

超高效液相色谱-串联质谱法同时测定食醋、酱油及料酒中的13种甜味剂和防腐剂

汤丽昌, 陈高健, 梁国华*

(北海市食品药品检验所, 北海 536000)

摘要: **目的** 建立超高效液相色谱-串联质谱法(ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry, UPLC-MS/MS)同时测定食醋、酱油及料酒中13种甜味剂和防腐剂含量的分析方法。**方法** 采用Atlantis® T3色谱柱(2.1 mm×150 mm, 3 μm), 柱温30 °C, 流动相由A(甲醇)和B(10 mmol/L甲酸和10 mmol/L甲酸铵溶液)组成, 梯度洗脱, 流速0.2 mL/min。采用电喷雾负离子(electron spray ionization, ESI-)模式电离, 多反应监测(multiple reaction monitoring, MRM)模式检测, 外标法定量。**结果** 此方法可快速准确检测苯甲酸等13种甜味剂和防腐剂, 浓度范围在1~200 mg/kg内线性相关良好, 相关系数(r)均大于0.996, 平均回收率为85.7%~112.1%, 相对标准偏差(relative standard deviation, RSD)为2.2%~7.7% ($n=6$)。**结论** 该方法快速、准确, 灵敏度高, 适用于食醋、酱油及料酒中13种甜味剂和防腐剂的快速筛查和定量分析。

关键词: 超高效液相色谱-串联质谱法; 食醋; 酱油; 料酒; 甜味剂; 防腐剂

Simultaneous determination of 13 preservatives and sweeteners in vinegar, soy sauce and seasoning wine by ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry

TANG Li-Chang, CHEN Gao-Jian, LIANG Guo-Hua*

(Beihai Food & Drug Inspection and Testing Institute, Beihai 536000, China)

ABSTRACT: Objective To establish a method for simultaneous determination of 13 preservatives and sweeteners in vinegar, soy sauce and seasoning wine by ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry (UPLC-MS/MS). **Methods** The chromatographic separations were obtained on a Atlantis® T3 column (2.1 mm×150 mm, 3 μm) using the phase A (methanol), and mobile phase B (10 mmol/L formic acid and 10 mmol/L ammonium formate in water) as mobile phase. The flow rate was 0.2 mL/min for gradient elution, and the column temperature was held at 30 °C. Under the electro spray ionization (ESI-) mode with negative ions, multiple reactions monitoring (MRM) was used as the basis for quantitative analysis by external standard method. **Results** This method could quickly and accurately detect preservatives and sweeteners, such as benzoic acid. The 13 preservatives and sweeteners had good linear relationships in the range of 1–200 mg/kg, and the correlation coefficients (r) were all more than 0.996. The average recoveries were 85.7%–112.1%, with relative standard deviation (RSD) of 2.2%–7.7% ($n=6$). **Conclusions** This method is rapid, accurate and sensitive, and is suitable for the rapid screening and quantitative analysis of 13 preservatives and sweeteners in vinegar, soy sauce and seasoning wine.

*通信作者: 梁国华, 副主任药师, 主要研究方向为食品化学性风险及安全控制研究。E-mail: 2301933842@qq.com

*Corresponding author: LIANG Guo-Hua, Associate Chief Pharmacist, Beihai Food & Drug Inspection and Testing Institute, Xinshiji Road, Yin Hai District, Beihai 536000, China. E-mail: 2301933842@qq.com

KEY WORDS: ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry; vinegar; soy sauce; seasoning wine; sweetener; preservatives

0 引言

甜味剂和防腐剂是食醋、酱油及料酒中主要的添加剂,合理使用甜味剂能够改善产品的口味,适当的添加防腐剂能防腐、保鲜从而延长产品的保质期^[1-2]。但是一些不良商家在利益驱使下,存在超限量、超范围滥用、重复使用、违禁使用等现象,使食品添加剂的安全问题又成为了食品安全方面的重大问题^[3-6]。甜味剂本身没有太大营养价值,也对人没有直接的害处,但可能会影响人体的代谢,其安全性问题尚无定论^[7]。防腐剂是一类为保持食品品质和抑制微生物生长繁殖的物质,但大多还具有一定的毒副作用^[8]。此外,有研究报道糖精钠、柠檬黄分别与苯甲酸钠联合作用于 L-929 细胞,可表现出毒性相加作用,食品添加剂的混合使用还可能产生联合毒性作用^[9]。为保证食品安全,我国对甜味剂和防腐剂的使用限量范围有明确规定^[2]。食醋、酱油和料酒是我们日常生活中必不可少的调味制品,其安全重要性不言而喻。因此,有必要针对食醋、酱油和料酒中的甜味剂、防腐剂的分析方法进行研究。

目前,国家标准针对甜味剂和防腐剂等的检测主要以液相色谱法、气相色谱法为主要检测手段,而且各成分间执行检测方法标准又各不相同^[9-14],液相色谱法和气相色谱法存在前处理麻烦、耗时长、受基质干扰大、容易出现假阳性干扰等缺陷。而从目前对食醋、酱油及料酒中甜味剂和防腐剂的检测方法研究报道来看,存在检测调味品产品单一、所测成分较少、前处理复杂等,针对食醋、酱油及料酒中甜味剂、防腐剂多成分同时检测的研究较少等问题^[15-21]。因此,本研究参考陈宁周等^[22]的研究,建立了一种高效液相色谱-串联质谱法同时检测食醋、酱油及料酒等调味制品中 13 种甜味剂和防腐剂的检测方法,其中,9 种甜味剂分别是甜蜜素、三氯蔗糖、安赛蜜、阿斯巴甜、纽甜、赤鲜糖醇、糖精钠、甘草酸、山梨糖醇;4 种防腐剂分别是山梨酸、苯甲酸、脱氢乙酸、对羟基苯甲酸乙酯,为食醋、酱油及料酒等调味制品中甜味剂及防腐剂的快速筛查及定量检测提供有效检测的方法。

1 材料与方 法

1.1 仪器与材料

1.1.1 仪 器

LC-MS/MS G6460 高效液相色谱-串联质谱仪(具体配置为 1290 超高效液相色谱仪, G6460 三重串联四极杆质谱仪, Agilent Mass Hunter B.06.00 工作站, 美国 Agilent 公司);

XS205DU 十万分之一电子分析天平(瑞士 Mettler 公司); 3-18KS 高速台式冷冻离心机(德国 Sigma 公司); 5510E-DTH 超声波清洗仪(上海必能信超声有限公司); S1-T256 漩涡振荡器(上海苑胜仪器设备有限公司); Mili-Q 超纯水仪(德国 Merck 公司)。

1.1.2 试剂与材料

甲醇(色谱纯, 美国 Fisher 公司); 甲酸、乙酸铵(色谱纯, 美国 Tedia 公司); 亚铁氰化钾、乙酸锌(优级纯, 天津市光复科技发展有限公司); 水为 Mili-Q 制备超纯水(美国 Millipore 公司)。标准物质: 苯甲酸、山梨酸、糖精钠混标液[国家标准物质 GBW(E)082264]、甜蜜素(纯度 99.9%)、安赛蜜(纯度 99.0%)、山梨醇(纯度 98.6%)(德国 Dr Ehrenstorfer GmbH 公司); 三氯蔗糖(纯度 99.8%)、甘草酸(纯度 93.0%)、对羟基苯甲酸乙酯(纯度 99.0%)、赤鲜糖醇(纯度 98.0%)(中国食品药品检定研究院); 纽甜(纯度 98.0%, 上海安谱生物科技有限公司); 阿斯巴甜(纯度 99.7%)、脱氢乙酸(纯度 99.9%)(美国 TM standard 公司)。

食醋、酱油、料酒, 均购自零售超市和农贸市场。

1.2 实验方法

1.2.1 对照品溶液制备

精密称(量)取甘草酸、三氯蔗糖、纽甜、阿斯巴甜、糖精钠、山梨醇、甜蜜素、脱氢乙酸、对羟基苯甲酸乙酯、安赛蜜、赤鲜糖醇、苯甲酸、山梨酸对照品适量, 加 50% 甲醇分别制成 1.000 mg/mL 贮备液。分别精密量取各对照品溶液 1 mL, 置于同一 50 mL 量瓶中, 50% 甲醇稀释至刻度, 摇匀, 即得甘草酸、三氯蔗糖、纽甜、阿斯巴甜、糖精钠、山梨醇、甜蜜素、脱氢乙酸、对羟基苯甲酸乙酯、安赛蜜、赤鲜糖醇、苯甲酸、山梨酸混合对照品溶液。

1.2.2 供试品溶液

准确称取食醋、酱油、料酒 5 g 于 50 mL PE 管中, 加水约 20 mL, 涡旋混匀, 于 50 °C 水浴超声 20 min, 冷却至室温后加亚铁氰化钾溶液 1 mL 和乙酸锌溶液 1 mL, 加甲醇至 50 mL 刻度, 混匀, 置离心机中, 于 10000 r/min 离心 5 min, 取上清液, 经 0.22 μm 的微孔滤膜过滤, 取续滤液, 即得。

1.2.3 空白样品溶液

除不加试样外, 称取 5 g 超纯水, 按“1.2.2”项下方法同法制备溶剂空白样品溶液。

1.2.4 仪器条件

色谱条件: Atlantis® T3 色谱柱(2.1 mm×150 mm, 3 μm); 流动相: 甲醇(A)-10 mmol/L 甲酸和 10 mmol/L 甲酸铵溶液(B); 梯度洗脱: 0~1 min, 10%B; 1~5 min,

10%→90%B; 5~8 min; 90%B; 8~10 min, 90%→10%B; 流速为 0.2 mL/min; 柱温: 30 °C; 进样量: 5 μ L。

质谱条件: 电喷雾负离子源模式(electronic spray ion, ESI-); 扫描方式为多反应监测(multiple reaction monitoring, MRM); 雾化气压力: 30 psi; 干燥气温度: 250 °C; 干燥气流速: 8 L/min; 毛细管电压为 3500 V; MRM 模式定量。13 种食品添加剂的母离子、子离子、碎裂电压(fragmentor)、碰撞能量(collision energy, CE)等质谱参数见表 1。

2 结果与分析

2.1 样品前处理优化

为减少基质干扰, 参考国标等方法^[14,19], 采用加沉淀剂和离心除去杂质, 为兼顾目标物溶解性、溶剂效应并结合加样回收结果分析, 确定 50%甲醇提取溶剂使样品提取完全。

2.2 色谱条件优化

本研究分别考察了 Agilent SB C₁₈ 色谱柱 (2.1 mm×50 mm, 1.8 μ m)、Agilent EclipsePlus C₁₈ 色谱柱 (2.1 mm×50 mm, 1.8 μ m)、Agilent XDB C₁₈ 色谱柱 (3.0 mm×100 mm, 1.8 μ m) 及 Atlantis R T3 色谱柱 (2.1 mm×150 mm, 3 μ m), 发现在使用前 3 种色谱柱时, 甲醇比例为 5% 时, 多种成分不到 1 min 就出峰, 且峰型较差, 达不到色谱质谱分析要求, 而有机相比例至少 5%, 否则色谱柱键合相碳链会发生卷曲, 导致色谱柱性

能不稳定, 因此无法通过降低有机相比例来延迟出峰时间和分离能效。在选择 AtlantisR T3 色谱柱(2.1 mm×150 mm, 3 μ m)以甲醇(A)-10 mmol/L 甲酸+10 mmol/L 甲酸铵水溶液(B)为流动相, 以 10%有机相(A)为起始比例, 梯度洗脱, 流速 0.2 mL/min 条件下均可以达到较好的分离和峰型, 可满足检测液相条件要求, 最终确定采用 AtlantisR T3 色谱柱。

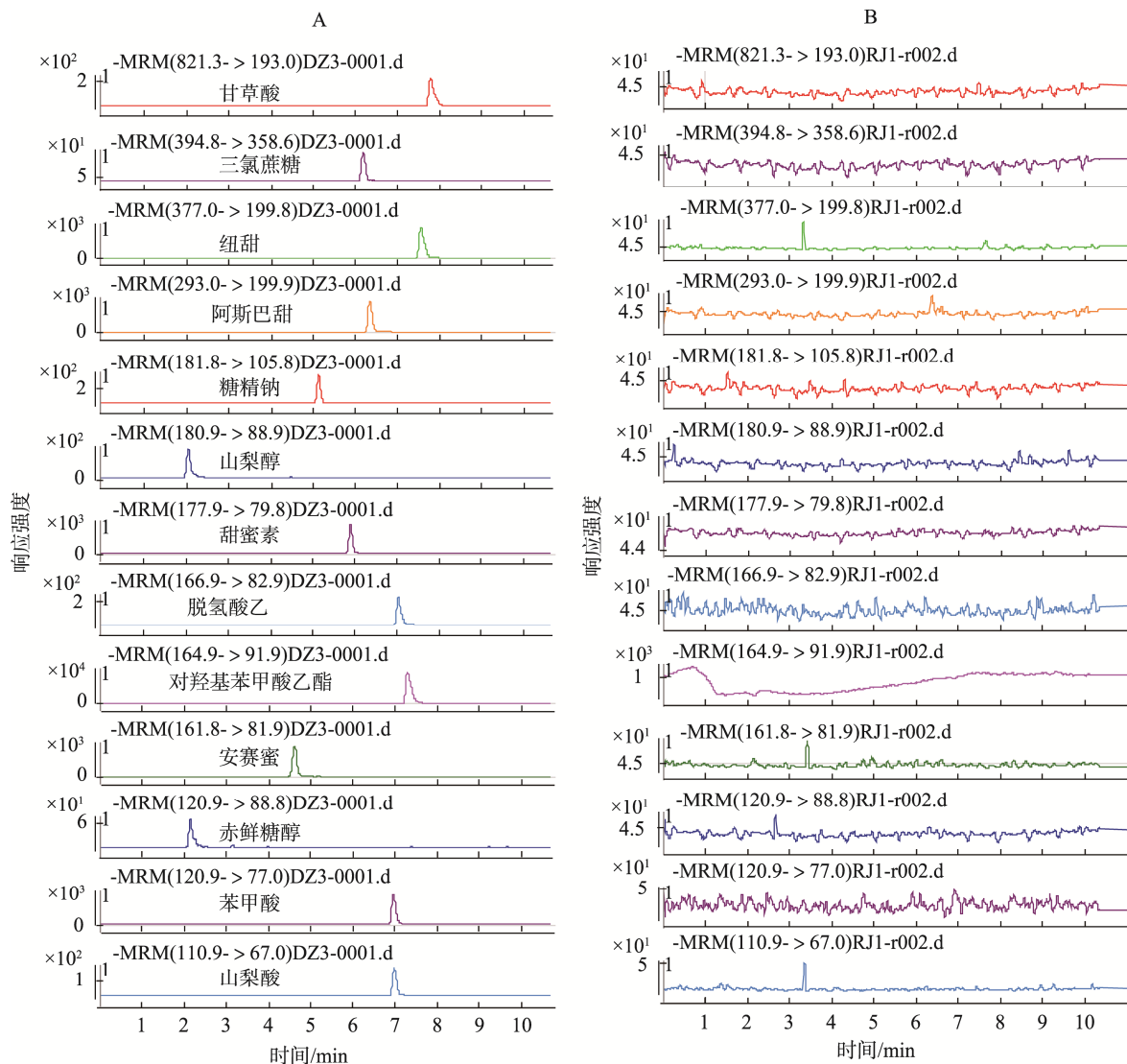
2.3 质谱条件优化

通过预实验发现 13 种甜味剂和防腐剂均在负离子扫描模式(ESI-)下显示较大响应值。因此, 本研究采用负离子模式(ESI-), 优化了各成分母离子及其最佳碎裂电压(fragmentor), 通过施加不同碰撞能然后找出特定子离子, 优化得到各子离子的最佳碰撞能, 最后在 MRM 模式下优化各成分的质谱参数, 优化所得质谱条件使各成分均显示出较高的检测灵敏度。优化所得 13 种成分 UPLC-MS/MS 色谱图结果见图 1, 由图 1 可知, 13 种成分分离良好无干扰, 且峰形较好。在优化质谱条件时发现, 苯甲酸和山梨酸将碰撞能量由 0 eV 加大至仪器允许最高值 60 eV, 均只能产生一个峰型良好且响应值高的子离子, 从质荷比和稳定性推测苯甲酸产生的子离子为一个带负电荷的苯环结构, 推测山梨酸为脱去羧基后带一个负电荷的戊二烯烃碎片结构。苯甲酸与山梨酸虽然只产生一个子离子, 但可以从保留时间、母离子、子离子以及合理的丰度比来确证及定量, 故不影响检测要求。

表 1 13 种待测甜味剂、防腐剂质谱条件
Table 1 MS parameters for 13 preservatives and sweeteners under tests

序号	化合物名称	母离子(<i>m/z</i>)	子离子(<i>m/z</i>)	碎裂电压/V	碰撞能量/eV
1	甘草酸	821.3	193.0 [*] 、351.0	135	45 [*] 、50
2	三氯蔗糖	394.8	358.6 [*] 、160.9	135	5 [*] 、5
3	纽甜	377.0	199.8 [*] 、345.0	135	10 [*] 、5
4	阿斯巴甜	293.0	199.9 [*] 、260.9	70	5 [*] 、5
5	糖精钠	181.8	105.8 [*] 、42.0	120	15 [*] 、25
6	山梨醇	180.9	59.0 [*] 、88.9	85	15 [*] 、10
7	甜蜜素	177.9	79.8 [*] 、95.9	135	25 [*] 、25
8	脱氢乙酸	166.9	82.9 [*] 、122.9	70	10 [*] 、5
9	对羟基苯甲酸乙酯	164.9	91.9 [*] 、136.9	110	20 [*] 、10
10	安赛蜜	161.8	81.9 [*] 、77.9	80	10 [*] 、30
11	赤鲜糖醇	120.9	88.8 [*] 、71.0	60	5 [*] 、10
12	苯甲酸	120.9	77.0 [*]	70	5 [*]
13	山梨酸	110.9	67.0 [*]	110	45 [*]

注: *为定量离子及其相应的碰撞能量。



注: A. 对照品; B. 空白样品。

图 1 多反应监测模式下 13 种成分 UPLC-MS/MS 色谱图

Fig.1 UPLC-MS/MS chromatograms of 13 constituents with MRM model

2.4 线性关系、定量限和检测限

在确定的最优实验条件下,精密量取混合对照品溶液,采用倍数稀释法用 50% 甲醇分别稀释 1、2、4、10、20、100 倍,制得 6 个不同浓度梯度的系列溶液,分别进样测定 3 次,记录峰面积。以对照品待测液浓度(X , mg/kg)为横坐标,峰面积平均值(Y)为纵坐标进行回归,得到 13 种甜味剂、防腐剂的标准曲线线性回归方程、相关系数,再将混合对照品溶液逐步稀释,分别以信噪比 $S/N=10$ 、 $S/N=3$ 时的质量浓度作为定量限(limits of quantification, LOQ)和检出限(limits of detection, LOD),结果见表 2,表明各成分在各自范围内线性关系良好($r > 0.996$)。由定量限和检出限结果可以看出,本方法有较高灵敏度,满足

检测的要求。

2.5 加样回收率及精密度

本研究分别选取食醋、酱油及料酒阴性样品为样品,分别添加 3 个质量浓度水平的标样溶液,浓度梯度分别为: 10、20、100 mg/kg,对食醋样品进行加标回收实验,按照以上最优实验方法,分别测定其含量,不同浓度水平样品进行 6 次重复实验,计算出加标回收率及精密度,结果见表 3。13 种甜味剂、防腐剂的回收率为 85.7%~112.1%,表明该方法回收率良好。相对标准偏差(relative standard deviation, RSD)为 2.2%~7.7%,表明该方法精密度良好。

表 2 13 种成分的回归方程、线性范围、相关系数、定量限和检出限

Table 2 Regression equations, linear ranges, correlation coefficients, limits of quantification, and limits of detection of 13 constituents

化合物名称	回归方程	线性范围/(mg/kg)	相关系数 r	定量限/(mg/kg)	检出限/(mg/kg)
甘草酸	$Y=271.73X+243.38$	1~200	0.9997	0.10	0.03
三氯蔗糖	$Y=40.23X+39.86$	1~200	0.9976	0.86	0.26
纽甜	$Y=6413.80X+5031.12$	1~200	0.9986	0.16	0.05
阿斯巴甜	$Y=3121.52X+1550.45$	1~200	0.9996	0.03	0.01
糖精钠	$Y=314.32X+210.61$	1~200	0.9993	0.10	0.03
山梨醇	$Y=610.03X+263.72$	1~200	0.9989	0.17	0.05
甜蜜素	$Y=1520.61X-256.88$	1~200	0.9995	0.07	0.02
脱氢乙酸	$Y=286.16X-41.60$	1~200	0.9996	0.73	0.22
对羟基苯甲酸乙酯	$Y=53194.02X+753.54$	1~200	0.9991	0.03	0.01
安赛蜜	$Y=531.51X-876.69$	1~200	0.9982	0.07	0.02
赤鲜糖醇	$Y=22.36X+14.881$	1~200	0.9968	1.0	0.30
苯甲酸	$Y=2261.14X+291.26$	1~200	0.9998	0.20	0.06
山梨酸	$Y=139.32X+22.14$	1~200	0.9993	0.43	0.13

表 3 回收率及精密度测定结果($n=6$)Table 3 Determination results of recoveries and precision ($n=6$)

化合物名称	加标浓度/(mg/kg)	食醋		酱油		料酒	
		回收率/%	RSD/%	回收率/%	RSD/%	回收率/%	RSD/%
甘草酸	10	103.3	2.9	98.3	3.7	97.4	6.6
	20	101.1	4.1	103.5	3.6	99.8	5.1
	100	99.9	2.6	97.2	4.9	103.2	4.3
三氯蔗糖	10	85.7	7.7	92.5	7.1	93.5	6.3
	20	93.3	6.5	98.6	5.3	99.6	5.4
	100	88.9	7.1	96.3	6.6	94.2	7.5
纽甜	10	98.5	5.1	97.3	7.3	96.6	3.7
	20	94.3	3.8	94.8	6.3	100.3	5.0
	100	96.5	6.1	90.5	5.4	96.7	4.3
阿斯巴甜	10	110.4	3.9	99.5	5.3	99.6	5.3
	20	112.1	2.7	96.8	4.1	102.1	5.0
	100	108.7	4.4	97.3	5.2	99.7	4.2
糖精钠	10	98.8	2.5	91.7	3.9	88.8	7.5
	20	103.6	3.6	100.1	4.1	95.6	3.7
	100	104.1	4.8	105.7	4.6	97.5	6.2
山梨醇	10	97.1	4.1	105.7	5.0	107.9	5.3
	20	92.7	5.4	98.9	4.4	106.4	4.2
	100	93.5	2.9	96.4	2.9	102.1	5.6

表 3(续)

化合物名称	加标浓度/(mg/kg)	食醋		酱油		料酒	
		回收率/%	RSD/%	回收率/%	RSD/%	回收率/%	RSD/%
甜蜜素	10	97.6	4.7	103.4	5.2	98.6	4.1
	20	98.3	3.6	105.2	4.1	97.6	3.6
	100	96.4	5.2	96.6	3.9	101.3	5.7
脱氢乙酸	10	103.7	5.5	97.9	4.5	99.4	7.1
	20	105.5	3.1	96.2	5.8	103.7	4.5
	100	101.4	3.6	98.9	7.1	97.7	5.6
对羟基苯甲酸乙酯	10	112.0	3.1	96.8	5.5	89.7	4.7
	20	109.3	5.6	98.9	4.2	91.4	4.9
	100	105.4	4.3	102.3	3.0	96.9	5.7
安赛蜜	10	99.7	6.6	102.2	4.9	91.8	6.9
	20	101.2	3.6	104.1	6.5	93.0	4.1
	100	102.3	4.7	101.5	5.5	96.7	5.1
赤鲜糖醇	10	88.7	6.9	93.7	4.3	91.7	5.0
	20	95.4	5.6	98.3	5.7	97.9	6.6
	100	103.9	4.4	101.2	4.1	98.7	6.9
苯甲酸	10	98.9	3.8	102.7	4.5	103.1	4.9
	20	99.5	3.9	99.5	5.1	104.0	4.7
	100	100.7	4.9	101.4	4.7	101.4	6.1
山梨酸	10	99.9	3.1	97.8	2.2	102.6	4.2
	20	102.9	5.2	99.6	3.1	99.6	2.5
	100	101.1	4.5	100.7	4.6	98.3	4.5

2.6 实际样品测定

按所建立的最优方法对 6 批次食醋、6 批次酱油、6 批次料酒进行了 13 种甜味剂及防腐剂的筛查检测, 每个样品重复测定 3 次, 检测结果见表 4。测定结果参照 GB 2760—2014《食品安全国家标准 食品添加剂使用标准》^[2]进行判定, 结果显示除料酒 3 不符合规定外, 所测其他样品均在限值内或未检出, 均符合标准规定。本方法所得结果和本所检验员使用国标方法检测结果基本一致, 该方法较各国标方法操作简便, 结果准确, 重复性好, 可同时检测食醋、酱油、料酒中多种甜味剂和防腐剂。料酒 3 中苯甲酸是否人为加入、原材料带入或污染, 有待进一步考证。

3 结论与讨论

目前, 国家标准对甜味剂及防腐剂的测定方法存在测量目标物单一, 如安赛蜜^[10]、甜蜜素^[11]、三氯蔗糖^[12]等, 即一个国家标准对应 1 个单一成分的检测, 且标准前

处理较为繁琐, 如衍生化、过小柱等。就现有国标显示, 最多同时测定 3 个成分^[13], 均存在检测所需时间较长, 检测成本较高的缺点。现有关同时测定酱油、食醋、料酒中的多种甜味剂、防腐剂的文献报道较少, 最多同时测定食醋和酱油中的 6 种防腐剂和甜味剂^[16-21]。相比国标和文献报道, 本研究针对酱油、食醋、料酒中 13 种甜味剂和防腐剂的测定进行了快速、高通量检测研究, 所检测样品种类较多、检测目标成分较全、样品前处理简单及进样检测时间短, 该研究能够显著提高检测效率并降低成本。

经方法学考察验证和多批次市售样品测试, 本研究建立了 UPLC-MS/MS 同时检测食醋、酱油及料酒中 13 种甜味剂及防腐剂的分析方法。与国家标准方法和文献比较, 该方法前处理简便快速、专属性强、灵敏度高, 满足产品中目标物的定性及定量要求, 其快速性可对食醋、酱油及料酒样品进行快速筛查, 较强的专属性避免假阳性检测结果产生的误判, 可以为食醋、酱油及料酒的质量控制、安全评价提供科学依据。

表4 样品测定结果(g/kg, n=3)
Table 4 Determination results of samples (g/kg, n=3)

编号	甘草酸	三氯蔗糖	纽甜	阿斯巴甜	糖精钠	山梨醇	甜蜜素	脱氢乙酸	对羟基苯甲酸乙酯	安赛蜜	赤鲜糖醇	苯甲酸	山梨酸
食醋 1	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
食醋 2	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.0124	ND
食醋 3	ND	0.1245	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.0113	ND
食醋 4	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.0137	ND
食醋 5	ND	0.0609	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.0119	ND
食醋 6	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
食醋标准规定	∞	0.25	0.012	3.0	/	∞	/	/	0.25	0.5	/	1.0	1.0
酱油 1	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
酱油 2	ND	0.0735	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.1234	ND
酱油 3	0.0254	0.0834	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.1198	ND
酱油 4	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.1003	ND
酱油 5	ND	0.0786	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.1328	ND
酱油 6	ND	0.0721	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.1174	ND
酱油标准规定	∞	0.25	ND	ND	ND	∞	ND	ND	0.25	1.0	ND	1.0	1.0
料酒 1	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
料酒 2	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
料酒 3	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.0083	ND
料酒 4	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
料酒 5	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
料酒 6	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
料酒标准规定	∞	/	/	/	/	∞	/	/	/	/	/	/	/

注: 样品中“ND”为未检出,“∞”为按生产需要适量使用,标准规定中“/”为不得使用,标准规定值均指允许最大使用量。

参考文献

- [1] 付玉明. 食品添加剂的安全标准与罪量判断[J]. 法学杂志, 2016, (8): 37-47.
FU YM. Safety standards for food additives and sentencing [J]. Law Sci Mag, 2016, (8): 37-47.
- [2] GB 2760—2014 食品安全国家标准 食品添加剂使用标准[S].
GB 2760—2014 National food safety standard-Standards for uses of food additives [S].
- [3] 毛伟峰, 宋雁. 食品中常见甜味剂使用方面存在的主要问题及危害[J]. 食品科学技术学报, 2018, 36(6): 9-14.
MAO WF, SONG Y. Major problems and hazards in use of sweeteners commonly found in foods [J]. J Food Sci Technol, 2018, 36(6): 9-14.
- [4] 朱鹏越. 浅析食品添加剂的作用以及食品安全的重要性[J]. 食品安全导刊, 2018, (30): 49-51.
ZHU PY. Analysis of the role of food additives and the importance of food safety [J]. Chin Food Saf Magaz, 2018, (30): 49-51.
- [5] 赵广西, 刘浩, 葛娜, 等. 饮料中常用防腐剂、甜味剂和色素的检测[J]. 中外葡萄与葡萄酒, 2014, (4): 43-46.
ZHAO GX, LIU H, GE N, *et al.* Determination of commonly used preservatives, sweeteners and pigments in beverages [J]. Sino-Overseas Grap Wine, 2014, (4): 43-46.
- [6] 刘思奇. 浅谈调味料酒的安全[J]. 中国调味品, 2015, 40(5): 133-135.
LIU SQ. Analysis of the safety of seasoning [J]. China Cond, 2015, 40(5): 133-135.
- [7] JOTHAM S, TAL K, DAVID Z, *et al.* Artificial sweeteners induce glucose intolerance by altering the gut microbiota [J]. Nature, 2014, 514(7521): 181-186.
- [8] 罗志刚, 唐昊天, 孙伯文. 高效液相色谱法同时测定饮料中合成色素、甜味剂和防腐剂[J]. 实用预防医学, 2010, 17(8): 1656-1658.
LUO ZG, TANG HT, SUN BW. HPLC method for simultaneous

- determination of synthetic pigments, sweeteners and preservatives in drink [J]. *Pract Prev Med*, 2010, 17(8): 1656–1658.
- [9] 付佳, 吴赤蓬, 邹志飞. 苯甲酸钠与糖精钠、柠檬黄对 L-929 细胞联合毒性的研究[J]. *毒理学杂志*, 2010, 24(1): 47–50.
FU J, WU CP, ZOU ZF. Study on the joint toxicity of Sodium Benzoate, saccharin sodium and tartrazine to L-929 cells [J]. *J Toxicol*, 2010, 24(1): 47–50.
- [10] GB 5009.140—2003 饮料中乙酰磺胺酸钾的测定[S].
GB 5009.140—2003 Determination of acesulfame K in beverages [S].
- [11] GB 5009.97—2016 食品中环己基氨基磺酸钠的测定[S].
GB 5009.97—2016 Determination of sodium N-cyclohexylsulfamate in foods [S].
- [12] GB 22255—2014 食品中三氯蔗糖(蔗糖素)的测定[S].
GB 22255—2014 Determination of sucralose in foods [S].
- [13] GB/T 5009.263—2016 食品中阿斯巴甜和阿力甜的测定[S].
GB/T 5009.263—2016 Determination of aspartame and alitame in foods [S].
- [14] GB/T 5009.28—2016 食品安全国家标准 食品中苯甲酸、山梨酸和糖精钠的测定[S].
GB/T 5009.28—2016 National food safety standard-Determination of benzoic acid, sorbic acid and saccharin sodium in food [S].
- [15] GB 5009.121—2016 食品安全国家标准 食品中脱氢乙酸的测定[S].
GB 5009.121—2016 National food safety standard-Determination of dehydroacetic acid in food [S].
- [16] 尹峰, 丁召伟, 曹雪, 等. 固相萃取-高效液相色谱/串联质谱法测定食醋中的 3 种甜味剂[J]. *色谱*, 2011, 29(6): 554–557.
YIN F, DING ZW, CAO X, *et al.* Determination of three sweeteners in vinegars by solid phase extraction-high performance liquid chromatography/tandem mass spectrometry [J]. *Chin J Chromatogr*, 2011, 29(6): 554–557.
- [17] 梁桂娟, 寻思颖, 李清伟, 等. 高效液相色谱-质谱联用法测定酱油中三氯蔗糖的不确定度评估[J]. *中国酿造*, 2016, 35(8): 66–68.
LIANG GJ, XUN SY, LI QW, *et al.* Evaluation of uncertainty for determination of sucralose in soy sauce by HPLC-MS/MS [J]. *China Brew*, 2016, 35(8): 66–68.
- [18] 邹孝, 李根容, 黄武平, 等. 高效液相色谱-串联质谱法测定调味料酒中 4 种人工合成甜味剂[J]. *中国调味品*, 2017, 42(10): 147–149, 159.
ZOU X, LI GR, HUANG WP, *et al.* Determination of four artificial sweeteners in seasoning wine by HPLC-MS/MS [J]. *China Cond*, 2017, 42(10): 147–149, 159.
- [19] 张小芳, 付大友. 高效液相色谱法同时测定食醋和酱油中的 6 种防腐剂 and 甜味剂[J]. *中国调味品*, 2018, 43(9): 147–150.
ZHANG XF, FU DY. Simultaneous determination of six preservatives and sweeteners in vinegar and soy sauce by HPLC [J]. *China Cond*, 2018, 43(9): 147–150.
- [20] 宋佳, 李锦清, 李聪, 等. QuEChERS 萃取-液相色谱法测定酱油和酱制品中三氯蔗糖[J]. *食品与发酵工业*, 2019, (14): 229–232.
SONG J, LI JQ, LI C, *et al.* Determination of sucralose in soy sauce and soy products using QuEChERS extraction and high performance liquid chromatography [J]. *Food Ferment Ind*, 2019, (14): 229–232.
- [21] 伏庆红, 陈国宝, 张凤凤. 高效液相色谱法测定酱油中的甘草酸含量[J]. *食品与发酵科技*, 2020, 56(2): 100–104.
FU QH, CHEN BG, ZHANG FF. Determination of glycyrrhizic acid in soy sauce by High-performance liquid chromatography [J]. *Food Ferment Technol*, 2020, 56(2): 100–104.
- [22] 陈宁周, 王海波, 莫紫梅, 等. 高效液相色谱-串联质谱法同时检测饮料中 16 种添加剂[J]. *食品安全质量检测学报*, 2019, 10(15): 5137–5147.
CHEN NZ, WANG HB, MO ZM, *et al.* Simultaneous detection of 16 kinds of additives in beverages by high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. *J Food Saf Qual*, 2019, 10(15): 5137–5147.

(责任编辑: 于梦娇)

作者简介



汤丽昌, 硕士, 主管药师, 高级技师,
主要研究方向为食品安全与质量检测。
E-mail: 363471255@qq.com



梁国华, 副主任药师, 主要研究方向
为食品化学性风险及安全控制研究。
E-mail: 2301933842@qq.com