶, 捕集阱为2瓶串联, 每个捕集阱含吸收液25.0 mL, 抽吸口数为100口。结果表明, 电子烟气溶胶中的铬、镍、砷、铅、镉、锑和汞均能得到有效捕集。在优化条件下, 铬、镍、砷、铅和镉的线性范围为0.3~80 μg/L, 锑和汞的线性范围为0.3~10 μg/L, 其相关系数(r^2)均大于0.999, 检出限为0.69~1.19 ng/100 puffs, 定量下限为2.29~3.97 ng/100 puffs, 方法的回收率为96.5%~103%, 相对标准偏差(RSD)为6.6%~14%。使用该方法与法国标准方法对市售的10种电子烟样品进行测定, 两种方法的检测数据基本一致。该方法准确、可靠、高效、使用试剂少, 可用于电子烟气溶胶中多种重金属的检测。

关键词: 电子烟; 气溶胶; 重金属; 金硝酸溶液; 电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS)

中图分类号: 0657.63; 0611 文献标识码: A 文章编号: 1004-4957(2020)06-0729-07

Simultaneous Determination of Heavy Metal Elements in E-cigarette Aerosols by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry

LU Yi-feng¹, LI Yong-xia^{2*}, ZHANG Hui-zi², LIU Hong¹, YAO He-ming¹,
ZHENG Sai-jing¹, CHEN Yong¹

(1. Technology Center, Shanghai Tobacco Group Co., Ltd., Shanghai 200082, China; 2. Shanghai Peony Flavors and Fragrances Co., Ltd., Shanghai 201200, China)

Abstract: A method of inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) with Au solvent trapping was established for the simultaneous determination of 7 kinds of heavy metal elements, i. e. chromium, nickel, arsenic, lead, cadmium, antimony and mercury in e-cigarette aerosols. The trapping conditions for e-cigarette aerosols were optimized. The aerosols were trapped with dilute nitric acid solution (5.0%, by volume) containing 2.0 mg/L Au solution. Two impingers were tandemly connected, in which each contained 25.0 mL trapping solution, and the puffing number was 100. Results showed that, seven elements in e-cigarette aerosols were trapped effectively. Under the optimal conditions, the calibration curves were linear in the range of 0.3–80 μg/L for Cr, Ni, As, Pb, Cd, and 0.3–10 μg/L for Sb, Hg, with their correlation coefficients (r^2) larger than 0.999. The limits of detection (LODs) for seven elements were in the range of 0.69–1.19 ng/100 puffs, and the limits of quantitation were 2.29–3.97 ng/100 puffs. The recoveries ranged from 96.5% to 103% with relative standard deviations (RSD) of 6.6%–14%. 10 commercial e-cigarettes were determined by this method and the French Standardization, respectively, and the detection results were consistent. Therefore, this method was accurate, reliable, efficient and low-consumption, which could be used for the detection of heavy metals in e-cigarette aerosols.

Key words: e-cigarette; aerosols; heavy metals; Au nitric solution; inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS)

收稿日期: 2019-09-20; 修回日期: 2020-02-10

基金项目: 中国烟草总公司标准项目(2018QBZ08)

* 通讯作者: 李永霞, 硕士研究生, 工程师, 研究方向: 烟草化学, E-mail: lyxgoodgood@126.com

电子烟又称电子香烟、电子雾化烟,主要由电子烟烟具和烟液组成。目前,电子烟一般可分为预填充式电子烟(Pre-filled electronic cigarette)、可填充式电子烟(Refillable electronic cigarette)^[1]。由于其造型新颖、口味丰富,而深受消费者喜爱并被迅速使用^[2]。但与此同时,电子烟的质量安全性问题也受到了广泛的关注与研究。

重金属元素如铬、镍、砷、铅、镉、铊和汞等作为电子烟气溶胶中可能存在的危害物,被人体吸入后会在人体器官内聚集,使人体某些酶失去活性,引发慢性中毒,从而影响人体健康^[3-5]。目前国内外对电子烟气溶胶中重金属的研究逐渐增多^[6-10],且对电子烟气溶胶中金属元素的分布状态和含量检测研究已有报道^[11-14]。近年来,在电子烟气溶胶中重金属的检测方法研究上,分别利用玻璃纤维、U型管-活性炭、静电捕集等方法捕集气溶胶,再通过电感耦合等离子体质谱法(ICP-MS)实现对重金属元素的测定^[15-16]。目前的电子烟气溶胶中重金属检测方法存在操作复杂、分析时间较长等缺点。2016年法国烟草标准研究室推出了稀硝酸捕集电子烟气溶胶-电感耦合等离子体质谱仪检测重金属含量^[17]的方法,然而此方法存在捕集溶液量较少,测定稳定性不足,以及毒性较大的重金属不在检测范围内等缺点。目前电子烟产品推陈出新速度快,特别是针对一些大功率电子烟产品,尚缺少可靠、高效的电子烟气溶胶中重金属的检测方法。

本文根据目前国内外电子烟气溶胶中重金属检测方法的优缺点,结合现有电子烟产品特点,在硝酸捕集液中加入金元素,通过形成金-汞齐实现了气态汞的富集^[18],以此完全捕集电子烟气溶胶中的砷、铅、铬、镉、镍、铊和汞元素,可实现基于ICP-MS对多种元素的同时测定。

1 实验部分

1.1 试剂、材料与仪器

浓硝酸(65%)、浓盐酸(35%~37%)(优级纯,国药集团化学试剂有限公司);10.0 mg/L 重金属混合标准溶液、10.0 mg/L 汞标准溶液、1 000.0 mg/L 铊标准溶液、1 000.0 mg/L 金标准溶液、100.0 mg/L 重金属内标混合标准溶液(美国 Agilent 科技有限公司)。实验用水为超纯水(电阻率 $\geq 18.2 \text{ M}\Omega \cdot \text{cm}$,自制)。市售电子烟样品 10 种,其中预填充式电子烟 5 种,可填充式电子烟 5 种。

7700x 电感耦合等离子体质谱仪(配碰撞反应池,美国 Agilent 公司),Milli-Q 超纯水仪(美国 Millipore 公司),电子烟吸烟机(Puffman 公司)。

1.2 实验方法

1.2.1 工作溶液的配制 气溶胶捕集溶液:取 50.0 mL 浓硝酸于 1 000 mL 容量瓶中,加入 2.0 mL 金标准溶液,经水稀释定容,得金溶液的质量浓度为 2.0 mg/L 的 5.0% (体积分数)硝酸捕集溶液。

内标工作溶液:使用 5.0% 硝酸溶液稀释重金属内标混合标准溶液,得质量浓度为 1.0 mg/L 的锗⁷²、铟¹¹⁵、铋²⁰⁹内标工作溶液。各内标元素对应的测定元素见表 1。

重金属混合标准工作溶液:使用 5.0% 硝酸溶液稀释重金属混合标准溶液,得质量浓度

为 0.3、0.5、1.0、2.0、3.0、5.0、10.0、15.0、20.0、40.0、80.0 $\mu\text{g/L}$ 的铬、镍、砷、镉、铅标准工作溶液;铊、汞标准工作溶液:使用 1.0% 盐酸溶液稀释铊、汞标准溶液,得质量浓度为 0.3、0.5、1.0、1.5、2.0、3.0、5.0、10.0 $\mu\text{g/L}$ 的铊、汞标准工作溶液。

以上工作溶液均需现配现用。

1.2.2 电子烟气溶胶的捕集 在每只捕集阱内准确加入 25.0 mL 捕集溶液,将 2 只捕集阱串接于烟支夹持器与捕集器之间(见图 1),按 CORESTA 电子烟标准条件要求进行抽吸,抽吸容量 55.0 mL,抽吸持续时间 3 s,抽吸间隔 30 s^[19]。

表 1 7 种重金属的测定质量数、内标元素及积分时间
Table 1 Detection mass numbers, internal standard elements and integral times of seven heavy metals

Element	Detection mass number	Internal element	Integral time (s)
Cr(铬)	52	Ge ⁷² (锗)	0.3
Ni(镍)	60	Ge ⁷² (锗)	0.3
As(砷)	75	Ge ⁷² (锗)	0.3
Pb(铅)	208	Bi ²⁰⁹ (铋)	0.3
Cd(镉)	111	In ¹¹⁵ (铟)	0.3
Sb(铊)	121	In ¹¹⁵ (铟)	0.3
Hg(汞)	202	Bi ²⁰⁹ (铋)	0.3

由于重金属元素在不同品牌电子烟中含量差异大^[8,14], 为使各品牌电子烟中重金属含量均得到客观描述, 本实验选择每个样品捕集100口气溶胶进行测定, 对于不能连续抽吸100口的电子烟, 在补充烟液或更换烟弹后抽吸至100口。抽吸完成后, 将两只捕集阱中的捕集溶液分别转移至25 mL聚丙烯容量瓶中, 摇匀待测。在不添加样品的情况下, 重复电子烟抽吸及样品前处理实验过程, 进行样品空白实验。

1.2.3 电子烟气溶胶中重金属的检测 电感耦合等离子体质谱条件: 射频功率: 1 500 W; 等离子体气体: 氩气, 15.0 L/min; 载气: 氩气, 1.2 L/min; 辅助气: 氩气, 0.4 L/min; 反应气: 氦气, 1.0 mL/min; 雾化室温度: 2 ℃; 样品溶液及内标工作溶液进样速率: 0.1 r/s(蠕动泵转速); 采集模式: 顺序跳峰; 每峰测定点数: 3次; 重复次数: 3次。重金属元素的测定参数如表1所示, 按表1仪器条件及内标元素进行样品分析, 电子烟气溶胶中重金属含量为2只捕集瓶重金属含量的加和。

2 结果与讨论

2.1 捕集方式的选择

电子烟气溶胶中的重金属捕集方式主要为溶剂捕集、静电捕集和冷阱捕集^[11-14]。根据现有设备检测条件, 选择了溶剂捕集和静电捕集两种方式进行比对, 实验分别选取预填充式和可填充式两种类型电子烟, 共4个电子烟样品抽吸100口后测定各目标元素含量, 结果见表2。

表2 两种捕集方式的7种重金属测定结果(ng/100 puffs)
Table 2 Detection results of seven heavy metals by two collection methods (ng/100 puffs)

Element	Pre-filled electronic cigarette 1#		Pre-filled electronic cigarette 2#		Refillable electronic cigarette 1#		Refillable electronic cigarette 2#	
	Solution trapping	Electrostatic trapping	Solution trapping	Electrostatic trapping	Solution trapping	Electrostatic trapping	Solution trapping	Electrostatic trapping
Cr	23.3	22.52	8.16	7.33	5.2	3.97	34.28	26.38
Ni	34.43	22.08	44.46	39.53	18.55	16.98	96.55	82.61
As	12.6	11.41	7.58	6.98	7.98	3.57	25.46	19.12
Pb	10.56	10.79	6.54	5.01	7.8	4.25	39.72	29.99
Cd	N/D	N/D	N/D	N/D	B/LOQ	B/LOQ	N/D	N/D
Sb	B/LOQ	B/LOQ	N/D	B/LOQ	N/D	N/D	6.86	4.28
Hg	N/D	N/D	N/D	N/D	B/LOQ	N/D	B/LOQ	N/D

N/D: means that the detection data of heavy metal is below the detection limit of the method; B / LOQ: means that the detection data of heavy metal is larger than the detection limit of the method but below the quantitative limit of the method

由表2可看出, 对于预填充式电子烟, 7种重金属采用两种捕集方式的检测结果一致性好, 说明其捕集效率相当。但对于可填充式电子烟, 溶剂捕集法的测试结果高于静电捕集法。实验发现可填充式电子烟的气溶胶量较大, 气溶胶在静电捕集管冷凝后有滴流现象发生, 因此导致测定结果较低。此外, 电子烟吸烟机具有多通路设计及其专用触发系统, 使用溶剂捕集方式可对全类型的电子烟样品进行批量检测, 相对于静电捕集方式极大地提高了工作效率。所以, 结合目前电子烟产品特点及吸烟机情况, 本实验选用溶剂捕集方式捕集电子烟气溶胶中的重金属。

2.2 捕集液浓度与体积的影响

不同浓度的硝酸溶液会对电子烟气溶胶的捕集效率产生影响, 分别利用含有2.0 mg/L金元素的不同体积分数(1.0%、3.0%、5.0%、10.0%、20.0%)硝酸作为捕集溶液, 将4个样品分别抽吸100口后测定各目标元素的释放量, 考察实际样品的捕集效果, 结果见图2(两种类型电子烟分别选取一个样品作图)。由图2可知, 电子烟气溶胶中各目标元素的捕集量均在硝酸浓度达到5.0%后趋于稳定, 表

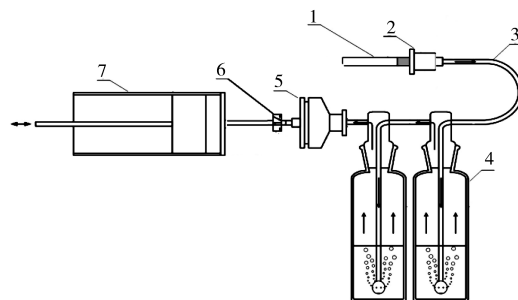


图1 吸烟系统连接方式示意图

Fig. 1 Schematic diagram of smoking system connection

1. e-cigarette; 2. cigarette holder; 3. connecting poly propylene tubing;
4. impinger; 5. trap(fitted with Cambridge filter pad);
6. 2 position 3-way valves; 7. the puffing unit

明此时实现了电子烟气溶胶中各重金属元素的完全捕集。因此,采用含有 2.0 mg/L 金元素的 5.0% 硝酸作为电子烟气溶胶的捕集溶液。

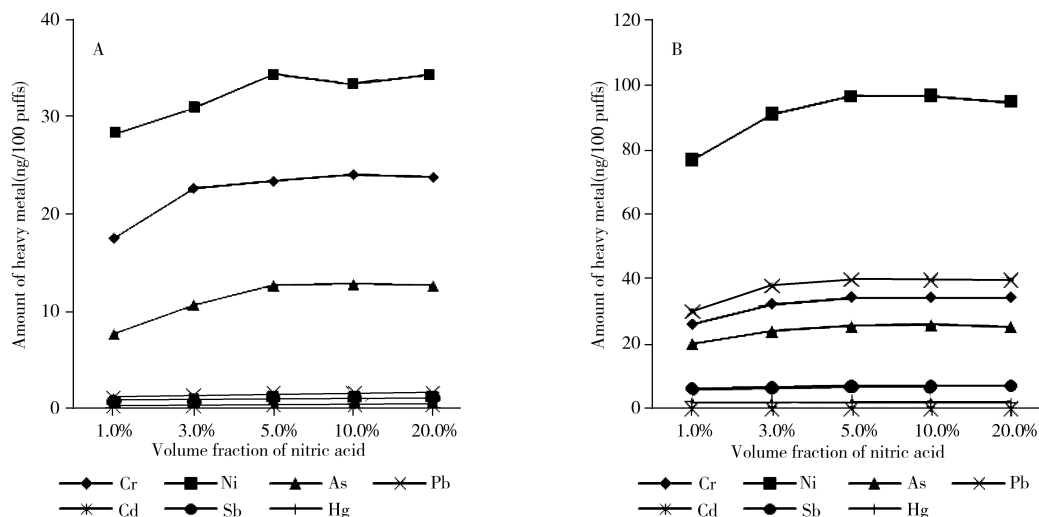


图 2 硝酸溶液浓度对电子烟气溶胶中重金属捕集效果的影响

Fig. 2 Effect of nitric acid volume fraction on the collection of heavy metals in e-cigarette aerosols

A. pre-filled electronic cigarette 1#(预填充式电子烟 1 号样品); B. refillable electronic cigarette 2#(可填充式电子烟 2 号样品)

为了进一步考察捕集溶液硝酸体积对捕集效率的影响,选取预填充式电子烟 1 号、2 号及可填充式电子烟 1 号、2 号样品按“1.2.2”及“1.2.3”实验方法,分别测定捕集液体积为 15.0、25.0、35.0、50.0 mL 时气溶胶中重金属的释放量。结果显示,对于两种类型电子烟,当捕集溶液体积达到 25.0 mL 后,铬、镍、砷、铅、镉、锑及汞元素的检测值较为稳定,说明 25.0 mL 硝酸溶液可实现电子烟气溶胶中重金属的较好捕集。

2.3 捕集瓶级数的选择

为了保证电子烟气溶胶中重金属得到完全捕集,在抽吸系统中接入 3 只捕集瓶,按“1.2.2”对预填充式电子烟 1 号及可填充式电子烟 2 号样品进行抽吸实验,分别测定 3 个捕集瓶中重金属的含量,以考察捕集瓶级数对重金属捕集的影响(见图 3)。结果显示,电子烟气溶胶中的重金属均集中在前 2 只捕集阱的捕集溶液中,第 3 只捕集阱中样品溶液的测定结果低于总量的 2.0%,且前 2 只捕集阱中样品溶液的加和值一致性好,说明串接 2 只捕集阱,每瓶中加入 25.0 mL 5.0% 硝酸溶液即可实现电子烟气溶胶中各目标元素的完全捕集。

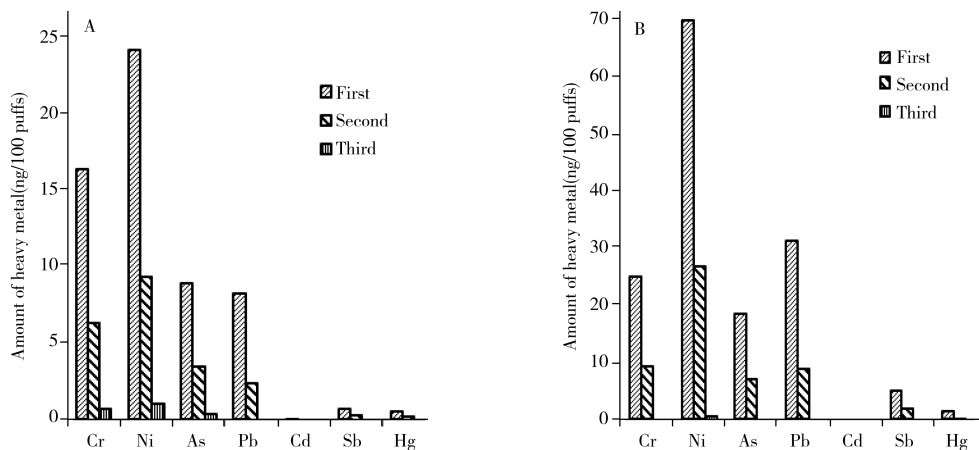


图 3 捕集瓶级数对电子烟气溶胶中重金属捕集的影响

Fig. 3 Effect of cascades of impingers on the collection of heavy metals in e-cigarette aerosols

A. pre-filled electronic cigarette 1#; B. refillable electronic cigarette 2#

2.4 金溶液浓度的选择

金汞齐法是富集痕量汞常用的方法^[18,20-24],已应用于卷烟主流烟气中汞的测定^[25]。为了考察捕

集溶液中金元素对电子烟气溶胶中汞的捕集效率, 本实验选取含金的质量浓度分别为0.1、0.5、1.0、2.0、3.0、4.0、5.0 mg/L的5.0%硝酸溶液, 考察其对汞捕集效率的影响。由于所测样品汞的释放量均较低, 实验采用连续捕集10支电子烟样品, 每个样品连续抽吸100口的方法, 以提高汞的捕集效率。结果显示, 对于两种类型电子烟, 当金的质量浓度达到1.0 mg/L后, 捕集液中汞的含量不再增加, 并趋于稳定。为提高电子烟样品中汞含量检测的准确性, 本方法确定5.0%硝酸溶液中金元素的质量浓度为2.0 mg/L。

2.5 标准工作曲线与方法检出限

在优化条件下, 采用电感耦合等离子体质谱仪对系列标准工作溶液进行测定, 纵坐标为目标元素响应值与内标物响应值的比值, 横坐标为目标元素的质量浓度, 建立标准工作曲线。将最低浓度的标准工作溶液平行测定10次, 所得结果的3倍标准偏差为方法检出限, 10倍标准偏差为方法定量下限。结果显示, 铬、镍、砷、铅和镉的线性范围为0.3~80 $\mu\text{g/L}$, 锑和汞的线性范围为0.3~10 $\mu\text{g/L}$, 相关系数(r^2)均大于0.999, 方法检出限和定量下限分别为0.69~1.19 ng/100 puffs和2.29~3.97 ng/100 puffs。参考传统卷烟重金属含量测定标准YC/T 379-2010^[26], 本方法中各元素的线性关系与灵敏度均能满足标准要求, 能同时测定7种重金属的释放量。

表3 7种重金属的标准曲线与方法检出限
Table 3 Standard curves and method detection limits of seven heavy metals

Element	Linear range($\mu\text{g/L}$)	Regression equation	r^2	LOD (ng/100 puffs)	LOQ (ng/100 puffs)
Cr	0.3~80	$y=7.4 \times 10^{-2}x+2.0 \times 10^{-2}$	0.999 9	1.06	3.53
Ni	0.3~80	$y=8.1 \times 10^{-2}x+4.0 \times 10^{-3}$	0.999 7	0.75	2.50
As	0.3~80	$y=7.7 \times 10^{-3}x+9.0 \times 10^{-5}$	0.999 9	0.69	2.29
Pb	0.3~80	$y=9.1 \times 10^{-3}x+3.0 \times 10^{-4}$	0.999 8	0.74	2.46
Cd	0.3~80	$y=1.9 \times 10^{-3}x+1.0 \times 10^{-5}$	0.999 9	0.76	2.52
Sb	0.3~10	$y=7.3 \times 10^{-3}x+2.0 \times 10^{-4}$	0.999 7	0.74	2.48
Hg	0.3~10	$y=1.1 \times 10^{-3}x+1.0 \times 10^{-3}$	0.999 3	1.19	3.97

2.6 回收率与相对标准偏差

选取预填充式电子烟1号样品, 在低、中、高3个水平下加入7种待测元素标准溶液进行回收率实验, 结果如表4所示。由表4可见, 7种待测重金属的平均加标回收率为96.5%~103%, 说明本方法的准确度良好。进一步选取电子烟样品进行6次重复性实验, 结果显示, 不同元素的稳定性有差异, 铬、镍及铅重复测定的相对标准偏差(RSD)均小于10%, 砷、镉、锑及汞的RSD均大于10%, 可能是由于电子烟加热丝主要成分为铬镍合金, 雾化器底座为含铅的铜锌合金, 铬、镍及铅在电子烟烟液雾化过程中能稳定迁移, 所以铬、镍、铅的重复性较好; 而砷在电子烟金属元件中检出率极低, 来源尚未明确, 其迁移过程不明晰, 所以测得RSD较大^[10,27]; 镉、锑及汞在电子烟气溶胶中含量极低, 数据过小, 使其RSD偏大。

表4 7种重金属的加标回收率与相对标准偏差
Table 4 Spiked recoveries and RSDs elements of seven heavy metals

Element	Original ($\mu\text{g/L}$)	Spiked($\mu\text{g/L}$)	Found($\mu\text{g/L}$)	Recovery(%)	Average abundance (ng/100 puffs)	RSD (%)
Cr	0.93	0.79, 1.59, 3.18	1.71, 2.56, 4.15	102, 101, 102	23.30	9.7
Ni	1.38	0.79, 1.59, 3.18	2.16, 2.98, 4.62	98.4, 99.5, 102	34.43	8.9
As	0.50	0.79, 1.58, 3.16	1.31, 2.11, 3.75	98.0, 103, 102	12.60	12
Pb	0.42	0.81, 1.62, 3.23	1.22, 2.04, 3.79	97.3, 99.1, 100	10.56	6.6
Cd	0.01	0.81, 1.62, 3.23	0.79, 1.59, 3.25	98.6, 100, 103	0.20	14
Sb	0.04	0.80, 1.60, 3.20	0.84, 1.59, 3.26	99.5, 96.8, 101	1.02	14
Hg	0.03	0.08, 0.16, 0.32	0.11, 0.19, 0.35	96.5, 97.6, 99.9	0.78	11

2.7 实际样品的检测

采用本方法测定了不同类型电子烟样品, 并与法国电子烟重金属检测标准方法进行比较^[17], 结果见表5。使用本方法捕集气溶胶时捕集溶液的使用量较法国标准方法多, 其捕集溶液体积较大可能是

本方法检测数据整体略高于法国标准方法的主要原因。此外,本方法利用金汞齐实现了汞的捕集,将气溶胶中汞纳入检测范围,增加了检测方法的适用度。对实际样品的检测结果表明,电子烟气溶胶中铬、镍、砷、铅的检出率较高,镉、锑及汞的检出率较低,镍在电子烟气溶胶中的释放量较高,上述结论与文献一致^[7,10,13-14]。

表 5 两种类型电子烟样品检测数据与法国标准方法的比较

Table 5 Detection results of samples from two types of e-cigarette and comparison with the France Standard method (ng/100 puffs)

Sample type	Cr		Ni		As	
	France method	The proposed method	France method	The proposed method	France method	The proposed method
Pre-filled electronic cigarette	21.64	23.30	31.67	34.43	13.15	12.60
	8.30	8.16	41.68	44.46	6.22	7.58
	18.54	20.95	62.00	63.37	B/LOQ	2.38
	N/D	N/D	33.48	35.20	N/D	N/D
	7.11	7.45	23.74	25.26	6.43	8.92
Refillable electronic cigarette	4.89	5.20	18.86	18.55	7.25	7.98
	30.42	34.28	91.89	96.55	26.06	25.46
	5.00	5.20	40.99	39.10	3.79	3.13
	13.76	11.30	25.57	23.80	B/LOQ	B/LOQ
	31.57	29.56	80.59	84.26	40.33	42.69

Sample type	Pb		Cd		Sb		Hg	
	France method	The proposed method	France method	The proposed method	France method	The proposed method	France method	The proposed method
Pre-filled electronic cigarette	10.12	10.56	N/D	N/D	B/LOQ	B/LOQ	- *	N/D
	5.76	6.54	N/D	N/D	N/D	N/D	-	N/D
	B/LOQ	B/LOQ	N/D	N/D	B/LOQ	B/LOQ	-	B/LOQ
	13.55	12.15	N/D	N/D	N/D	N/D	-	N/D
	7.25	8.56	N/D	N/D	N/D	N/D	-	N/D
Refillable electronic cigarette	6.78	7.80	N/D	N/D	N/D	N/D	-	B/LOQ
	39.99	39.72	N/D	N/D	6.20	6.86	-	B/LOQ
	6.24	6.58	N/D	N/D	N/D	N/D	-	N/D
	15.49	15.13	N/D	N/D	4.59	4.10	-	B/LOQ
	11.27	12.58	N/D	N/D	B/LOQ	B/LOQ	-	B/LOQ

* : no data; N/D and B/LOQ represented were the same as those in Table 2

3 结 论

本文建立了稀硝酸金溶液捕集,电感耦合等离子体质谱测定电子烟气溶胶中铬、镍、砷、铅、镉、锑和汞释放量的方法。通过优化电子烟气溶胶捕集方式和捕集条件,使方法具有试剂用量较少、分析效率较高、方法准确、结果重复性好等特点。应用本方法对预填充式电子烟与可填充式电子烟中的铬、镍、砷、铅、镉、锑和汞的释放量进行了检测,检测数据与法国电子烟重金属检测标准方法的一致性较好,相关研究结果可为后续电子烟产品质量控制和人体健康危害评价提供数据支撑和技术支持。

参考文献:

- [1] Stratton K. Public Health Consequences of E-cigarettes. Washington, DC: *The National Academies Press*, **2018**: 46-159.
- [2] Xie J P. *The 2014 Annual Conference Proceedings Published by China Tobacco Society*(谢剑平. 中国烟草学会 2014 年学术年会报告文集), **2014**: 1-16.
- [3] De Long N E, Holloway A C. *Diabetes Metab. Syndr. Obes.*, **2017**, 10: 101-109.
- [4] Huang C L, Bao L J, Luo P, Wang Z Y, Li S M, Zeng E Y. *J. Hazard. Mater.*, **2016**, 317: 449-456.
- [5] Wagner J G, Allen K, Yang H Y, Nan B, Morishita M, Mukherjee B, Dvonch J T, Spino C, Fink G D, Rajagopalan S, Sun Q, Brook R D, Harkema J R. *Environ. Health Perspect.*, **2014**, 122(1): 27-33.
- [6] Behar R Z, Luo W, Lin S C, Wang Y, Valle J, Pankow J F, Talbot P. *Tob. Control*, **2016**, 25: ii94-ii102.
- [7] Aherrera A, Olmedo P, Grau-Perez M, Tanda S, Goessler W, Jarmul S, Chen R, Cohen J E, Rule A M, Navas-Acien A. *Environ. Res.*, **2017**, 159: 313-320.
- [8] Olmedo P, Goessler W, Tanda S, Grau-Perez M, Jarmul S, Aherrera A, Chen R, Hilpert M, Cohen J E, Navas-Acien A, Rule A M. *Environ. Health Persp.*, **2018**, 126(2): 027010. <https://doi.org/10.1289/EHP2175>.

- [9] Saffari A, Daher N, Ruprecht A, Marco C D, Pozzi P, Boffi R, Hamad S H, Shafer M M, Schauer J J, Westerdahl D, Sioutas C. *Environ. Sci. Proc. Impacts*, **2014**, 16(10): 2259 – 2267.
- [10] Fan M J, Wang H B, Zhao L, Cui H P, Chen L, Pan L N, Guo J W, Liu H M. *Tob. Sci. Technol.* (樊美娟, 王洪波, 赵乐, 崔华鹏, 陈黎, 潘立宁, 郭军伟, 刘惠民. 烟草科技), **2019**, 52(2): 40 – 46.
- [11] Monique W, Amanda V, Krassimir B, Sabrina L, Prue T. *PLoS ONE*, **2013**, 8(3): e57987.
- [12] Hess C A, Olmedo P, Navas – Acien A, Goessler W, Cohen J E, Rule A M. *Environ. Res.*, **2017**, 152: 221 – 225.
- [13] Monique W, An T, Krassimir B, Prue T. *PLoS ONE*, **2015**, 10(9): e0138933.
- [14] Goniewicz M L, Knysak J, Gawron M, Kosmider L, Sobczak A, Kurek J, Prokopowicz A, Jablonska – Czapla M, Rosik – Dulewska C, Havel C, Jacob P, Benowitz N. *Tob. Control*, **2014**, 23: 133 – 139.
- [15] ShenzhenHstar Technology Co. . Ltd. China Patent(深圳瀚星翔科技有限公司. 中国专利), 201610659326. 4. [2016 – 08 – 11].
- [16] Shanghai Tobacco Group Co. . Ltd. China Patent(上海烟草集团有限责任公司. 中国专利), 201710930277. 8. [2017 – 10 – 09].
- [17] XP D 90 – 300 – 1. *Electronic Cigarettes and E – liquids*. French Standardization. **2016**.
- [18] Rolison J M, Landing W M, Luke W, Cohen M, Salters V J M. *Chem. Geol.*, **2013**, 336: 37 – 49.
- [19] CORESTA Recommended Method No 81, Routine Analytical Machine for E-cigarette Aerosol Generation and Collection Definitions and Standard Conditions. **2015**[2019 – 09 – 20]. <https://www.coresta.org/routine – analytical – machine – e – cigarette – aerosol – generation – and – collection – definitions – and – standard>
- [20] Huang S Y, Yuan D X, Sun L M. *J. Instrum. Anal.* (黄舒元, 袁东星, 孙鲁闽. 分析测试学报), **2016**, 35(6): 704 – 708.
- [21] Zhao X X, Lu Y F, Wu L P, Bi Y, Zhang L L. *Metall. Anal.* (赵小学, 卢一富, 武力平, 毕越, 张霖琳. 冶金分析), **2015**, 35(9): 52 – 57.
- [22] Peng C F, Pan Q L, Xie Z J, Wan F M. *J. Instrum. Anal.* (彭池方, 泮秋立, 谢正军, 万芳梅. 分析测试学报), **2014**, 33(11): 1312 – 1316.
- [23] Fu X, Heimbürger L E, Sonke J E. *J. Anal. Atom. Spectrom.*, **2014**, 29(5): 841 – 852.
- [24] Liang Y, Yuan D X, Zhang Z. *Chin. J. Spectrosc. Lab.* (梁英, 袁东星, 章臻. 光谱实验室), **2010**, 27(6): 2111 – 2117.
- [25] Shanghai Tobacco Group Co. , Ltd. . China Patent(上海烟草集团有限责任公司. 中国专利), 201510030967. 9. [2015 – 05 – 06].
- [26] YC/T 379 – 2010. Cigarettes—Determination of Chromium Nickel Arsenic Selenium Cadmium Lead in Mainstream Cigarette Smoke—Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry Method(YC/T 379 – 2010. 卷烟主流烟气中铬、镍、砷、硒、镉、铅的测定 电感耦合等离子体质谱法).
- [27] Han S Y, Zhu F P, Fu Y N, Liu T, Pang Y Q, Cui H P, Fan M J, Liu S F, Chen H. *Tob. Sci. Technol.* (韩书磊, 朱凤鹏, 付亚宁, 刘彤, 庞永强, 崔华鹏, 樊美娟, 刘绍锋, 陈欢. 烟草科技), **2018**, 51(11): 73 – 78.

(责任编辑: 龙秀芬)