

# 可视化微阵列蛋白芯片法同时检测蜂蜜中 3 种农药残留

孟 东<sup>1</sup>, 王 波<sup>1</sup>, 陈 蕾<sup>1</sup>, 李周敏<sup>2\*</sup>, 汤迪朋<sup>3</sup>, 陈美莲<sup>4</sup>

(1. 徐州市质量技术监督综合检验检测中心, 徐州 221008; 2. 南京大学金陵学院, 南京 210089; 3. 南京祥中生物科技有限公司, 南京 210002; 4. 上海市农产品质量安全中心农业部食品质量监督检验测试中心, 上海 201708)

**摘 要:** **目的** 建立可视化微阵列蛋白芯片法同时检测蜂蜜中多菌灵、啉虫脒、蝇毒磷 3 种农药残留含量的分析方法。**方法** 依次向制备好的微孔板芯片里加入 50  $\mu\text{L}$  标准品工作液和 50  $\mu\text{L}$  相应的抗体, 在 25  $^{\circ}\text{C}$ 、600 r/min 下反应 30 min; 再向每孔中加入 50  $\mu\text{L}$  纳米银标记的羊抗鼠 IgG, 37  $^{\circ}\text{C}$ 、600 r/min 下反应 30 min; 最后显色并用芯片专用软件(MiELISA)进行自动化分析。**结果** 该方法对多菌灵、啉虫脒、蝇毒磷的定量检测范围分别为 0.4~6.4、0.3~4.8、0.75~12 ng/mL, 相关系数  $r>0.99$ , 检测限分别为 3.21、2.47、2.52 ng/mL, 准确度为 83.6%~126.4%, 变异系数均 $<10\%$ , 且三者之间具有极低的交叉反应; 向不同种类的空白蜂蜜中添加 2 种不同浓度的标准品时, 检测结果具有较高的准确度和重复性。**结论** 本研究建立的可视化微阵列蛋白芯片检测法操作简便, 检测限低, 准确度、重复性、特异性均很好, 且具有高通量、多指标同时检测等优点, 适用于蜂蜜中多菌灵、啉虫脒、蝇毒磷 3 种农药残留同时检测。

**关键词:** 蜂蜜; 可视化微阵列蛋白芯片法; 多菌灵; 啉虫脒; 蝇毒磷; 农药残留

## Simultaneous determination of 3 kinds of pesticide residues in honey by visual microarray protein chip method

MENG Dong<sup>1</sup>, WANG Bo<sup>1</sup>, CHEN Lei<sup>1</sup>, LI Zhou-Min<sup>2\*</sup>, TANG Di-Peng<sup>3</sup>, CHEN Mei-Lian<sup>4</sup>

(1. Xuzhou Quality and Technical Supervision Comprehensive Inspection and Testing Center, Xuzhou 221008, China; 2. Jinling College, Nanjing University, Nanjing 210089, China; 3. Nanjing Xiangzhong Biological Technology Co., Ltd, Nanjing 210002, China; 4. Shanghai Agri-Products Quality and Safety Center, The Ministry of Agriculture Food Quality Supervision and Inspection Center (Shanghai), Shanghai 201708, China)

**ABSTRACT: Objective** To establish a method for the simultaneous determination of 3 kinds of pesticide residues in honey by visual microarray protein chip method. **Methods** The 50  $\mu\text{L}$  of standard working solution and 50  $\mu\text{L}$  of the corresponding antibody were added to the prepared microplate chip in sequence, and the reaction time was 30 min at 25  $^{\circ}\text{C}$  and 600 r/min. Then 50  $\mu\text{L}$  of nano-silver-labeled goat antibody was added to each well Goat anti-mouse IgG, the reaction time was 30 min at 37  $^{\circ}\text{C}$  and 600 r/min, the final color was developed and the chip-specific

**基金项目:** 江苏省高校“青蓝工程”项目(0010392001)、南京大学金陵学院教学改革项目(0010522020)、上海市科技兴农项目(2019-02-08-00-15-F01147)

**Fund:** Supported by Jiangsu University “Qinglan” Project(0010392001), the Educational Reform Project of Jinling College Nanjing University (0010522020), and Shanghai Science and Technology Agriculture Project (2019-02-08-00-15-F01147)

\*通信作者: 李周敏, 博士, 讲师, 主要研究方向为生物芯片在食品安全检测中的应用。E-mail: lizhoumin@126.com

\*Corresponding author: LI Zhou-Min, Ph.D, Lecturer, Jinling College, Nanjing University, No.8, Xuefu Road, Pukou District, Nanjing 210089, China. E-mail: lizhoumin@126.com

software (MiELISA) was used for automated analysis. **Results** The quantitative detection ranges of carbendazim, acetamiprid and coumaphos by this method were 0.4–6.4, 0.3–4.8, 0.75–12 ng/mL, respectively, and the correlation coefficient ( $r$ ) was greater than 0.99. The detection limits were 3.21, 2.47, 2.52 ng/mL, respectively, the accuracy was 83.6%~126.4%, the coefficient of variation was less than 10%, and there was a very low cross reaction among them. When 2 different concentrations of standard substances were added to different types of blank honey, the detection results had high accuracy and repeatability. **Conclusion** The visual microarray protein chip detection method established in this study is easy to operate, has low detection limit, good accuracy, repeatability, and specificity, and has the advantages of high throughput and simultaneous detection of multiple indicators. It is suitable for simultaneous detection of 3 kinds of pesticide residues of carbendazim, acetamiprid and coumaphos in honey.

**KEY WORDS:** honey; visual microarray protein chip; carbendazim; acetamiprid; coumaphos; pesticide residues

## 0 引言

蜂蜜是一种营养丰富的纯天然滋养食品。我国是养蜂大国,蜂蜜年产量已超过 50 万吨,占世界蜂蜜总产量的 1/4 以上。但由于蜜蜂在采蜜过程中可能涉及被农药污染的花粉或环境介质,如土壤、水源、大气中含有的残留农药污染,这可能导致蜂蜜中的农药残留量超标。此外,蜂农不恰当使用农药也会导致蜂蜜中农药残留量超标。蜂蜜中的农药残留种类主要涉及除虫剂、除草剂和杀菌剂等<sup>[1-2]</sup>。各国对蜂蜜中有害物质残留的监控日趋严格,其中农药残留水平是重要的指标。欧盟、美国及日本等国家和地区均制定了蜂蜜农残最大残留限量(maximum residue limit, MRL),且不断对蜂蜜农药残留标准、规则进行调整,使得我国蜂蜜产品出口难度加大。目前,欧盟规定蜂蜜中多菌灵的限量为 1.0 mg/kg、啉虫脒为 0.2 mg/kg、蝇毒磷为 0.05 mg/kg,日本对于进口蜂蜜中多菌灵的限量为 0.007 mg/kg,我国规定蜂蜜中蝇毒磷残留量不超过 0.1 mg/kg,而暂未规定蜂蜜中多菌灵和啉虫脒农药的残留限量,果蔬中的残留限量一般要求不超过 0.5 mg/kg<sup>[3]</sup>。

目前农药残留的检测方法有色谱法、免疫分析法等<sup>[4]</sup>。色谱法最常用的有高效液相色谱法(high performance liquid chromatography, HPLC)<sup>[5-7]</sup>、气相色谱-质谱联用法(gas chromatography-mass spectrometry, GC-MS)<sup>[8-10]</sup>、液相色谱-质谱联用法(liquid chromatography mass spectrometry, LC-MS)<sup>[11-16]</sup>等。免疫分析法中常见的有胶体金层析法(colloidal gold immunochromatography, CGIC)<sup>[17-20]</sup>、酶联免疫吸附法(enzyme-linked immunosorbent assay, ELISA)<sup>[21-22]</sup>、免疫芯片法(immunochip)<sup>[23]</sup>等。色谱法作为一种经典的方法,具有灵敏度高、准确等特点,但其样品前处理步骤繁冗复杂,需要昂贵的仪器支持还需要专业的技术人员进行操作,检测时间长,不能满足现场检测的要求,也不利于大批量样本的检测。免疫分析法作为一种快速检测方法,具有操作简单、特异性好,灵敏度高、价格低廉等优点而备受瞩目。

蛋白芯片法相比于传统的酶联免疫分析法具有多靶标、快速、高灵敏度等优点,但是大多采用的是荧光法和化学发光法,这些方法存在检测仪器价格昂贵等问题,不适合在基层检测机构和小型食品生产企业推广应用。近年来发展的可视化蛋白芯片的检测方法<sup>[24-25]</sup>,可同时检测多种药物及有害物残留,也可同时检测多种营养蛋白质的含量。与传统蛋白芯片法相比,具有可视化、直接用肉眼观察芯片结果、无需使用昂贵的荧光或化学发光检测设备等优点,大大降低检测成本,提高检测效率,在农药残留的现场快速检测中有很好的发展前景。本研究采用可视化蛋白芯片法对蜂蜜中多菌灵、啉虫脒、蝇毒磷 3 种农药进行含量测定,以期满足蜂蜜样本中多种农药残留检测的需求。

## 1 材料与方法

### 1.1 仪器与材料

DT 1001 电子天平(江苏省常熟市意欧仪器仪表有限公司); DMT-2500 多管漩涡混合仪(上海柯准仪器有限公司); VORTEX-5 涡旋振荡器(海门市其林贝尔仪器制造公司产品); HX-4 拍打式均质器(上海沪析实业有限公司); MD200-2 氮吹仪、MB100-2A 微孔板恒温振荡仪、APW-200 洗板机、QARRAY-2000 芯片分析仪、微孔板芯片(南京祥中生物科技有限公司); 聚苯乙烯离心管(50 mL、2 mL,美国 Axygen 有限公司)。

牛乳清白蛋白(bovine serum albumen, BSA)(纯度 99%,美国 Sigma 公司); 乙酸乙酯、氯化钠、氯化钾、无水磷酸氢二钠、无水磷酸二氢钾、吐温 20(分析纯,南京化学试剂股份有限公司); 多菌灵、啉虫脒、蝇毒磷、毒死蜱、甲萘威、百菌灵、克百威、百草枯、多效唑、百菌清、草甘膦(纯度均大于 99%,美国 Sigma 公司); 多菌灵、啉虫脒、蝇毒磷抗原及抗体,纳米银标记的羊抗鼠 IgG、显色液 A 和 B(南京祥中生物科技有限公司)。

蜂蜜样本购于徐州、南京当地各大超市。

磷酸盐缓冲液(1×PBS, pH=7.4): 称取 8.0 g 氯化钠,

0.20 g 氯化钾, 1.43 g 无水磷酸氢二钠, 0.24 g 无水磷酸二氢钾, 定容至 1 L 容量瓶;

洗涤工作液 (1×PBS+0.05% Tween 20): 1 L 1×PBS+500 μL Tween20。

1.2 实验方法

1.2.1 检测原理

实验采用间接竞争免疫法, 将多菌灵、啉虫脒、蝇毒磷人工抗原点样后固定于微孔板内, 加入一定量的标准品或样品和相应的抗体, 固定在孔板底部的人工抗原和溶液中游离的标准品会与其抗体发生竞争反应。随后加入纳米银标记的羊抗鼠 IgG 与人工抗原上结合的抗体反应, 最后加入显色液催化还原形成肉眼可见的黑色沉淀, 测定板底灰度信号值。根据标准曲线计算样品中多菌灵、啉虫脒、蝇毒磷的含量。

1.2.2 检测方法

依次向制备好的微孔板芯片里加入 50 μL 标准品工作液和 50 μL 相应的抗体, 用盖板膜封板, 在 25 °C、600 r/min 下反应 30 min 后洗板; 再在每孔中加入 50 μL 纳米银标记的羊抗鼠 IgG, 37 °C、600 r/min 下反应 30 min 后洗板; 将显色 A 液和 B 液按 1:1 (V:V) 比例均匀混合 (现配现用)。再向每孔加入混合后的显色液 50 μL, 37 °C、600 r/min 避光显色 12 min, 洗板, 最后拍干。将显色后的微孔板芯片放入芯片分析仪中, 并用芯片专用软件 (MiELISA) 进行自动化分析, 结果自动生成报告。

1.2.3 样品前处理

称取 1 g 样本, 加入 1 mL 1×PBS 和 6 mL 乙酸乙酯, 2500 r/min 振荡 3 min, 5000 r/min 离心 5 min, 取上清液 3 mL 于 10 mL 离心管中, 55 °C 氮吹, 吹干后加入 500 μL 1×PBS 溶解残留物, 取溶液 50 μL 于 450 μL 1×PBS 中混匀, 用于检测。样本稀释倍数为 20 倍, 可以降低蜂蜜样本的基质干扰。

2 结果与分析

2.1 多菌灵、啉虫脒、蝇毒磷人工抗原和抗体浓度的优化

在免疫分析中, 抗原抗体的浓度会影响方法的灵敏度。抗原抗体的浓度高, 信号值也高, 但方法的灵敏度会降低。因此, 需要选择合适的抗原抗体浓度。选择多菌灵、啉虫脒、蝇毒磷人工抗原的浓度分别为 1:5、1:10、1:20、1:40、1:80; 抗体浓度为: 1:10,000、1:20,000、1:40,000、1:80,000、1:160,000、1:320,000。

结果表明, 当多菌灵人工抗原浓度为 1:10, 抗体浓度为 1:20,000; 啉虫脒人工抗原浓度为 1:40, 抗体浓度为 1:160,000; 蝇毒磷人工抗原浓度为 1:20, 抗体浓度为 1:160,000 时, 三者的信号值分别为 41375、42867、44566,

信号值适中, 灵敏度最高。此时多菌灵、啉虫脒、蝇毒磷的灵敏度分别为: 0.4、0.3、0.75 ng/mL。

2.2 交叉反应率(特异性)

在免疫分析法中利用的是抗原和抗体的特异性结合, 因此方法建立时应考察抗体的特异性。测定多菌灵、啉虫脒、蝇毒磷抗体与其他农药 (多菌灵、啉虫脒、蝇毒磷、毒死蜱、甲萘威、百菌灵、克百威、百草枯、多效唑、百菌清、草甘膦) 之间的交叉反应率。用不同浓度的农药和多菌灵、啉虫脒、蝇毒磷的抗原抗体建立竞争抑制曲线, 分别求出各自的  $IC_{50}$ , 并按照公式 (1) 计算交叉反应率 (cross-reactivity, CR), 结果见表 1。

$$CR=IC_{50}(\text{被测农药})/IC_{50}(\text{干扰农药})\times 100\% \quad (1)$$

表 1 多菌灵、啉虫脒、蝇毒磷抗原抗体的交叉反应率  
Table 1 Cross-reaction rates of carbendazim, acetamiprid, and coumaphos

| 化合物 | 交叉反应率/% |       |     |
|-----|---------|-------|-----|
|     | 多菌灵抗体   | 啉虫脒抗体 | 蝇毒磷 |
| 多菌灵 | 100     | <1    | <1  |
| 啉虫脒 | <1      | 100   | <1  |
| 蝇毒磷 | <1      | <1    | 100 |
| 毒死蜱 | <1      | <1    | <1  |
| 甲萘威 | <1      | <1    | <1  |
| 百菌灵 | <1      | <1    | <1  |
| 克百威 | <1      | <1    | <1  |
| 百草枯 | <1      | <1    | <1  |
| 多效唑 | <1      | <1    | <1  |
| 百菌清 | <1      | <1    | <1  |
| 草甘膦 | <1      | <1    | <1  |

由表 1 可知, 多菌灵、啉虫脒、蝇毒磷抗体特异性良好, 且与其他常见农药之间的交叉反应率均小于 1%。可将 3 种抗原以微阵列形式固定于同一孔底, 分别同时进行检测。

2.3 标准曲线的建立

根据抗原抗体优化的条件, 将多菌灵抗原、啉虫脒抗原、蝇毒磷抗原分别以 1:10、1:40、1:20 稀释后点样固定于微孔板底部, 抗体分别以 1:20,000、1:160,000、1:160,000 稀释, 多菌灵的 6 个标准品浓度分别为 0、0.4、0.8、1.6、3.2、6.4 ng/mL, 啉虫脒的 6 个标准品浓度分别为 0、0.3、0.6、1.2、2.4、4.8 ng/mL, 蝇毒磷的 6 个标准品浓度分别为 0、0.75、1.5、3.0、6.0、12.0 ng/mL。用芯片分析软件提取灰度信号值, 并用浓度对数  $X[\lg C, (\text{ng/mL})]$  和抑制率

$Y(B/B_0, \%)$  作标准曲线图, 多菌灵的线性方程为  $Y=-57.945X+48.47$ ,  $r^2=0.9941$ ; 啉虫脒的线性方程  $Y=-54.76X+42.25$ ,  $r^2=0.9923$ ; 蝇毒磷的线性方程  $Y=-56.258X+72.972$ ,  $r^2=0.9915$ 。其中, 相关系数  $r$  全部大于 0.99, 说明线性关系良好, 结果如图 1 所示。

2.4 蜂蜜样本加标回收率的测定

根据以上建立的标准曲线, 检测不同种类蜂蜜的加标回收率。蜂蜜样本采购于南京、徐州当地超市, 并用高效液相色谱-质谱联用法 (high performance liquid chromatography-mass spectrometry, HPLC-MS) 验证不含农药残留。取 4 种不同的蜂蜜样本, 每种样本称 3 管, 其中 1 管作为阴性对照, 其余 2 管中多菌灵加标浓度为 20、50

ng/mL, 啉虫脒的加标浓度为 20、50 ng/mL, 蝇毒磷的加标浓度为 50、100 ng/mL。蜂蜜样本芯片扫描结果如图 2 所示, 检测结果见表 2。由表 2 可知蜂蜜样本中多菌灵的加标回收率为 87.0% ~ 114.7%, 啉虫脒的加标回收率为 87.2% ~ 126.4%, 蝇毒磷的加标回收率为 83.6% ~ 121.1%, 且检测相对标准偏差都小于 10%( $n=3$ ), 符合检测要求。

2.5 样本检测限的测定

对 20 个阴性蜂蜜样本进行检测, 根据 20 个阴性样品的检测平均值加上 3 倍 SD, 计算样品的检测限, 实验结果如表 3 所示。由表 3 可知, 多菌灵的检测限为 3.21 ng/mL, 啉虫脒为 2.47 ng/mL, 蝇毒磷为 2.52 ng/mL, 满足检测的要求。

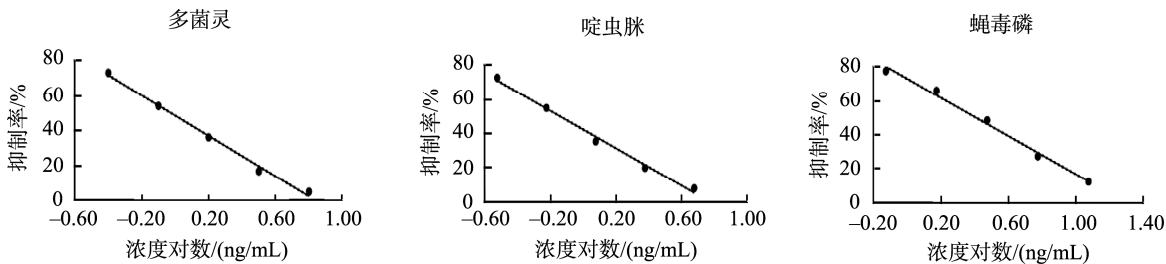
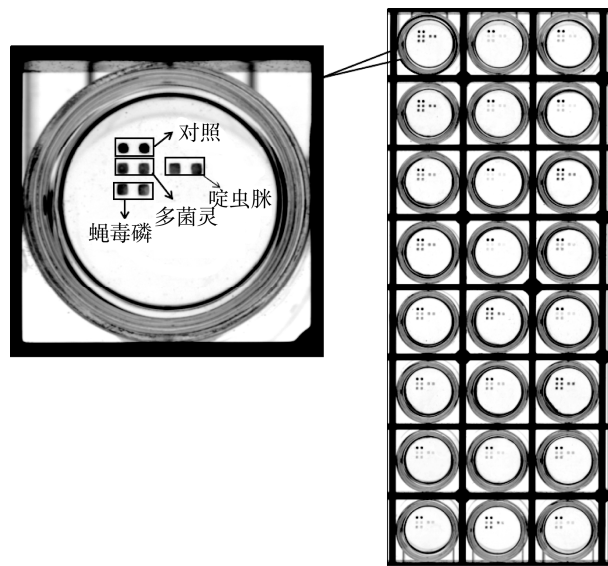


图 1 多菌灵、啉虫脒和蝇毒磷的标准曲线  
Fig.1 Standard curve of carbendazim, acetamiprid and coumaphos



注: 加样顺序从上往下, 从左往右, 前 12 个孔为标准品, 每个重复 2 个孔, 后 12 孔为蜂蜜中不同浓度的加标样品, 每个浓度为单孔; 每个孔内均设有质控, 为纳米银标记的羊抗鼠 IgG。

图 2 标准品和蜂蜜样本加标检测结果扫描图  
Fig.2 Scanning chart of standard and spiked test of honey sample test

2.6 实际样本的检测

应用本方法对市售的 90 个蜂蜜样本进行检测, 检出 3 个多菌灵阳性, 其值分别为 10.32、6.86、8.48 ng/mL; 检出 2 个啉虫脒阳性, 其值分别为 5.36 ng/mL、9.44 ng/mL; 蝇毒磷均为阴性。同时将 5 个阳性样品与 LC-MS 检测方法对比, LC-MS 检测结果多菌灵分别为 9.29、5.22、7.31 ng/mL; 啉虫脒分别为 4.31ng/mL、8.41ng/mL。两者检出结果一致。

3 结论与讨论

本研究建立了蜂蜜中多种农药残留同时定量检测的可视化微阵列蛋白芯片法。通过优化最佳的抗原抗体浓度, 计算三者相互之间的交叉反应率, 建立标准曲线, 分别对蜂蜜中多菌灵、啉虫脒、蝇毒磷的加标回收率和重复性进行考察, 加标回收率均在 83.6%~126.4%内, 相对标准偏差均小于 10%。方法的检测限分别为多菌灵 3.21 ng/mL、啉虫脒 2.47 ng/mL、蝇毒磷 2.52 ng/mL。用建立的方法应用于市面上未知蜂蜜样品的检测, 结果与 LC-MS 的方法一致。可视化蛋白芯片法具有检测时间短、操作简单、可进行大量样本同时检测, 且一次可检测多个指标等优点, 对于降低多种农药残留检测成本以及促进分析检测行业的发展都有重要的意义。

表 2 蜂蜜样本加标回收率和相对标准偏差(n=3)  
Table 2 Spiked recoveries and relative standard deviations of honey samples (n=3)

| 化合物 | 蜂蜜样本种类 | 添加浓度/(ng/mL) | 检测浓度/(ng/mL) | 回收率/% | 相对标准偏差/% |
|-----|--------|--------------|--------------|-------|----------|
| 多菌灵 | 油菜蜜    | 0            | 0.12         |       | 6.3      |
|     |        | 20           | 22.62        | 112.5 | 5.6      |
|     |        | 50           | 43.61        | 87.0  | 5.2      |
|     | 洋槐蜜    | 0            | 1.94         |       | 4.5      |
|     |        | 20           | 23.85        | 109.6 | 7.4      |
|     |        | 50           | 47.27        | 90.7  | 5.6      |
|     | 荆条蜜    | 0            | 0.10         |       | 6.4      |
|     |        | 20           | 21.57        | 107.4 | 3.6      |
|     |        | 50           | 50.57        | 100.9 | 5.9      |
|     | 椴树蜜    | 0            | 0.00         |       | 4.2      |
|     |        | 20           | 22.93        | 114.7 | 7.3      |
|     |        | 50           | 57.14        | 114.3 | 5.9      |
|     | 油菜蜜    | 0            | 2.69         |       | 8.3      |
|     |        | 20           | 22.42        | 98.7  | 6.1      |
|     |        | 50           | 61.72        | 118.1 | 4.2      |
| 啉虫脒 | 洋槐蜜    | 0            | 0.25         |       | 5.1      |
|     |        | 20           | 25.52        | 126.4 | 5.1      |
|     |        | 50           | 62.00        | 123.5 | 5.6      |
|     | 荆条蜜    | 0            | 1.24         |       | 4.3      |
|     |        | 20           | 25.86        | 123.1 | 2.6      |
|     |        | 50           | 61.38        | 120.3 | 1.9      |
|     | 椴树蜜    | 0            | 0.06         |       | 4.8      |
|     |        | 20           | 20.31        | 101.3 | 8.3      |
|     |        | 50           | 43.66        | 87.2  | 3.8      |
|     | 油菜蜜    | 0            | 0.37         |       | 3.9      |
|     |        | 50           | 45.01        | 89.3  | 7.6      |
|     |        | 100          | 88.94        | 88.6  | 2.2      |
|     | 洋槐蜜    | 0            | 0.19         |       | 3.5      |
|     |        | 50           | 60.73        | 121.1 | 3.4      |
|     |        | 100          | 98.21        | 98.0  | 5.6      |
| 蝇毒磷 | 荆条蜜    | 0            | 0.12         |       | 6.4      |
|     |        | 50           | 46.07        | 91.9  | 3.6      |
|     |        | 100          | 89.10        | 89.0  | 5.9      |
|     | 椴树蜜    | 0            | 0.10         |       | 4.2      |
|     |        | 50           | 45.38        | 90.6  | 7.1      |
|     |        | 100          | 83.66        | 83.6  | 4.9      |
|     |        |              |              |       |          |

表 3  蜂蜜样本中检测限的测定  
Table 3  Detection limits of honey samples

| 样品编号 | 检测浓度        |             |             |
|------|-------------|-------------|-------------|
|      | 多菌灵/(ng/mL) | 啉虫脒/(ng/mL) | 蝇毒磷/(ng/mL) |
| 1    | 1.62        | 0.07        | 0.06        |
| 2    | 0.05        | 1.75        | 0.30        |
| 3    | 2.09        | 2.01        | 1.91        |
| 4    | 2.13        | 0.49        | 1.12        |
| 5    | 2.18        | 0.61        | 0.44        |
| 6    | 1.38        | 0.85        | 1.17        |
| 7    | 1.22        | 1.26        | 1.14        |
| 8    | 0.06        | 0.12        | 0.79        |
| 9    | 1.93        | 1.29        | 1.11        |
| 10   | 0.47        | 1.64        | 1.96        |
| 11   | 0.26        | 0.19        | 0.37        |
| 12   | 0.04        | 0.11        | 0.80        |
| 13   | 0.06        | 0.05        | 0.31        |
| 14   | 0.56        | 0.24        | 0.60        |
| 15   | 0.30        | 0.89        | 1.11        |
| 16   | 0.01        | 0.15        | 1.61        |
| 17   | 0.07        | 0.26        | 1.17        |
| 18   | 0.07        | 0.20        | 1.51        |
| 19   | 1.07        | 0.24        | 0.58        |
| 20   | 0.06        | 0.22        | 1.10        |
| 平均值  | 0.78        | 0.63        | 0.96        |
| 标准差  | 0.81        | 0.61        | 0.52        |
| 检测限  | 3.21        | 2.47        | 2.52        |

参考文献

[1] 郭卫芸, 李光辉, 杨旗, 等. 蜂蜜中农药残留研究进展[J]. 食品研究与开发, 2017, 38(27): 201–205.

GUO WY, LI GH, YANG Q, *et al.* Progress in the pesticides residue of honey [J]. Food Res Dev, 2017, 38(27): 201–205.

[2] 黄永舜. 蜂蜜中农药残留的研究进展[J]. 现代食品, 2018, 13: 66–68.

HUANG YS. Research progress of pesticide residues in honey [J]. Mod Food, 2018, 13: 66–68.

[3] 高兴, 于基成, 郭乃非, 等. 食品中多菌灵残留检测方法研究进展[J]. 食品与机械, 2016, 26(6): 153–155.

GAO X, YU JC, GUO NF, *et al.* Review on the detection method of carbendazim residue in food research [J]. Food Mach, 2016, 26(6): 153–155.

- [4] 高思远, 李丽娅, 孟利. 农药残留免疫分析技术研究进展[J]. 食品工业科技, 2019, 40(22): 346–253.
- GAO SY, LI LY, MENG L. Advances in immunoassay detection technology for pesticide residues [J]. *Sci Technol Food Ind*, 2019, 40(22): 346–253.
- [5] 邵金良, 汪禄祥, 梅文泉, 等. SPE-HPLC 紫外双波长测定水果中 10 种农药残留[J]. 现代食品科技, 2013, 29(10): 2547–2553.
- SHAO JL, WANG LX, MEI WQ, *et al.* Determination of 10 pesticide residues in fruits by HPLC with SPE and UV double wavelength [J]. *Mod Food Sci Technol*, 2013, 29(10): 2547–2553.
- [6] 冯敏铃, 李盛安, 王丽娜, 等. 液相色谱法同时测定茶叶中啉虫脒和多菌灵农药残留研究[J]. 现代农业科技, 2016, 19: 112–114.
- FENG ML, LI SA, WANG LN, *et al.* Determination of acetamiprid and carbendazim pesticide residues by HPLC [J]. *Mod Agric Technol*, 2016, 19: 112–114.
- [7] 陈楠, 马世柱, 姚德祥, 等. 基于 QuEChERS 前处理的液相色谱-紫外检测串联柱后衍生荧光法测定蔬菜水果中 13 种农药残留[J]. 现代农业科技, 2018, 13: 116–117.
- CHEN N, MA SZ, YAO DX, *et al.* Determination of 13 pesticides in fruits and vegetables with QuEChERS by HPLC-VWD-Post column derivatization-FLD [J]. *Mod Agric Technol*, 2018, 13: 116–117.
- [8] GARCÍA MDG, DUQUE SU, FERNÁNDEZ ABL, *et al.* Multiresidue method for trace pesticide analysis in honeybee wax comb by GC-QqQ-MS [J]. *Talanta*, 2017, 163: 54–64.
- [9] ARANTZA B, MARÍA E B, JESSICA M, *et al.* Matrix solid-phase dispersion associated to gas chromatography for the assessment in honey bee of a group of pesticides of concern in the apicultural field [J]. *J Chromatogr A*, 2018, 1567: 47–54.
- [10] MARÍA DGG, MARIA MG, SAMANTA U, *et al.* Ultrasound-assisted extraction based on QuEChERS of pesticide residues in honeybees and determination by LC-MS/MS and GC-MS/MS [J]. *Anal Bioanal Chem*, 2018, 410: 5195–5210.
- [11] 曹雪琴, 杨飞, 陈国通, 等. 超高效液相色谱-串联质谱法同时测定水果中 10 种保鲜剂残留量[J]. 食品科学, 2020, 41(4): 319–324.
- CAO XQ, YANG F, CHEN GT, *et al.* Determination of 10 preservative residues in fruits by ultra-high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. *Food Sci*, 2020, 41(4): 319–324.
- [12] 吴延灿, 戚传勇, 操海群, 等. QuEChERS-超高效液相色谱-串联质谱法测定香菇中 56 种农药残留[J]. 农药学报, 2018, 20(1): 58–66.
- WU YC, QI CY, CAO HQ, *et al.* Determination of 56 pesticides in *Lentinus edodes* using QuEChERS-ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. *Chin J Pestic Sci*, 2018, 20(1): 58–66.
- [13] INGARS R, IVETA P, VADIMS B. A reliable screening of mycotoxins and pesticide residues in paprika using ultra-high performance liquid chromatography coupled to high resolution Orbitrap mass spectrometry [J]. *Food Control*, 2016, 60: 683–689.
- [14] FEI QW, SHAO HL, HUA F, *et al.* An enhanced sensitivity and cleanup strategy for the nontargeted screening and targeted determination of pesticides in tea using modified dispersive solid-phase extraction and cold-induced acetonitrile aqueous two-phase systems coupled with liquid chromatography-high resolution mass spectrometry [J]. *Food Chem*, 2019, 275: 530–538.
- [15] JIA NC, YU JL, YI RZ, *et al.* Determination of 107 pesticide residues in wolfberry with acetate-buffered salt extraction and Sin-QuEChERS nano column purification coupled with ultra performance liquid chromatography tandem mass spectrometry [J]. *Molecules*, 2019, 24: 2918–2941.
- [16] HUANG YS, SHI T, LUO X, *et al.* Determination of multi-pesticide residues in green tea with a modified QuEChERS protocol coupled to HPLC-MS/MS [J]. *Food Chem*, 2019, 275: 255–264.
- [17] 赵颖, 杨斌, 柳颖, 等. 啉虫脒金标免疫速测试纸条研制及其在茶叶中的应用[J]. 农药学报, 2016, 18(3): 337–343.
- ZHAO Y, YANG B, LIU Y, *et al.* Development and application of gold immunostrip for the detection of acetamiprid residue in tea samples [J]. *Chin J Pestic Sci*, 2016, 18(3): 337–343.
- [18] 王茜, 李高华, 张阳, 等. 胶体金侧向流免疫层析技术检测有机磷农药残留[J]. 食品安全质量检测学报, 2015, 6(11): 4409–4415.
- WANG H, LI GH, ZHANG Y, *et al.* Detection of organophosphorus pesticides residual using lateral flow immune colloidal gold chromatography technology [J]. *J Food Saf Qual*, 2015, 6(11): 4409–4415.
- [19] QI S, WANG LM, HUI OY, *et al.* Multiplexed immunochromatographic test strip for time-resolved chemiluminescent detection of pesticide residues using a bifunctional antibody [J]. *Biosens Bioelectron*, 2017, 87: 908–914.
- [20] LIU Y, WU AH, HU J, *et al.* Detection of 3-phenoxybenzoic acid in river water with a colloidal gold-based lateral flow immunoassay [J]. *Anal Biochem*, 2015, 483: 7–11.
- [21] 柳双, 谢春花, 王敏思, 等. 果蔬和谷物制品中多菌灵的免疫检测[J]. 天津师范大学学报(自然科学版), 2019, 39(6): 35–40, 61.
- LIU S, XIE CH, WANG MS, *et al.* Immunoassay of carbendazim in fruits, vegetables and cereal products [J]. *J Tianjin Norm Univ (Nat Sci Ed)*, 2019, 39(6): 35–40, 61.
- [22] 于祥东, 李岩松, 司朝朝, 等. 吡虫啉农药间接竞争 ELISA 检测方法的建立[J]. 扬州大学学报(农业与生命科学版), 2019, 40(2): 107–112, 118.
- YU XD, LI YS, SI ZZ, *et al.* Development of an indirect competitive ELISA for the detection of imidacloprid [J]. *J Yangzhou Univ (Agric Life*

Sci Ed), 2019, 40(2): 107–112, 118.

(责任编辑: 于梦娇)

- [23] 周丹, 闵亚杰, 戚欣, 等. 基于阵列芯片现场高灵敏同步快速检测粮油中氨基甲酸酯类农药残留混合污染[J]. 中国油料作物学报, 2020, 42(3): 341–349.

ZHOU D, MIN YJ, QI X, *et al.* On-site rapid sensitive and simultaneous detection for multiple carbamate pesticide residues in grains and oils based on microarray [J]. Chin J Oil Crop Sci, 2020, 42(3): 341–349.

- [24] LI ZM, LI ZH, ZHAO DY, *et al.* Smartphone-based visualized microarray detection for multiplexed harmful substances in milk [J]. Biosens Bioelectron, 2017, 87(15): 874–880.

- [25] LI ZM, WEN F, LI ZH, *et al.* Simultaneous detection of  $\alpha$ -lactalbumin,  $\beta$ -lactoglobulin and lactoferrin in milk by visualized microarray [J]. BMC Biotechnol, 2017, 17(1): 72–80.

## 作者简介



孟 东, 硕士, 高级工程师, 主要研究方向为食品检测。

E-mail: 949400966@qq.com



李周敏, 博士, 讲师, 主要研究方向为生物芯片检测技术在食品安全检测中的应用。

E-mail: lizhoumin@126.com

## “天然产物综合利用与检测”专题征稿函

天然产物是指由动物、植物或昆虫、海洋生物和微生物体内分离出来的生物二次代谢产物及生物体内源性生理活性化合物。近年来随着养生理念逐渐深入人心,天然产物对健康促进作用的相关研究也获得了越来越多的关注。此外,茶多酚、香辛料、壳聚糖、细菌素等天然产物在食品的护色保鲜领域也起着重要的作用。我国是天然资源大国,也是应用天然产物历史最悠久的国家之一。如何充分发挥我国的资源优势,从而更好地利用我国丰富的自然资源,是亟待解决问题。

鉴于此,本刊特别策划了“天然产物综合利用与检测”专题。专题将围绕天然产物的作用机理、分离鉴定、分析提纯、活性评价以及天然产物综合利用与检测等,或您认为本领域有意义的问题综述及研究论文均可,专题计划在 2021 年 4 月出版。

本刊主编国家食品安全风险评估中心吴永宁研究员与本专题主编吕兆林教授特邀请有关食品领域研究人员为本专题撰写稿件,综述、研究论文和研究简报均可。请在 2021 年 4 月 1 日前通过网站或 E-mail 投稿。我们将快速处理并经审稿合格后优先发表。

同时烦请您帮忙在同事之间转发一下,希望您能够推荐该领域的相关专家并提供电话和 E-mail。再次感谢您的关怀与支持!

投稿方式(注明专题**天然产物综合利用与检测**):

网站: [www.chinafoodj.com](http://www.chinafoodj.com)(备注: 投稿请登录食品安全质量检测学报主页-作者

登录-注册投稿-投稿栏目选择“2021 专题: **天然产物综合利用与检测**”)

邮箱投稿: E-mail: [jfoods@126.com](mailto:jfoods@126.com)(备注: **天然产物综合利用与检测**专题投稿)

《食品安全质量检测学报》编辑部