

吡虫啉和啶虫脒胶体金免疫层析法 试纸条性能评估及应用效果探究

王彧婕, 冯德建, 冯 双, 侯晓妮, 刘明东, 吴 微, 周李华, 李怀平^{*}

(中国测试技术研究院生物研究所, 成都 610021)

摘要: 目的 研究吡虫啉和啶虫脒胶体金免疫层析法试纸条在不同基质中残留量检测的应用效果。**方法** 实验考察了市场上主要流通的 5 种不同品牌的胶体金免疫层析法试纸条在蔬菜、水果和茶鲜叶基质中的检出限、灵敏度、交叉反应率、特异性、假阳性和假阴性率。**结果** 各品牌胶体金试纸条在 3 种不同类型基质(白菜、苹果和茶鲜叶)中, 检出限浓度水平有假阴性出现, 其余浓度水平灵敏度较好; 特异性和交叉反应性, 结果均为阴性; 假阳性率和假阴性率考察中, 假阳性率为 0%, 但有假阴性情况出现。**结论** 胶体金免疫层析法在检测吡虫啉、啶虫脒农药残留时具有简便快捷的特点, 在蔬菜、水果基质的检测中, 判定结果较为准确可靠; 在茶叶基质中, 由于基质效应的影响, 出现假阴性的机率较高。

关键词: 吡虫啉; 啶虫脒; 胶体金免疫层析法; 快速检测

Performance evaluation and application effect study of colloidal gold immunochromatographic test strips for imidacloprid and acetamiprid

WANG Yu-Jie, FENG De-Jian, FENG Shuang, HOU Xiao-Ni,
LIU Ming-Dong, WU Wei, ZHOU Li-Hua, LI Huai-Ping^{*}

(Biology Division of National Institute of Measurement and Testing Technology, Chengdu 610021, China)

ABSTRACT: Objective To study the application effect of imidacloprid and acetamiprid colloidal gold immunochromatographic test strips for residual detection in different matrices. **Methods** The experiment examined the detection limit, sensitivity, cross reaction rate, specificity, false positive and false negative rates of 5 kinds of different brands of colloidal gold immunochromatographic test strips circulating in the market in vegetable, fruit, and tea fresh leaf matrices. **Results** In 3 different types of substrates (apples, cabbage, and fresh tea leaves), false negative results were observed at the limit of detection of concentration level for each brand of colloidal gold test strips, while the sensitivity of the other concentration levels was good; both specificity and cross reactivity were negative. In the investigation of false positive rate and false negative rate, the false positive rate was 0%, but there were cases of false negative. **Conclusion** The colloidal gold immunochromatography method has the characteristics of simplicity and speed in detecting imidacloprid and acetamiprid pesticide residues. In the detection of vegetable and

基金项目: 四川省青年科学基金项目(2022NSFSC1742)

Fund: Supported by the Sichuan Youth Science and Technology Fund (2022NSFSC1742)

*通信作者: 李怀平, 博士, 研究员, 主要研究方向为测试技术与标准研究。E-mail: lihuaiping@nimtt.com

*Corresponding author: LI Huai-Ping, Ph.D, Professor, National Institute of Measurement and Testing Technology, No.10, Yushuang Road, Chenghua District, Chengdu 610021, China. E-mail: lihuaiping@nimtt.com

fruit, the judgment results are relatively accurate and reliable, in fresh tea leaves, due to the influence of matrix effect, the probability of false negatives is higher.

KEY WORDS: imidacloprid; acetamiprid; colloidal gold immunochromatography; quick detection

0 引言

蔬菜、水果、茶叶等农产品的农药残留,是近年来社会大众普遍关心的食品安全问题之一^[1~3]。受病虫害和种植环境的影响,农药的施用可以保证农产品的产量,但如若不能正确使用甚至违规使用,又会造成农产品中的农药残留超标,严重危害人体健康和生命安全。吡虫啉(imidacloprid)是烟碱类杀虫剂,化学式C₉H₁₀ClN₅O₂,作用机制是阻断神经受体而导致害虫麻痹死亡,在人体内有蓄积作用^[4]。吡虫啉在多个国家都有登记使用,范围涉及粮食、蔬菜、果树、茶叶等^[5~7],大量使用会对环境造成严重污染。啶虫脒(acetamiprid)是第三代氯化烟碱型杀虫剂,化学式C₁₀H₁₁ClN₄,相比吡虫啉它的渗透作用更强、作用机制更加多样化、应用更为广泛^[8]。吡虫啉和啶虫脒的常规检测方法主要有高效液相色谱法^[9~12]、气相色谱法^[13~15]、液相色谱-质谱法等^[16~21]。这些检测方法灵敏度高、适用范围广、结果准确可靠,但样品前处理繁琐,对仪器设备和环境条件及检测人员的要求都很高,且检测周期较长,不能适应蔬菜、水果、茶叶等大量农产品的现场快速检测。

农药残留快速检测方法主要有荧光探针法、表面增强拉曼光谱法、生物传感器法、酶联免疫吸附法和胶体金免疫层析法等。荧光探针法^[22~25]在氨基甲酸酯和有机磷农药检测中有广泛应用,具有特异性强、选择性强的优点;表面增强拉曼光谱法^[26~27]无需样品前处理,灵敏度高且操作方便,但需针对不同的农药分子建立不同的光谱数据库;生物传感器检测方法,如电化学生物传感器法^[28],使用特殊修饰的电极作为负载材料,可使检出限低至0.1 nmol/L,但操作较复杂、成本较高;酶联免疫吸附法^[29]成本低廉、操作简单、特异性强,但检测精度有待提高。胶体金免疫层析法是目前主流的农药残留检测快速方法^[30~35],它是将胶体金标记试剂和特异性的抗原或抗体固定在结合垫上,待检样本通过毛细作用先与胶体金标记试剂融合发生反应,再继续移动至特异性抗原或抗体区域,观察是否与抗原或抗体发生特异性结合而聚集在检测条带上,以判断是否含有目标农药残留^[36~37]。胶体金免疫层析法检测高效、快速、特异性强,在基层农药残留快速筛查检测的应用十分有必要。本研究选择市面上常见的吡虫啉、啶虫脒胶体金免疫层析试纸条品牌,以蔬菜、水果、茶鲜叶等不同基质作为考察对象,针对检出限、灵敏度、特异性等性能指标对快速检测试纸进行研究和效果初探,以期加快胶体金免疫层析法试纸条检测技术提升和应用推广,加强蔬菜、水果、茶鲜叶等农产品的快速检

测能力,为农产品质量安全监管提供有力的保障途径。

1 材料与方法

1.1 材料与试剂

市售白菜;市售苹果;品种茶树鲜叶原料(福鼎大白茶一芽二叶:采自四川省成都市浦江县成佳镇)。市售吡虫啉和啶虫脒胶体金快速检测试纸条品牌5个(分别以A、B、C、D、E表示)。

甲醇中吡虫啉溶液标准物质[GBW(E) 084949]、甲醇中啶虫脒溶液标准物质[GBW(E) 085291](1000 μg/mL, 坛墨质检—标准物质中心);多菌灵(纯度98.4%)、丙酮中毒死蜱、甲醇中克百威(3-羟基克百威)、甲醇中百菌清(1000 mg/L)(上海安谱璀璨标准技术服务有限公司);乙腈(色谱纯,美国Sigma-Aldrich公司);水为GB/T 6682—2008《分析实验室用水国家标准》规定的一级水。

1.2 仪器与设备

Agilent 1290-6470 高效液相色谱-三重四极杆质谱联用仪(美国安捷伦公司);BSA224S 电子天平(精度0.1 mg,德国Sartorius公司)。

1.3 方 法

1.3.1 胶体金快速检测试纸条样品检测步骤

A品牌:称取1.00~2.00 g剪碎后的样品于50 mL刻度离心管中,吡虫啉加入8 mL稀释液,啶虫脒加入5 mL稀释液,手动颠倒混匀,充分清洗样品2 min,静置1 min,得样品液,检测前用1.5 mL离心管将样品液与稀释液按不同基质进行相应的比例稀释,得待检液;取出检测卡,水平放置于观察者正面,用铝箔袋中配套滴管吸取上述样品前处理待检液100 μL于检测卡加样孔中,加样后开始计时,结果在5~8 min读取。

B品牌:称取1.00~2.00 g剪碎后的样品于50 mL刻度离心管中,吡虫啉加入8 mL稀释液,啶虫脒加入5 mL稀释液,手动颠倒混匀,充分清洗样品2 min,静置1 min,得样品液,检测前用5 mL离心管将样品液与稀释液按基质不同进行不同比例稀释,得待检液;取出检测卡和一次性滴管,用滴管吸取3~4滴样本待检液于加样孔中,加样后开始计时,5~8 min读取结果。

C品牌:称取0.5~1.0 g待测样品表皮于5 mL刻度离心管中,加入1 mL吡虫啉/啶虫脒稀释液,充分振荡10 s,静置5 min,待检;取出试剂板,水平放置,用滴管吸取待检样品溶液,垂直滴加4滴于金标微孔中,2 min后用滴管

将微孔中的金和待检液体充分混匀, 将金标微孔中的待检液体全部转移至检测卡加样孔中, 8~10 min 读取结果。

D 品牌: 称取剪碎样品 0.5 g 于 10 mL 离心管中, 吡虫啉加入 5 mL 液体提取液, 啶虫脒加入 1 mL 液体提取液, 振摇 2 min 后待检; 吡虫啉取出检测卡, 水平放置, 用 0.25 mL 吸管吸取 5 滴待测液滴加于检测卡加样孔中, 待检测卡的显色区样液流动后约 8~10 min 进行判读; 啶虫脒取出检测卡, 水平放置, 取出金标微孔放入架子上, 用 0.25 mL 吸管吸取 5 滴待测液滴加于微孔杯中, 静置 2 min, 再用 0.25 mL 吸管上下抽吸至杯内红色物质完全溶解, 再用吸管吸取微孔杯中全部样液滴加于检测卡加样孔中, 待检测卡的显色区样液流动后约 8~10 min 进行判读。

E 品牌: 用剪刀剪碎样品, 称取 1.00 g 剪碎后的样品至离心管或样品杯中, 吡虫啉/啶虫脒加入 4 mL 样本提取液, 振荡 2 min, 静置 1 min; 吡虫啉加入取样本复溶液 950 μL 于 2 mL 离心管中, 再取 50 μL 提取后的上述样本液混匀, 得样品稀释液 1; 再取样本复溶液 980 μL 于新的 2 mL 离心管中, 再取 20 μL 的样品稀释液 1 混匀, 得待检液; 取出试纸卡, 用一次性吸管吸取样品待检液垂直滴加 2~3 滴于加样孔中, 反应 5~10 min 判定结果; 啶虫脒取上清液 50 μL 于 2 mL 离心管中, 加入样本提取液 950 μL 振荡混匀, 得样品稀释液; 再取样品稀释液 100 μL 于另一 2 mL 离心管中, 加入样本提取液 900 μL 振荡混匀, 为待检液, 取出试纸卡, 用一次性吸管吸取待检液垂直滴加 2 滴于加样孔中, 反应 10 min 后判读。

胶体金试纸条结果判定示例如图 1 所示。

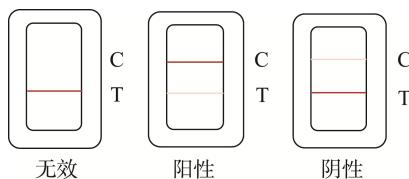


图 1 胶体金试纸条结果判定示意图

Fig.1 Schematic diagram for determining the results of colloidal gold test strips

1.3.2 参比方法

参比方法参考 GB/T 20769—2008《水果和蔬菜中 450

种农药及相关化学品残留量的测定 液相色谱-串联质谱法》; 灵敏度、特异性、假阳性率和假阴性率考察均为胶体金免疫层析法同参比方法相比较。

1.3.3 吡虫啉、啶虫脒标准溶液配制、其他农药标准溶液配制

吡虫啉标准储备溶液: 准确移取吡虫啉溶液标准物质 1 mL, 甲醇定容至 10 mL 量瓶, 配制成 100 μg/mL 吡虫啉标准储备液; 啶虫脒标准储备溶液: 准确移取啶虫脒溶液标准物质 1 mL, 甲醇定容至 10 mL 量瓶, 配制成 100 μg/mL 啶虫脒标准储备液; 多菌灵标准储备溶液: 准确称取 11.32 mg 多菌灵对照品, 置 10 mL 量瓶中, 甲醇溶解并定容, 摆匀, 作为多菌灵标准储备液; 毒死蜱标准储备溶液: 准确移取毒死蜱溶液标准物质 1 mL, 甲醇定容至 10 mL 量瓶, 配制成 100 μg/mL 毒死蜱标准储备液; 克百威(3-羟基克百威)标准储备溶液: 准确移取克百威(3-羟基克百威)溶液标准物质 1 mL, 甲醇定容至 10 mL 量瓶, 配制成 100 μg/mL 克百威(3-羟基克百威)标准储备液; 百菌清标准储备溶液: 准确移取百菌清溶液标准物质 1 mL, 甲醇定容至 10 mL 量瓶, 配制成 100 μg/mL 百菌清标准储备液。

1.4 数据处理

采用 Adobe Illustrator CC 2018 进行数据绘图, 采用 Excel 2016 进行数据统计分析。

2 结果与分析

2.1 检出限和灵敏度

依据 GB 2763—2021《食品安全国家标准 食品中农药最大残留限量标准》中吡虫啉和啶虫脒在苹果、大白菜和茶叶中的限量, 考察不同基质、不同品牌试纸条的灵敏度。依次配制不同浓度梯度的吡虫啉和啶虫脒标准溶液, 添加至苹果、白菜和茶鲜叶空白基质中, 依照 1.3.1 各品牌胶体金快速检测试纸条检测步骤, 考察检出限和灵敏度。添加浓度如表 1 所示, 检出限及灵敏度如表 2 所示。实验结果示例如图 2~3 所示, 从左至右依次为空白(结果阴性)、检出限(结果阳性)、检出限(结果阳性)、0.5 MRL(结果阳性)、0.5 MRL(结果阳性)、1.0 MRL(结果阳性)、1.0 MRL(结果阳性)。

表 1 吡虫啉、啶虫脒添加浓度

Table 1 Addition concentration of imidacloprid and acetamiprid

检测参数	基质	空白	检出限 1 (A、B 品牌)/(mg/kg)	检出限 2 (C、D、E 品牌)/(mg/kg)	0.5 MRL/(mg/kg)	1.0 MRL/(mg/kg)
吡虫啉	苹果	/	0.05	0.1	0.25	0.5
	白菜	/	0.05	0.1	0.25	0.5
	茶叶	/	0.05	0.1	0.25	0.5
啶虫脒	苹果	/	0.05	0.1	0.4	0.8
	白菜	/	0.05	0.1	0.5	1
	茶叶	/	0.05	0.1	5	10

注: /表示吡虫啉、啶虫脒空白添加浓度为 0, 下同; 最高残留限量(maximum residue limit, MRL)。

表 2 胶体金试纸条对吡虫啉、啶虫脒检测结果
Table 2 Detection results of colloidal gold test strips for imidacloprid and acetamiprid

检测参数	基质	品牌	空白	检出限	0.5 MRL	1.0 MRL
吡虫啉	苹果	A	-	+	+	+
		B	-	-	+	+
		C	-	+	+	+
		D	-	+	+	+
		E	-	+	+	+
	白菜	A	-	+	+	+
		B	-	-	+	+
		C	-	+	+	+
		D	-	+	+	+
		E	-	+	+	+
啶虫脒	茶叶	A	-	-	+	+
		B	-	+	+	+
		C	-	+	+	+
		D	-	+	+	+
		E	-	+	+	+
	苹果	A	-	-	+	+
		B	-	-	+	+
		C	-	+	+	+
		D	-	+	+	+
		E	-	+	+	+
	白菜	A	-	-	+	+
		B	-	-	+	+
		C	-	+	+	+
		D	-	+	+	+
		E	-	+	+	+

注: - 表示检测结果为阴性; + 表示检测结果为阳性, 下同。



图 2 吡虫啉胶体金试纸条检测结果示例图

Fig.2 Example of detection results of imidacloprid colloidal gold test strip

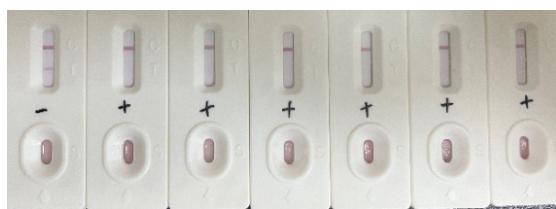


图 3 啶虫脒胶体金试纸条检测结果示例图

Fig.3 Example of detection results of acetamiprid colloidal gold test strip

根据检测结果, 各品牌胶体金试纸在3种不同类型基质(苹果、白菜和茶鲜叶)中, 0.5 MRL以及1.0 MRL浓度添加水平灵敏度满足要求; 吡虫啉、啶虫脒的检出限浓度由于添加水平低, 胶体金试纸条有可能因灵敏度不够而出现了假阴性情况, 未检出。

2.2 特异性和交叉反应率

因与吡虫啉、啶虫脒类似的化学结构, 需考察多菌灵、毒死蜱、克百威(3-羟基克百威)、百菌清几种农药对吡虫啉、啶虫脒胶体金试纸条的交叉反应率和特异性。配制1 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 的吡虫啉、啶虫脒、多菌灵、毒死蜱、3-羟基克百威、百菌清农药标准品溶液, 添加至白菜空白基质中, 考察5种胶体金试纸条特异性和交叉反应率, 如表3所示。

吡虫啉、啶虫脒、多菌灵、毒死蜱、3-羟基克百威、百菌清6种农药分别考察A、B、C、D、E5种品牌的吡虫啉和啶虫脒胶体金试纸条的特异性和交叉反应性, 结果均为阴性, 说明吡虫啉和啶虫脒试纸条均具有良好的特异性。

2.3 假阴性率和假阳性率

实际样品检测考察胶体金试纸条假阳性率: 选取5种苹果、5种白菜和5种茶鲜叶, 各品牌胶体金试纸条每种样品称取4个平行样, 其中2份用于吡虫啉检测, 2份用于啶虫

脒检测, 共计300个样品; 空白基质加标检测考察胶体金试纸条假阴性率: 选取苹果、白菜和茶鲜叶空白阴性基质, 各品牌分别添加0.5 MRL、1.0 MRL浓度的吡虫啉和啶虫脒标准溶液各5个, 共计300个样品, 结果如表4所示。从表4中可以看出, 实际蔬菜、水果及茶鲜叶样品, 检测结果均为阴性, 假阳性率为0%; 空白样品基质添加0.5 MRL和1.0 MRL浓度水平的吡虫啉和啶虫脒标准溶液, 蔬菜和水果基质中A、B、C3个品牌的胶体金试纸条均为阳性检出, 假阴性率为0%, D品牌在吡虫啉参数检测中苹果和白菜在0.5 MRL有显色不够清晰的情况, 判定为假阴性, E品牌的啶虫脒参数在苹果基质中有1个显色不清晰, 判定为假阴性。在茶鲜叶基质中, 提取液在提取过程中易将鲜叶中的有机酸类和可溶性糖提取出来, 造成一定程度的基质干扰, 茶色素也易使基质颜色较深, 使得试纸条显色不清晰, 造成判读的困难。从表4中看出, 吡虫啉检测参数, A、C、E品牌均为阳性检出, 假阴性率为0%, B和D品牌在0.5 MRL和1.0 MRL添加量的情况下有一定程度的假阴性情况, 均为显色不清晰, 影响判读; 啶虫脒参数, A、B、C均为阳性检出, 假阴性率为0%, D品牌在0.5 MRL和1.0 MRL添加量都有无法显色的假阴性情况。苹果、白菜基质显色不清晰示例如图4所示, 茶鲜叶基质显色不清晰示例如图5所示。

表3 吡虫啉、啶虫脒胶体金试纸条特异性和交叉反应性结果

Table 3 Results of specificity and cross reactivity of imidacloprid and acetamiprid colloidal gold test strips

试纸条	品牌	吡虫啉	啶虫脒	多菌灵	毒死蜱	3-羟基克百威	百菌清
吡虫啉胶体金 试纸条	A	/	-	-	-	-	-
	B	/	-	-	-	-	-
	C	/	-	-	-	-	-
	D	/	-	-	-	-	-
	E	/	-	-	-	-	-
啶虫脒胶体金 试纸条	A	-	/	-	-	-	-
	B	-	/	-	-	-	-
	C	-	/	-	-	-	-
	D	-	/	-	-	-	-
	E	-	/	-	-	-	-

表4 胶体金试纸条假阳性率和假阴性率

Table 4 False positive and false negative rates of colloidal gold test strips

检测参数	基质	品牌	假阳性			假阴性			假阴性率/%
			实际样品 个数	假阳性率/%	0.5 MRL(空白 基质加标个数)	1.0 MRL(空白 基质加标个数)	0.5 MRL 检出个数	1.0 MRL 检出个数	
吡虫啉	白菜	A	10	0	5	5	5	5	0
		B	10	0	5	5	5	5	0
		C	10	0	5	5	5	5	0
		D	10	0	5	5	4	5	10
		E	10	0	5	5	5	5	0

表 4(续)

检测参数	基质	品牌	假阳性		假阴性			
			实际样品个数	假阳性率%	0.5 MRL(空白基质加标个数)	1.0 MRL(空白基质加标个数)	0.5 MRL检出个数	1.0 MRL检出个数
吡虫啉	苹果	A	10	0	5	5	5	5
		B	10	0	5	5	5	5
	C	10	0	5	5	5	5	0
	D	10	0	5	5	4	5	10
啶虫脒	茶鲜叶	E	10	0	5	5	5	5
		A	10	0	5	5	5	0
	白菜	B	10	0	5	5	4	10
		C	10	0	5	5	5	0
啶虫脒	苹果	D	10	0	5	5	3	4
		E	10	0	5	5	5	0
		A	10	0	5	5	5	0
		B	10	0	5	5	5	0
		C	10	0	5	5	5	0
	茶鲜叶	D	10	0	5	5	5	0
		E	10	0	5	5	3	5
		A	10	0	5	5	5	0
		B	10	0	5	5	5	0
		C	10	0	5	5	5	0

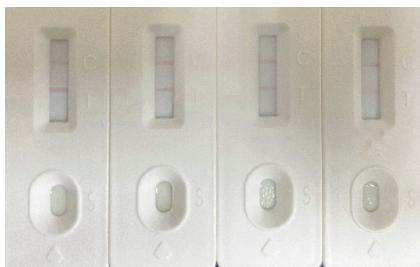


图 4 苹果、白菜显色不清晰示例图

Fig.4 Example image of unclear color display for apples and cabbage



图 5 茶鲜叶显色不清晰示例图

Fig.5 Example image of unclear color display for fresh tea leaves

3 结 论

选取蔬菜(白菜)、水果(苹果)和茶鲜叶作为研究对象,对吡虫啉和啶虫脒的 5 种品牌的胶体金免疫层析法试纸条进行检出限和灵敏度、特异性和交叉反应率、假阳性和假阴性等方法学考察。结果表明,各品牌胶体金试纸条在 3 种不同类型空白基质(苹果、白菜和茶鲜叶)中检测吡虫啉和啶虫脒,0.5 MRL 以及 1.0 MRL 浓度添加水平可满足灵敏度要求,各检出限浓度由于添加水平低,胶体金试纸条本身存在灵敏度不够的问题,会出现未检出的情形。研究考察了吡虫啉、啶虫脒、多菌灵、毒死蜱、3-羟基克百威、百菌清 6 种农药对 A、B、C、D、E 5 种品牌的吡虫啉和啶虫脒胶体金试纸条的特异性和交叉反应性,结果均为阴性,说明吡虫啉试纸条对吡虫啉、啶虫脒试纸条对啶虫脒,均具有很好的特异性。对蔬菜、水果和茶鲜叶进行实际样品检测,均为未检出,假阳性率为 0%;采用空白基质添加吡虫啉和啶虫脒 0.5 MRL 和 1.0 MRL 标准溶液,在蔬菜和水果基质中,3 个品牌的胶体金试纸条均有阳性检出,另两

个品牌各有一个出现未检出情况; 而在茶鲜叶基质中, 由于胶体金试纸条是针对蔬菜和水果基质设计的产品, 对茶鲜叶基质的适配度不太高, 在提取过程中, 易出现将茶鲜叶中的有机酸类、可溶性糖提取出来, 造成一定程度的基质干扰, 而茶鲜叶中的天然色素也易使基质颜色较深, 使得试纸条显色不清晰, 造成判读困难的问题, 其中吡虫啉检测参数, 有两个品牌在0.5 MRL和1.0 MRL添加量的情况下有一定程度的假阴性情况, 均为显色不清晰, 影响判读; 啶虫脒检测参数, 有一个品牌在0.5 MRL和1.0 MRL添加量均有无法显色的假阴性情况。

综上所述, 市场主要流通的胶体金试纸产品在蔬菜和水果中吡虫啉和啶虫脒农药残留检测上技术较为成熟, 判定结果准确可靠; 在茶鲜叶的检测中, 出现假阴性的几率较高, 易造成在实际样品检测时漏掉阳性样品的情况, 对人们的身体健康造成危害。茶叶作为我国重要农产品之一, 目前还未有专门针对其农药残留检测的胶体金快速检测产品, 因此迫切需要研发针对茶叶农药残留检测的特异性较强的胶体金试纸条产品。

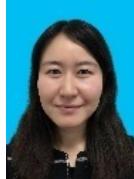
参考文献

- [1] SHARMA KK, TRIPATHY V, SHARMA K, et al. Long-term monitoring of 155 multi-class pesticide residues in Indian vegetables and their risk assessment for consumer safety [J]. *Food Chem*, 2022, 373(B): pN PAG-N.PAG.
- [2] RAMADAN MFA, ABDEL-HAMID MMA, ALTORGOMAN MMF, et al. Evaluation of pesticide residues in vegetables from the Asir Region, Saudi Arabia [J]. *Molecules*, 2020, 25(1): 205.
- [3] FAN JC, AN J, REN R, et al. Occurrence and exposure risk assessment of pesticide residues in green tea samples cultivated in Hangzhou area, China [J]. *Food Addit Contam B*, 2023, 16(1): 8–13.
- [4] 朱国念, 桂文君, 郑尊涛, 等. 吡虫啉人工抗原的合成与鉴定[J]. 中国农业科学, 2005, 38(3): 511–515.
- [5] ZHU GN, GUI WJ, ZHENG ZT, et al. Synthesis and identification of artificial antigen for imidacloprid [J]. *Sci Agric Sin*, 2005, 38(3): 511–515.
- [6] 马寅生, 冯才伟, 贾芳芳, 等. 一种吡虫啉的酶联免疫快速检测试剂盒的研制[J]. 山东畜牧兽医, 2013, 34: 6–8.
- [7] MA YS, FENG CW, JIA FF, et al. Development of an enzyme-linked immunosorbent assay kit for rapid detection of imidacloprid [J]. *Shandong J Anim Sci Vet Med*, 2013, 34: 6–8.
- [8] BARBOSA-MEDINA AM, MACIEL EVS, DOS SDM, et al. Neonicotinoids exposure assessment in Africanized honey bees (*Apis mellifera* L.) by using an environmentally-friendly sample preparation technique followed by UPLC-MS/MS [J]. *J Environ Sci Health B*, 2022, 57(4): 252–262.
- [9] ZHANG ZJ, CHEN QP, HUANG H, et al. Ultrasensitive immunoassay for the determination of imidacloprid in medicinal herbs [J]. *Anal Lett*, 2023, 56(11): 1843–1855.
- [10] 李广领, 陈锡岭, 王自良, 等. 杀虫剂啶虫脒人工抗原的合成与表征[J]. 河南科技学院学报, 2010, 38(4): 18–22.
- [11] LI GL, CHEN XL, WANG ZL, et al. Synthesis and characterization of artificial antigen of acetamiprid [J]. *J Henan Inst Sci Technol*, 2010, 38(4): 18–22.
- [12] BALAYIANNIS GP, KARASALI H. Determination of azoxystrobin, topramezone, acetamiprid, fluometuron and folpet in their commercially available pesticide formulations by liquid chromatography [J]. *J Environ Sci Health B*, 2021, 56(5): 503–511.
- [13] AKRAM S, SULTANA B, AASI MR, et al. Salting-out assisted liquid-liquid microextraction and reverse-phase chromatographic quantification of two neonicotinoid insecticides from fruits and vegetables [J]. *J Chromatogr Sci*, 2023, 61(9): 875–884.
- [14] 戴华, 李拥军, 张莹. 稻谷中吡虫啉农药残留量的固相萃取高效液相色谱测定[J]. 分析测试学报, 2002, 21(1): 70–72.
- [15] DAI H, LI YJ, ZHANG Y. Determination of imidacloprid in rice by solid phase extraction-HPLC [J]. *J Instrum Anal*, 2002, 21(1): 70–72.
- [16] 吴俐勤, 吴声敢, 刘宇. 高效液相色谱测定吡虫啉的残留研究[J]. 现代科学仪器, 2003, (1): 52–55.
- [17] WU LQ, WU SG, LIU Y. Residue study of imidacloprid by HPLC [J]. *Mod Sci Instrum*, 2003, (1): 52–55.
- [18] LIANG WQ, WANG JT, ZANG XH, et al. Barley husk carbon as the fiber coating for the solid-phase microextraction of twelve pesticides in vegetables prior to gas chromatography-mass spectrometric detection [J]. *J Chromatogr A*, 2017, 1491: 9–15.
- [19] 张少军, 王莉, 钱训, 等. 杀虫剂啶虫脒在黄瓜上的残留动态研究[J]. 河北农业科学, 2004, 8(2): 54–56.
- [20] ZHANG SJ, WANG L, QIAN X, et al. Study on the residue behavior of novel pesticide acetaniprid in cucumber [J]. *J Hebei Agric Sci*, 2004, 8(2): 54–56.
- [21] LUTZ A, KERSTIN G, GUNTHER K, et al. Residue analysis of 500 high priority pesticides: Better by GC-MS or LC-MS/MS [J]. *Mass Spectrom Rev*, 2006, 25(6): 838–865.
- [22] 庚琴, 秦曙, 王霞, 等. 温度、光照及生物因子对啶虫脒和吡虫啉在油菜叶面消解的影响[J]. 农药学学报, 2006, 8(2): 147–151.
- [23] YU Q, QIN S, WANG X, et al. Dissipation of acetamiprid under different temperature light and biological factors on phyllosphere of *Brassica chinensis* [J]. *Chin J Pestic Sci*, 2006, 8(2): 147–151.
- [24] FU DH, ZHANG Y, ZHANG SY, et al. Validation and application of a QuEChERS-based method for estimation of the half-lives of cyromazine and acetamiprid in cowpeas and soil by LC-ESI-MS/MS [J]. *Int J Environ Anal Chem*, 2022, 102(3): 650–666.
- [25] LIU QQ, HE QB, ZHANG SY, et al. Toxic effects of detected pyrethroid pesticides on honeybee (*Apis mellifera ligustica* Spin and *Apis cerana cerana* Fabricius) [J]. *Sci Rep*, 2022, 12(1): 1–9.
- [26] LIU G, RONG L, GUO B, et al. Development of an improved method to extract pesticide residues in foods using acetonitrile with magnesium sulfate and chloroform [J]. *J Chromatogr A*, 2011, 1218(11): 1429–1436.
- [27] AMBRUS Á, DOAN VVN, SZENCZI-CSEH J, et al. Quality control of pesticide residue measurements and evaluation of their results [J]. *Molecules*, 2023, 28(3): 954–982.
- [28] ELSHABRAWY MS, KHORSHID MA, HAMDY A, et al. Optimization and evaluation of four multi-residue methods for the determination of

- pesticide residues in orange oil using LC-MS/MS and GC-MS/MS: A comparative study [J]. Int J Environ Anal Chem, 2023, 103(16): 4061–4078.
- [22] ZHAO YJ, LIU MY, SHUAI ZH, et al. Smartphone-assisted ratiometric sensing platform for on-site tetracycline determination based on europium functionalized luminescent Zr-MOF [J]. Food Chem, 2023, 425: 136449.
- [23] ZHANG QJ, SHEN Y, ZHUANG KY, et al. A “turn-on” approach for rapid detection of tetracycline based on supramolecular aggregates of water soluble perylenediimide [J]. J Photoch Photobio A, 2023, 445: 115014.
- [24] 鄭之雨, 周帥, 姚志軼. 基于納米熒光探針的四環素快速檢測方法研究進展[J]. 肉類研究, 2023, 37: 60–70.
- YAN ZY, ZHOU S, YAO ZY. Research progress in rapid detection of tetracycline using fluorescent nanoprobes [J]. Meat Res, 2023, 37: 60–70.
- [25] HE SG, ZHANG SF, ZHAO X, et al. Highly selective NIR fluorescent probe for acetylcholinesterase and its application in pesticide residues detection [J]. Chin Chem Lett, 2022, 33: 4233–4237.
- [26] ALSAMMARRAIE FK, LIN MS. Using standing gold nanorod arrays as surface-enhanced Raman spectroscopy (SERS) substrates for detection of carbaryl residues in fruit juice and milk [J]. J Agric Food Chem, 2017, 65(3): 666–674.
- [27] 毛金竹, 肖淑玲, 杨智淳, 等. 合成生物學在農殘檢測領域的應用[J]. 化工學報, 2021, 72(5): 2413–2425.
- MAO JZ, XIAO SL, YANG ZC, et al. Application of synthetic biology in pesticides residues detection [J]. CIESC J, 2021, 72(5): 2413–2425.
- [28] CHAUHAN N, PUNDIR CS. An amperometric biosensor based on acetylcholinesterase immobilized onto iron oxide nanoparticles/multi-walled carbon nanotubes modified gold electrode for measurement of organophosphorus insecticides [J]. Anal Chim Acta, 2011, 701(1): 66–74.
- [29] HUO JQ, LI ZF, WAN DB, et al. Development of a highly sensitive direct competitive fluorescence enzyme immunoassay based on a nanobody-alkaline phosphatase fusion protein for detection of 3-phenoxybenzoic acid in urine [J]. J Agric Food Chem, 2018, 66(43): 11284–11290.
- [30] LIN M, YING Z, CHENG JB, et al. Rapid detection of chlorothalonil in blueberries by colloidal gold immuno-chromatographic assay [J]. Chin J Pestic Sci, 2023, 25(2): 435–443.
- [31] LI XL, XU XX, WU AH, et al. Ultrasensitive detection of phenolphthalein in slimming products by gold-based immunochromatographic paper [J]. J Pharmaceut Biomed, 2022, 212: pN.PAG-N.PAG.
- [32] 周佳, 何丹, 王炳志, 等. 胶体金免疫层析法同时检测果蔬中克百威、水胺硫磷、百菌清及虫酰肼的应用研究[J]. 食品安全质量检测学报, 2021, 12(19): 7606–7610.
- ZHOU J, HE D, WANG BZ, et al. Application research on the simultaneous determination of carbofuran, hydrocarbophos, chlorothalonil and tebufenozone in fruits and vegetables by colloidal gold immunochromatography [J]. J Food Saf Qual, 2021, 12(19): 7606–7610.
- [33] LIN L, SONG SS, WU XL, et al. A colloidal gold immunochromatography test strip based on a monoclonal antibody for the rapid detection of triadimenol and triadimenol in foods [J]. Food Agric Immunol, 2020, 31(1): 475–488.
- [34] XU XX, GUO LL, WU AH, et al. Rapid and sensitive detection of flubendiamide in grapes and tomatoes using a colloidal gold immunochromatography assay [J]. Food Addit Contam A, 2022, 39(11): 1843–1854.
- [35] WANG P, XU XX, LIU LQ, et al. A colloidal gold immunochromatography for the detection of flumioxazin residues in fruits [J]. J Food Sci, 2022, 87(10): 4538–4547.
- [36] LAN JQ, WANG MF, DING S, et al. Simultaneous detection of carbofuran and 3-hydroxy-carbofuran in vegetables and fruits by broad-specific monoclonal antibody-based ELISA [J]. Food Agric Immunol, 2019, 30(1): 1085–1096.
- [37] 周丽岩, 吕宝新, 任勃儒, 等. 胶体金免疫层析技术在食品安全检测中的应用研究[J]. 中国调味品, 2015, 40(2): 128–131.
- ZHOU LY, LV BX, REN BR, et al. Research on application of colloidal gold immune chromatography technology in food safety testing [J]. China Cond, 2015, 40(2): 128–131.

(责任编辑: 张晓寒 郑丽)

作者简介



王戩婕, 硕士, 副研究员, 主要研究方向为食品检测技术。

E-mail: 22873041@qq.com



李怀平, 博士, 研究员, 主要研究方向为测试技术与标准研究。

E-mail: lihuaiping@nimtt.com