DOI: 10.19812/j.cnki.jfsq11-5956/ts.20251014001
引用格式: 赵洛圆, 孙妍, 孙思颖, 等. 双模态免疫层析技术的建立及其在功能饮料中他达拉非检测中的应用[J]. 食品安全质量检测学报, 2026, 17(7): 235–242.
ZHAO LY, SUN Y, SUN SY, *et al*. Development of dual-modal immunochromatographic assay and its application in the detection of tadalafil in functional beverages [J]. Journal of Food Safety & Quality, 2026, 17(7): 235–242. (in Chinese with English abstract).

双模态免疫层析技术的建立及其在功能饮料中他达拉非检测中的应用

赵洛圆[1], 孙 妍[1], 孙思颖[1], 姚 丽[1,2], 涂 佳[3], 许 宙[2], 陈 伟[1*]

(1. 合肥工业大学食品与生物工程学院, 合肥 230000; 2. 长沙理工大学食品与生物工程学院, 长沙 410114; 3. 湖南省林业科学院木本油料资源利用全国重点实验室, 长沙 410004)

摘 要: 目的 建立一种可同时提供视觉与荧光双信号读出的免疫层析技术; 及其在功能饮料复杂基质中, 对痕量他达拉非实现高灵敏、高准确度检测的实际应用性能。**方法** 本研究首先将磁性纳米颗粒与量子点相结合, 制备磁性量子点复合材料, 并将其用于标记他达拉非抗体, 构建出高灵敏度、高特异性的磁性量子点探针。同时, 通过引入预孵育步骤以有效消除基质干扰; 在实验过程中, 对抗体标记量、封闭剂种类、重悬液体系及孵育液组成等关键条件进行了系统优化。**结果** 实验数据显示, 该双模态免疫层析技术对他达拉非的视觉最低检出限在比色信号下达 0.5 ng/mL, 在荧光信号下达 1 ng/mL, 且表现出良好的特异性, 与西地那非、伐地那非等结构类似物无交叉反应现象。**结论** 基于磁性量子点的双模态免疫层析技术巧妙融合了磁分离技术的高净化能力与量子点的高荧光灵敏度, 具有操作简便、抗干扰性强等显著优势。该技术能够实现对功能饮品中他达拉非的现场快速筛查与初步定量, 为功能饮品非法添加物的检测提供了实用且高效的技术方案。

关键词: 他达拉非; 双模态; 免疫层析; 功能食品; 磁性量子点

Development of dual-modal immunochromatographic assay and its application in the detection of tadalafil in functional beverages

ZHAO Luo-Yuan[1], SUN Yan[1], SUN Si-Ying[1], YAO Li[1,2], TU Jia[3], XU Zhou[2], CHEN Wei[1*]

(1. *School of Food and Biological Engineering*, *Hefei University of Technology*, *Hefei* 230000, *China*; 2. *School of Food Science and Bioengineering*, *Changsha University of Science and Technology*, *Changsha* 410114, *China*; 3. *State Key Laboratory of Utilization of Woody Oil Resources*, *Hunan Academy of Forestry*, *Changsha* 410004, *China*)

ABSTRACT: Objective To establish an immunochromatographic technique that can provide both visual and fluorescent signal readout at the same time. To evaluate the practical application performance of this technology for high-sensitivity and high-accuracy detection of trace tadalafil in complex matrices of energy drinks. **Methods** In

收稿日期: 2025-10-14
基金项目: 国家重点研发计划项目(2022YFF1102900); 国家自然科学基金项目(32172295)
第一作者: 赵洛圆(2001—), 女, 主要研究方向为食品安全检测。E-mail: 2429826515@qq.com
***通信作者:** 陈伟(1982—), 男, 博士, 教授, 主要研究方向为食品安全检测。E-mail: chenweishnu@163.com

this study, magnetic nanoparticles were first combined with quantum dots to prepare magnetic quantum dot composite materials, which were then used to label the anti-tadalafil antibody, thereby constructing a highly sensitive and specific magnetic quantum dot probe. Meanwhile, a pre-incubation step was introduced to effectively eliminate matrix interference. During the experimental process, key conditions including the antibody labeling amount, type of blocking agent, resuspension buffer system and composition of the incubation solution were systematically optimized. **Results** Experimental data showed that the dual-modal immunochromatographic technology achieved a visual limit of detection for tadalafil of 0.5 ng/mL in the colorimetric mode and 1 ng/mL in the fluorescent mode. Additionally, the technology exhibited excellent specificity with no cross-reactivity observed with structural analogs such as sildenafil and vardenafil. **Conclusion** The dual-mode immunochromatographic technique based onmagnetic quantum dots ingeniously combine the high purification capability of magnetic separation technology with the high fluorescence sensitivity of quantum dots, offering significant advantages such as simplicity of operation and strong anti-interference ability. This technique can achieve rapid screening and preliminary quantification of tadalafil in functional foods on-site, providing a practical and efficient technical solution for the detection of illegal additives in functional foods.

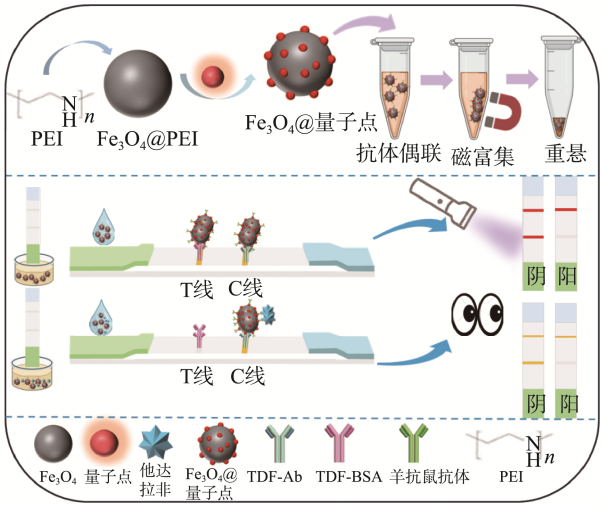
KEY WORDS: tadalafil; dual-mode; immunochromatography; functional food; magnetic quantum dots

0 引 言

他达拉非自 2003 年首次获批以来[1]，凭借其优异的药代动力学特性(包括长半衰期和持久的治疗效果)[2]，成为治疗男性勃起功能障碍的重要药物。然而，近年来，他达拉非非法添加到不受管制的草药补充剂和假冒药物中的现象日益严重[3−5]，这些产品常以性能力增强剂的形式销售，对消费者健康构成巨大风险[6−7]。长期服用含非法添加他达拉非的产品可能导致心血管问题、低血压、视力损伤等严重后果[8−9]。因此，开发快速、灵敏、可靠的分析方法以检测药品和商业产品中的他达拉非显得尤为重要。

目前，功能食品中他达拉非的检测技术主要包括薄层色谱法[10−11]、拉曼光谱法[4,12]、高效液相色谱法[13−15]、高效液相色谱-串联质谱法[16−17]、气相色谱-电子捕获检测器法[18−20]、液相色谱-质谱法[21−24]、理化分析检测法[25]及常规免疫分析法[26−28]等。其中高效液相色谱法检测灵敏度达 11.53~92.24 μg/mL，常规免疫分析法检测灵敏度达到 200 ng/mL[29]。尽管常规实验室仪器分析方法能提供精确定量结果，但样品前处理复杂、检测成本高、耗时长，且需要专业技术人员操作，难以满足现场快速检测的需求。侧流免疫分析方法(lateral flow immunoassay, LFIA)因其前处理简单、成本低廉、操作简便、适应性广等优点，逐渐成为食品安全检测的重要手段。

本研究提出了一种基于磁性量子点的双模态荧光 LFIA 生物传感器，其原理如图 1 所示，以磁性量子点-他达拉非偶联物为核心探针(磁性纳米颗粒实现目标物富集纯化，量子点提供高荧光信号)，基于免疫层析的毛细流动驱动反应，在硝酸纤维素膜(NC 膜)上完成竞争结合与信号输出。检测时，若样本中存在他达拉非，则会优先与偶联物上的抗体结合，形成“他达拉非-抗体-磁性量子点”复合物，混合物流至检测线时，不会与 T 线包被的抗原结合，则 T 线不会显线；若样本中不存在他达拉非时，混合体系流至 NC 膜后，未被目标物结合的偶联物会与检测线(T 线)喷涂的他达拉非包被原结合，而剩余偶联物则与质控线(C 线)的二抗结合。本研究围绕磁性量子点试纸条检测功能食品中他达拉非展开，涵盖实验材料优化、实际样品检测、方法学验证拓展及稳定性测试等；通过多方面实验设计，优化检测条件、验证方法可靠性与适用性，旨在实现对功能食品中他达拉非的快速筛查和准确检测。



注：聚乙烯亚胺(polyethyleneimine, PEI)，牛血清蛋白(bovine serum albumin, BSA)。

图 1 双模态免疫层析检测他达拉非原理图

Fig.1 Schematic diagram illustrating the principle of dual-modal immunochromatographic assay for the detection of tadalafil

1 材料与方法

1.1 材料与试剂

Fe_3O_4(粒径 100~200 nm，质量浓度 10 mg/mL，纯度≥99%)(江苏先丰纳米材料科技有限公司)；量子点[星紫

(上海)新材料技术开发有限公司]; 硝酸纤维素膜(nitrocellulose, NC)、吸水垫、玻璃纤维膜、聚氯乙烯底板(上海捷宁科技生物有限公司)。

PEI、BSA、人血清蛋白(human serum albumin, HSA)、酪蛋白(Casein)、酪蛋白钠(Casein-Na)(北京拜尔迪生物技术有限公司); 盐酸(HCl)、氯化钠(NaCl)、氢氧化钠(NaOH)、磷酸氢二钠(Na_2HPO_4)、磷酸二氢钠(NaH_2PO_4)、蔗糖、海藻糖、聚乙烯吡咯烷酮(polyvinyl pyrrolidone, PVP-K40)、表面活性剂 S9、硼酸(H_3BO_3)、十六烷基三甲基溴化铵(cetyltrimethylammonium bromide, CTAB)、4-羟乙基哌嗪乙磺酸 [4-(2-hydroxyethyl)-1-piperazineethanesulfonic acid, Hepes] (分析纯, 国药集团化学试剂有限公司); 聚乙二醇-20000、吐温 20、曲拉通 X-100(分析纯, 上海阿拉丁生化科技股份有限公司); 磷酸盐缓冲液(phosphate-buffered saline, PBS)、Tris-HCl (1 mol/L pH 8.0)溶液、1-乙基-(3-二甲基氨基丙基)碳酰二亚胺[1-ethyl-(3-dimethylaminopropyl) carbamodiimide, EDC](分析纯, 上海生工生物股份有限公司); 他达拉非抗体、他达拉非包被原、他达拉非标准品(纯度≥99%, 杭州正知生物公司); 羊抗鼠修饰生物素(分析纯, 长沙美牛科技生物有限公司); N-羟基琥珀酰亚胺(N-hydroxysuccinimide, NHS)(分析纯, 百灵威科技有限公司)。实验用水为超纯水。

1.2　仪器与设备

JA 2003 万分之一电子分析天平(上海力辰科技有限公司); KQ 218 超声仪(昆山市超声仪器有限公司); Mix Table 微型涡旋混合仪(合肥艾本森科学仪器有限公司); MD-510 划膜仪(南京微测生物科技公司); MD-210 高速切条机(南京微测生物科技); Nano-ZSE 纳米粒度及 Zeta 电位分析仪(马尔文仪器公司)。

1.3　实验方法

1.3.1　磁性量子点的制备

依据文献[30]方法并略作改进, 具体步骤如下: 将 1 mL Fe_3O_4 磁性纳米粒子(10 mg/mL)与 50 mL PEI 水溶液(0.2 mg/mL)在超声处理下反应 30 min, 使 PEI 自组装到 Fe_3O_4 表面形成带正电的 PEI 壳。磁性收集 Fe_3O_4@PEI 磁性纳米粒子, 并用去离子水冲洗两次以去除多余 PEI。随后, 将纯化的 Fe_3O_4@PEI 与 50 mL 量子点(1 nmol/L)混合, 剧烈超声处理 40 min, 使带负电的量子点通过静电吸引力密集吸附在 Fe_3O_4@PEI 表面。磁性收集 Fe_3O_4@量子点核壳纳米复合材料, 重新分散在 5 mL 去离子水中, 重复吸附两层量子点后真空冻干, 得到 Fe_3O_4@量子点粉末, 分散于乙醇中形成标准溶液(1 mg/mL), 避光保存备用。

1.3.2　试纸条的制备

试纸条由底板、样品垫、NC 膜及吸水垫组成。将处理好的样品垫、硝酸纤维素膜和吸水垫贴于底板上进行组装。后用切条机, 将组装好的试纸条切为 3 mm×60 mm 后密封保存备用。

1.4　实验主要缓冲溶液及处理液的配制

1.4.1　样品垫的制备

将玻璃纤维素膜切成 18 mm×300 mm 的大小, 置于样品垫处理液中浸泡 2 h, 确保玻璃纤维素膜浸泡均匀。浸泡完成后, 取出样品垫于 37 ℃烘箱中烘干备用。

1.4.2　金标垫的制备

将玻璃纤维素膜切成 3 mm×300 mm 的大小, 置于金标垫处理液中浸泡并确保其浸泡均匀, 2 h 后取出于 37 ℃烘箱中烘干, 烘干后将其切至 3 mm×3 mm 大小备用。

1.4.3　硝酸纤维素膜的制备

使用划膜喷膜仪将一定质量浓度的他达拉非包被原和 1 mg/mL 的羊抗鼠二抗分别以每厘米 0.7 μL 和 0.5 μL 的出水量喷涂于 NC 膜上作为试纸条的检测线和控制线, 之后置于 37 ℃烘箱烘干备用。

1.4.4　吸水垫的制备

将吸水垫切成 18 mm×300 mm 大小, 置于干燥处备用。

1.4.5　试剂的制备

重悬液 E 的配制: 分别称取 1 g 牛血清蛋白, 10 g 蔗糖和 0.25 g 聚乙二醇-20000 到干净烧杯中, 再加入 100 μL Tris-HCl 后, 定容至 100 mL。

重悬液 D 的配制: 分别称取 0.05 g PVP-K40 和 1.5 g 蔗糖到洁净烧杯中, 加入 10 mL 10% Casein-Na 使其充分溶解。

10 mmol/L 磷酸缓冲液(PB)的配制: 0.2 mol/L Na_2HPO_4: 称取 35.8 g Na_2HPO_4 粉末, 置于 500 mL 烧杯中, 加 200 mL 超纯水搅拌溶解后, 转移至 500 mL 容量瓶定容;

0.2 mol/L NaH_2PO_4: 称取 15.6 g NaH_2PO_4 粉末, 置于 500 mL 烧杯中, 加 200 mL 超纯水搅拌溶解后, 转移至 500 mL 容量瓶定容;

10 mmol/L PB: 量取 19 mL 0.2 mol/L Na_2HPO_4 和 81 mL 0.2 mol/L NaH_2PO_4 混合均匀后, 量取 50 mL 混合液, 用超纯水定容至 1000 mL.

Running buffer 的配制: 吸取 1 mL 1 mol/L pH 7.4 Tris-HCl、1 mL 0.5 mol/L 的 $MgCl_2$、500 μL 1 mol/L 的 KCl、10 mL 20×SSC、1 mL 吐温-20 到烧杯中, 再准确称取 0.5 g PEG-20000、0.036445 g CTAB、1 g BSA 到烧杯中, 先用 80 mL 超纯水超声溶解, 再将溶液转移至 100 mL 容量瓶中, 用超纯水定容后置于 4 ℃冰箱保存备用。

10 mg/mL EDC: 称取 0.005 g EDC 粉末, 倒入 1.5 mL 离心管中, 加入 500 μL 超纯水, 混匀备用(现配现用)。

10 mg/mL NHS: 称取 0.005 g NHS, 倒入 1.5 mL 离心管中, 加入 500 μL 超纯水, 混匀备用(现配现用)。

硼酸盐缓冲溶液(BB)的配制: 使用电子分析天平称取 0.7729 g 硼酸粉末, 倒至 500 mL 的洁净烧杯中, 用量筒

精确量取 200 mL 的超纯水将粉末溶解后，10% NaOH 调节溶液的 pH，将烧杯中的溶液转移至容量瓶定容，最后再将溶液转移到洁净的蓝盖瓶中储存备用。

1.5 磁性量子点标记抗体的制备

主要步骤为，取所制备的磁性量子点 400 μL，磁性分离后，复溶于 pH 5.5 的 Hepes 中再加入 10 mg/mL 的 MES 和 EDC 活化 15 min；加入 1 μL 1 mg/mL 的他达拉非抗体偶联 1 h，后加入 0.5% Casein-Na 封闭 1 h 后，磁性分离，除去上清，加入 50 μL 重悬 E，备用。

1.6 可行性验证

分别将质量浓度为 1 ng/mL 的他达拉非和不含他达拉非的空白样品各 50 μL 加孵育液 5 μL 等待 10 min 后在试纸条观察检测线显色情况，并且对检测线进行强度分析。

1.7 数据处理

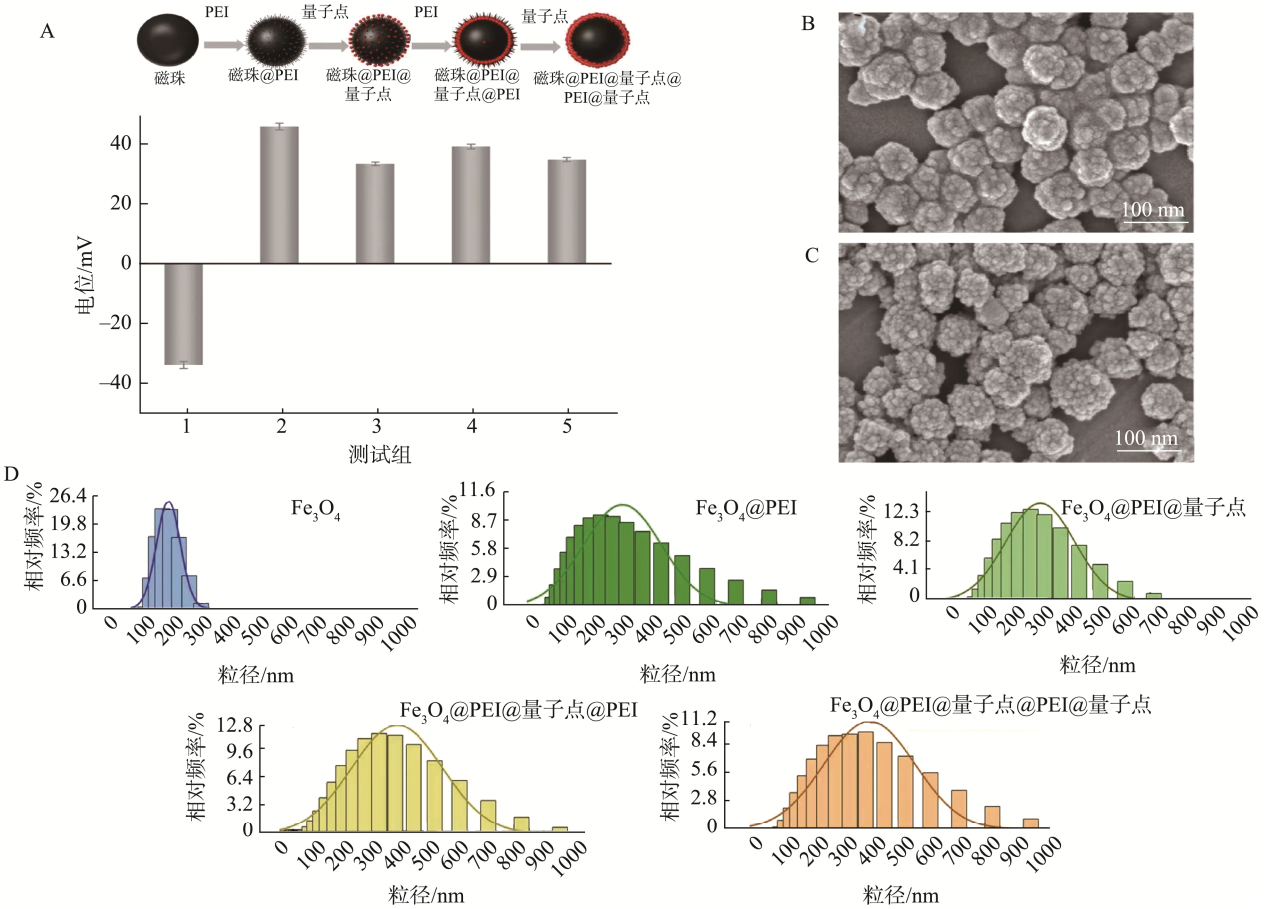
首先，使用 Adobe Photoshop 2024 版对原始试纸条图像进行排列、裁剪及背景扣除。随后，利用 Image J 软件对处理后的图像进行灰度分析，以获取定量数据。最终，基于所得数据，在 Origin 2022 中生成柱状图以进行可视化呈现(所有实验均重复 3 次得出数据)。

2 结果与分析

2.1 磁性量子点的表征

首先对制成磁性量子点结果进行表征，如图 2 所示。根据前文所述的方法制备得到磁性量子点，基于逐层组装策略，在 Fe_3O_4 核心表面反复吸附 PEI 和量子点。图 2A 则是在磁性量子点制备过程中电位的变化，由于磁珠本身带负电荷，在 PEI 结合后由负电荷变为正电荷，而带负电荷的量子点由于静电结合作用与其结合，由图 2A 可看到在量子点结合以后电荷由 47.3 mV 降为 33.2 mV，由于量子点未能完全与 PEI 包覆的磁珠结合，因此仍为正电荷。而后又重新包覆一层 PEI 以后电荷又重新上升至 40.2 mV，再次与量子点结合后电荷又一次降至 34.2 mV。图 2B 是对单纯磁珠进行拍摄的扫描电镜，图 2C 则是合成的磁性量子点扫描电镜，由图 2B 和图 2C 可以看到合成的磁性量子点表面相比于单纯磁珠多出些许量子点，表明量子点成功包覆在磁珠表面。

马尔文激光粒度仪对磁性量子点粒度进行的检测，由图 2D 可以看出 Fe_3O_4 的粒径不断增大，由最初的 164 nmol/L 增大到最终的 342 nmol/L，表示 PEI 和量子点逐层包覆在



注：A. 磁性量子点合成过程以及电位变化；B、C. 分别为磁珠和磁性量子点的扫描电镜图；D. 磁性量子点合成过程中粒径变化。

图 2 磁性量子点复合材料的结构表征

Fig.2 Structural characterization of magnetic quantum dot composite materials

Fe_3O_4 表面，也证明了磁性量子点的成功制备。由以上结果可以证明了磁性量子点的成功制备。

2.2　标记最佳条件的选择

2.2.1　最佳抗体量的选择

不同的抗体标记量，对他达拉非试纸检测的灵敏度有很大的影响。选择 0.4、0.6、0.8、1.0 μL 1 mg/mL 的抗体进行抗体量优化。具体结果如图 3A 所示，随着偶联抗体量的增加，相同浓度下试纸 T 线信号强度逐渐变大，灵敏度也逐渐降低。因此，综合分析试纸 T 线信号强度、检测灵敏度和信噪比，最后选择偶联抗体的最佳用量为 0.8 μL。

2.2.2　封闭剂的选择

合适的封闭剂，能够有效地阻断表面多余的活性位点，消除非特异性吸附，提高检测的灵敏度。本研究选择了 5% BSA、5% HSA、0.5% Casein、0.5% Casein-Na 4 种封闭剂进行优化。具体结果如图 3B 所示，可以看到当封闭剂为 0.5% Casein-Na 时，试纸的灵敏度、阴性显色强度最佳，因此选择封闭剂为 0.5% Casein-Na。

2.2.3　重悬液的选择

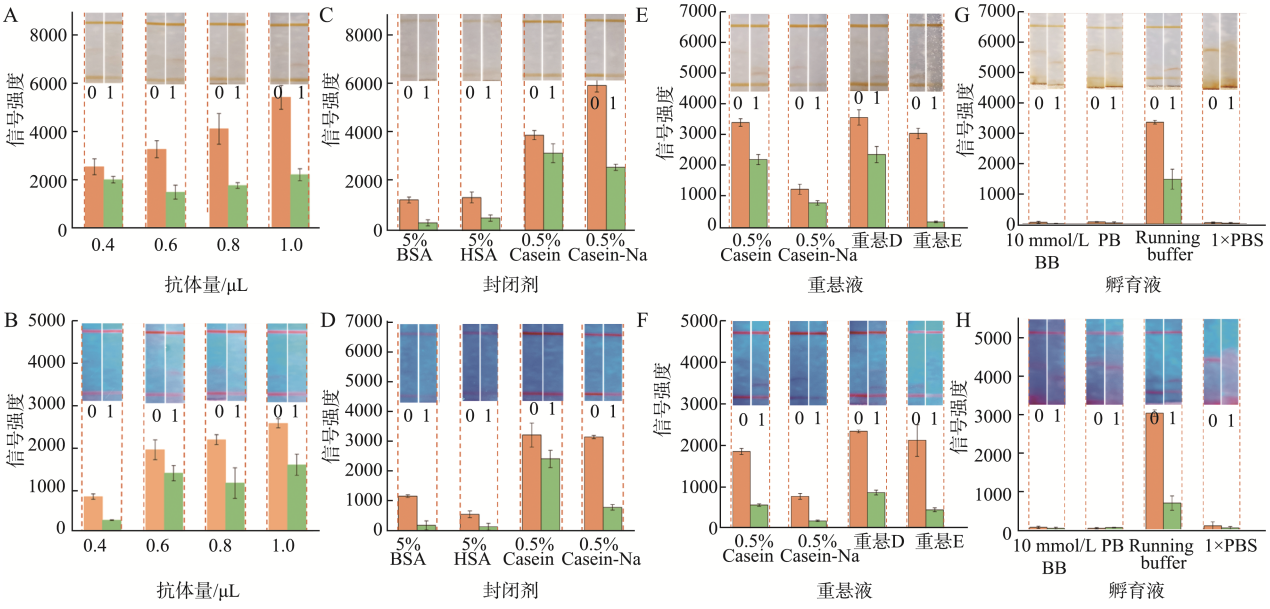
重悬液是为了使最后沉淀复溶并保持抗体的活性，不同的重悬液对抗体的影响有着巨大的区别。本研究选取了 4 种不同的重悬液进行优化，分别是 0.5% Casein、0.5% Casein-Na、重悬液 D、重悬液 E，由如图 3C 可以看出，当封闭剂为重悬液 E 时，试纸的灵敏度、阴性显色强度最佳，因此选择重悬液为重悬液 E。

2.2.4　孵育液的选择

不同的孵育液离子种类和 pH 均有差异，这些复杂的缓冲体系在一定程度上影响了磁性量子点偶联复合物中抗体的活性以及磁性量子点偶联物与目标物的结合效率，并且影响磁性量子点偶联物在 NC 膜上的层析速度。为了达到最佳的检测性能，对孵育液的种类进行了优化，分别选择了 10 mmol/L BB、PB、Running buffer 和 1×PBS 4 种孵育液进行测试，根据图 3D 中阴性出线程度，灵敏度以及在 NC 膜上层析效率，选择 Running buffer。

2.3　灵敏度分析

对最终优化的结果进行灵敏度和线性分析，分别用质量浓度为 0、0.1、0.5、1.0、2.0、5.0 ng/mL 的他达拉非样品进行预孵育，并以他达拉非质量浓度为横坐标(X, ng/mL)，以 T 线信号强度为纵坐作图(Y)，检测结果如图 4 所示。可以清楚地看到，当检测质量浓度为 0.5 ng/mL 时，阴阳存在区别，而当质量浓度在 5.0 ng/mL 时达到完全消线。使用 Image J 对试纸条检测线进行扫描并进行线性拟合，可得出在可见光下相关线性方程为 Y=–640.482X+3448.837，r^2 为 0.98797，其中检出限(limit of detection, LOD)≈3.3×σ/k，计算得出 LOD≈0.434 ng/mL。在紫外光下相关线性方程为 Y=–1053.899X+5380.438，r^2 为 0.98719，其中 LOD≈3.3×σ/k，计算得出 LOD≈0.891 ng/mL。因此可得该双模态免疫层析技术对他达拉非的视觉最低 LOD 在比色信号下达 0.5 ng/mL，在荧光信号下达 1 ng/mL。表明该方法具有良好的检测灵敏度和稳定性。



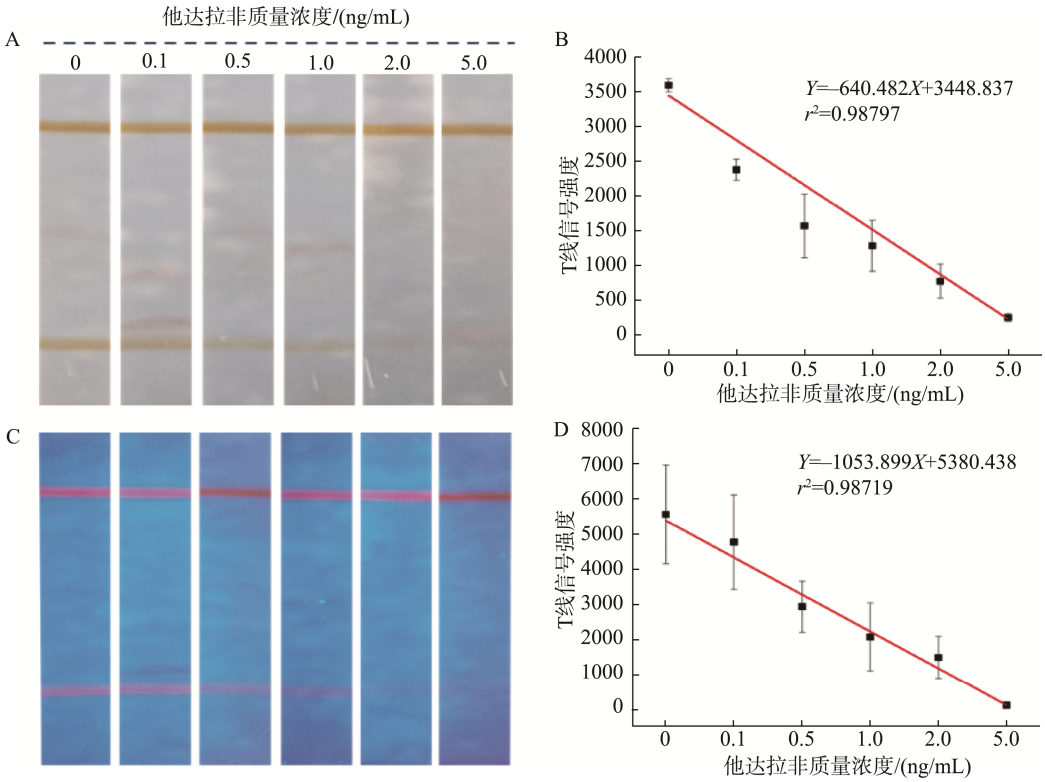
注：A、B 为抗体量优化结果，其中 A 是可见光，B 是荧光下结果；C、D 为封闭剂优化结果，其中 C 是可见光，D 是荧光下结果；E、F 为重悬优化结果，其中 E 是可见光，F 是荧光下结果；G、H 为孵育液优化结果，其中 G 是可见光，H 是荧光下结果。其中 0 代表阴性样本，1 代表阳性样本。

图 3　侧向层析免疫试纸优化结果

Fig.3　Optimization results of lateral flow immunoassay

2.4 特异性结果分析

为验证该方法的特异性是否良好，选择了不同种类选择性 5 型磷酸二酯酶(PDE5)，分别是西地那非、红地那非、伐地那非来进行检测，结果如图 5 所示，可以看到在相同上样量(500 pg/mL)下，所有非目标检测物均未消线，而含他达拉非可以达到完全消线。实验数据可以表明，该方法对他达拉非具有高度特异性，可有效区分他达拉非与其余 PDE5 物质。



注：图 A、B 分别代表他达拉非在可见光下试纸条检测结果以及线性图像，图 C、D 分别代表他达拉非在荧光下试纸条检测结果以及线性图像。

图 4 不同检测模式下他达拉非试纸条响应结果及其线性关系

Fig.4 Response results and linear relationship of tadalafil test strips under different detection modes

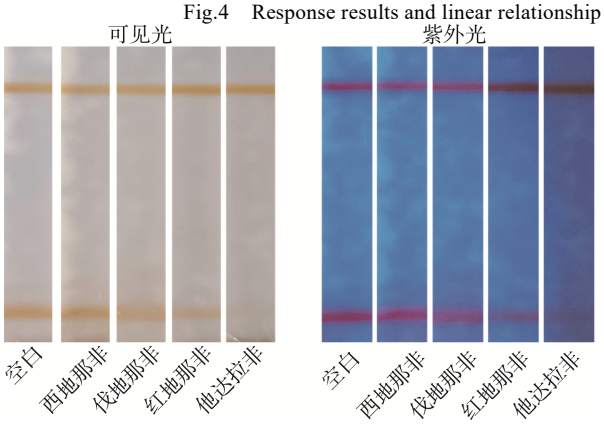
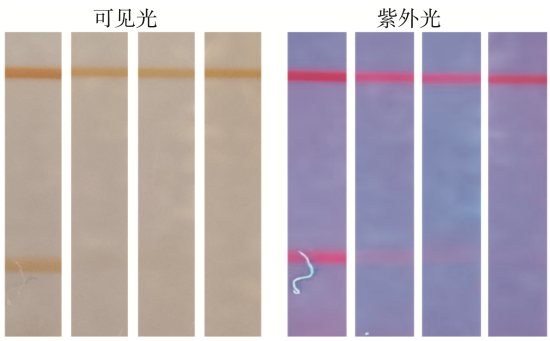


图 5 侧向层析免疫试纸的特异性验证结果

Fig.5 Specificity verification results of lateral flow immunoassay

2.5 实际样品加标检测结果

选择功能饮料作为实际样本进行加标检测。在 60 μL 的功能饮料中加入不同浓度的他达拉非标品(分别为 1、2、5 ng/mL)，与 4 μL 磁性量子点探针预孵育 10 min 后，磁性分离复溶于 Running buffer 中，上样后结果如图 6 所示。可看出本方法可以完全消除基质效应地干扰，灵敏的检测到功能饮料中的他达拉非。



注：两组图从左至右分别代表加入 0、1、2、5 ng/mL 的他达拉非标品。

图 6 功能饮料加标检测结果

Fig.6 Test results of functional beverage labeling

3　讨论与结论

本研究成功开发了一种基于磁性量子点的双模态侧向流免疫测定生物传感器, 用于功能饮料中他达拉非的高灵敏度和选择性检测。该传感器通过集成高性能磁性量子点纳米标签, 实现了在紫外光下呈现荧光信号、在可见光下呈现磁信号的双模态输出, 显著提升了检测的灵活性和准确性。研究结果表明, 该双模态 LFIA 生物传感器不仅能够在复杂基质中灵敏地检测他达拉非, 而且通过磁分离富集目标物有效消除了背景干扰, 实现了信号的二次放大, 使得视觉最低 LOD 在比色信号下达 0.5 ng/mL, 在荧光信号下达 1 ng/mL。这一灵敏度远超许多传统检测方法, 为功能食品中非法添加他达拉非的快速筛查和准确检测提供了有力工具。本研究通过构建基于磁性量子点的双模态侧向流免疫分析平台, 实现了对功能饮料中他达拉非的超高灵敏检测。其创新性主要体现在两个方面: (1)利用磁性富集技术实现了目标物的主动捕获与空间浓缩, 通过物理剥离背景干扰将 LOD 显著降低; (2)“荧光-磁信号”双模态输出机制提供了快速筛查与精准定量互补的检测策略。与现有方法相比, 该技术兼具仪器级灵敏度与快速检测法便捷性, 突破了传统免疫层析技术的灵敏度瓶颈。尽管存在抗体依赖性和复杂基质干扰等局限性, 但该平台为食品安全现场检测提供了变革性解决方案, 并具备拓展至其他非法添加物多重检测的潜力。

参考文献

[1] 刘家兴, 李丽美, 杨庆云, 等. 超高效液相色谱-四极杆线性离子阱串联质谱法测定他达拉非原料药中潜在基因毒性杂质的含量[J]. 中南药学, 2022, 20(6): 1426–1429.
LIU JX, LI LM, YANG QY, *et al*. Determination of genotoxic impurity in tadalafil raw materials by UPLC-q/LIT-MS [J]. Central South Pharmacy, 2022, 20(6): 1426–1429.

[2] 孙金菊, 苏建树, 李红云, 等. 他达拉非片在男性健康受试者的生物等效性[J]. 中国医院药学杂志, 2025, 45(17): 2006–2011.
SUN JJ, SU JY, LI HY, *et al*. Bioequivalence of tadalafil tablets in healthy male volunteers [J]. Chinese Journal of Hospital Pharmacy, 2025, 45(17): 2006–2011.

[3] 李艋, 廉洁. 非法添加 PDE-5i 的保健品检测技术研究进展与挑战[J]. 中国食品添加剂, 2025, 36(5): 173–184.
LI M, LIAN J. Research progress and challenges in the detection technologies for illegal addition of PDE-5 inhibitors in health products research progress and challenges in the detection technologies for illegal addition of PDE-5 inhibitors in health products [J]. China Food Additives, 2025, 36(5): 173–184.

[4] MINH DTC, NHU NTQ, LINH NTT, *et al*. Comparison of excitation wavelengths in surface-enhanced Raman spectroscopy coupled to thin-layer chromatography for tadalafil and vardenafil detection as adulterants in herbal healthcare products [J]. Analytical Methods, 2025, 17(14): 2867–2877.

[5] ICHIKAWA KY, ISHIZAWA F, NISHIYAMA R, *et al*. Development of a detector tube for rapid detection of tadalafil in adulterated dietary supplements [J]. The Journal of Sexual Medicine, 2022, 19(Supplement_2): S155–S155.

[6] 司星宇, 陈致, 周千渝, 等. 保健品中西地那非和他达拉非的拉曼光谱同时检测方法研究[J]. 光散射学报, 2022, 34(1): 30–35.
SI XY, CHEN Z, ZHOU QY, *et al*. Simulataneous detection of sildenafil and tadalafil in healthcare products by Raman spectroscopy [J]. The Journal of Light Scattering, 2022, 34(1): 30–35.

[7] ICHIKAWA KAJI, ISHIZAWA F, NISHIYAM A, *et al*. Development of a detector tube for screening tadalafil and its analogues in adulterated sexual enhancement products [J]. Drug Testing and Analysis, 2023, 15(3): 345–360.

[8] YANG JY, XIE MC, TAN XC, *et al*. Improved molecular softness of tadalafil hapten enhancing antibody performance in immunoassay: Evidence from computational chemistry [J]. Journal of Food Science, 2022, 87(3): 1342–1354.

[9] YANG C, DONG PZ, JIANG ZN, *et al*. Amino-functionalized Fe_3O_4-based covalent organic framework for efficient magnetic solid-phase extraction of three illegally added phosphodiesterase-5 inhibitors in functional food [J]. Food Bioscience, 2025, 65: 106070.

[10] YANG F, WANG C, YU H, *et al*. Establishment of the thin-layer chromatography-surface-enhanced Raman spectroscopy and chemometrics method for simultaneous identification of eleven illegal drugs in anti-rheumatic health food [J]. Food Bioscience, 2022, 49: 101842.

[11] ALI AMBH, ABDEL-AAL FAM, RAGEH AH, *et al*. Cytochrome P450 3A4-mediated pharmacokinetic interaction study between tadalafil and canagliflozin using high-performance thin-layer chromatography [J]. Journal of Separation Science, 2022, 45(23): 4187–4197.

[12] CASYILLO JJ, RINDZEVICIUS T, ROZO CE, *et al*. Surface-enhanced raman spectroscopy coupled with dft for sensitive detection of tadalafil in complex matrices[J]. Vibrational Spectroscopy, 2025: 103847. DOI:10.1016/J.VIBSPEC.2025.103847

[13] AHMED AY, ELBILAIHY MS, ATTIMARAD M, *et al*. Novel experimental design approach for development of high-performance liquid chromatography method with fluorescence detection for amlodipine and telmisartan in their dosage form [J]. Journal of Chemical Research, 2025, 49(2): 17475198251322828.

[14] ABU-DAYYIH W, RASRAS AA, HAILAT M, *et al*. Determination of five phosphodiesterase-5 inhibitors in multiple honey-based consumer products by chromatographic technique in rat plasma [J]. Processes, 2023, 11(10): 3019.

[15] LEE JH, MIN AY, PARK OR, *et al*. Detection of 94 compounds related to sexual enhancement including sildenafil, tadalafil, vardenafil and their analogues in various formulations of dietary supplements and food samples using HPLC and LC-MS/MS [J]. Food Additives & Contaminants: Part A, 2021, 38(5): 769–781.

[16] 张飞, 王远, 张金磊, 等. 超高效液相色谱-串联质谱法同时测定禽产品和水产品中酰胺醇类药物残留[J]. 食品安全质量检测学报, 2025, 16(19): 61–68.
ZHANG F, WANG Y, ZHANG JL, *et al*. Simultaneous determination of amide alcohol drug residues in poultry and aquatic products by ultra

performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Journal of Food Safety & Quality, 2025, 16(19): 61–68.

[17] 舒展, 王琤帅, 应斌斌, 等. 高效液相色谱-高分辨四极杆-飞行时间-质谱法测定中成药中非法添加物二乙氨基前他达拉非[J]. 中国药业, 2023, 32(15): 67–71.
SHU Z, WANG CS, YING BB, *et al*. Determination of diethylaminopretadalafil illegally added in chinese traditional patent medicines by HPLC-Q-TOF-MS [J]. China Pharmaceuticals, 2023, 32(15): 67–71.

[18] 姜鹰雁, 国璐路, 袁倩倩, 等. GC-ECD 法测定他达拉非中间体中氯乙酸甲酯及二氯乙酸甲酯含量[J]. 食品与药品, 2025, 27(4): 346–349.
JIANG YY, GUO LL, YUAN QQ, *et al*. Determination of methyl chloroacetate and methyl dichloroacetate in tadalafil intermediate by GC-ECD [J]. Food and Drug, 2025, 27(4): 346–349.

[19] TOTUR PD, SEYHAN BS. Dispersive micro-solid phase extraction of eight organochlorine pesticides in tea and fruit juice samples using an ionic liquid-metal organic framework and their determination by gas chromatography-electron capture detector [J]. Journal of Liquid Chromatography & Related Technologies, 2025, 48 (16-20): 612–622.

[20] AIYING S, RONG LIU, XINGHE HE, *et al*. Sensitive determination of amphetamine-type stimulants in human hair by electro-enhanced solid-phase microextraction coupled to gas chromatography with nitrogen-phosphorus detector [J]. Chinese Journal of Analytical Chemistry, 2025, 53(4): 100525.

[21] AURYA AK, TANWAR AS, MISHRA DM, *et al*. Structural characterization and quantification of isomeric bioactive flavonoid C-glycosides utilizing high-performance liquid chromatography coupled with diode array detection and mass spectrometry [J]. Analytical Methods, 2025. https://doi.org/10.1039/D5AY00398A

[22] PAN H, ZHAO G, TAN Y, *et al*. Liquid chromatography coupled to high-resolution mass spectrometry for high-throughput pesticide residue detection: Methodological advances and insights for herbal medicine analysis [J]. Critical Reviews in Analytical Chemistry, 2025, 48(16-20): 612–622.

[23] MA J, LI X, LUO S, *et al*. Quantification of acrylamide in infant formula via a modified QuEChERS protocol coupled with high-performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Food Chemistry: X, 2025, 31 103026-103026

[24] 徐凤华, 黄明. 液相色谱-质谱联用法快速测定人血浆中他达拉非浓度[J]. 中国医药科学, 2023, 13(11): 78–81.
XU FH, HUANG M, *et al*. Rapid determination of tadalafil concentration in human plasma by liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. China Medicine and Pharmacy, 2023, 13(11): 78–81.

[25] 王素娟, 李至宏, 赖昌威, 等. 药品中壮阳类成分化学分析方法研究进展[J]. 广东化工, 2024, 51(22): 158–160, 151.
WANG SJ, LI ZH, LAI CW, *et al*. Recent advancements in chemical analysis of aphrodisiac components in pharmaceutical preparations [J]. Guangdong Chemical Industry Guangdong Chemical Industry, 2024, 51(22): 158–160, 151.

[26] WEI T, ZHANG Y, HUANG J, *et al*. Rapid detection of multiple sildenafil and tadalafil adulterants in dietary supplements by dual-labeled probe time-resolved fluorescence immunochromatography assay [J]. Food Bioscience, 2024, 59: 103905.

[27] SURYYOPRABOWO S, LIU L, KUANG H, *et al*. Fluorescence based immunochromatographic sensor for rapid and sensitive detection of tadalafil and comparison with a gold lateral flow immunoassay [J]. Food Chemistry, 2021, 342: 128255.

[28] 邹婷婷, 杨金易, 徐振林, 等. 保健酒与口服液中他达拉非类药物微孔侧流免疫层析检测方法研究[J]. 分析化学, 2019, 47(8): 1249–1257.
ZOU TT, YANG JY, XU ZL, *et al*. Research on the detection method of tadalafil drugs in health wine and oral liquid by microporous lateral flow immunochromatography [J] Analytical Chemistry, 2019, 47(8): 1249–1257.

[29] 欧爱芬, 罗奕铭, 赵肃清. 联检速测卡快速检测保健食品中他达拉非与西地那非[J]. 食品与发酵工业, 2021, 47(23): 258–264.
OU AIF, LUO YM, ZHAO SQ. Research of synchronizating rapid determination of tadalafil and sildenafil in health caring foods [J]. Food and Fermentation Industries, 2021, 47(23): 258–264.

[30] WANG C, CHENG X, LIU L, *et al*. Ultrasensitive and simultaneous detection of two specific SARS-CoV-2 antigens in human specimens using direct/enrichment dual-mode fluorescence lateral flow immunoassay [J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2021, 13(34): 40342–40353.

(责任编辑: 蔡世佳 韩晓红)