

矿物元素和稳定同位素在肉类食品产地溯源中的应用研究进展

齐 婧, 李莹莹, 姜 锐, 刘如岩, 张 晨, 汪 澄, 马燕红, 郭文萍, 王守伟*
(中国肉类食品综合研究中心, 北京 100068)

摘 要: 稳定同位素和矿物元素指纹分析是肉类食品产地溯源最为可靠的技术手段之一。本文按照牛肉、羊肉、猪肉和禽肉四大肉类食品综述近年来国内外基于稳定同位素和矿物元素指纹分析的肉类食品产地溯源技术研究进展, 整理和归纳已有研究路线和成果, 旨在为我国肉类食品产地溯源研究和应用提供参考。

关键词: 矿物元素; 稳定同位素; 肉类食品; 产地溯源

Advances in the Application of Mineral Elements and Stable Isotopes in Geographical Origin Traceability of Meat Products

QI Jing, LI Yingying, JIANG Rui, LIU Ruyan, ZHANG Chen, WANG Cheng, MA Yanhong, GUO Wenping, WANG Shouwei*
(China Meat Research Center, Beijing 100068, China)

Abstract: Stable isotope and mineral element fingerprint analysis is considered as one of the most reliable methods of tracing the geographical origin of meat products. In this paper, we review the recent progress in the development of technologies based on stable isotope and mineral element analysis for tracing the geographical origin of meat (beef, mutton and pork) and poultry products. The existing research routes and outcomes are summarized and outlined. We hope that this review can provide a basis for researching and applying the geographical origin traceability of meat products in our country.

Keywords: mineral elements; stable isotopes; meat products; geographical origin traceability

DOI:10.7506/rlyj1001-8123-20190826-199

中图分类号: TS207.7

文献标志码: A

文章编号: 1001-8123 (2019) 11-0067-06

引文格式:

齐婧, 李莹莹, 姜锐, 等. 矿物元素和稳定同位素在肉类食品产地溯源中的应用研究进展[J]. 肉类研究, 2019, 33(11): 67-72. DOI:10.7506/rlyj1001-8123-20190826-199. <http://www.rlyj.net.cn>

QI Jing, LI Yingying, JIANG Rui, et al. Advances in the application of mineral elements and stable isotopes in geographical origin traceability of meat products[J]. Meat Research, 2019, 33(11): 67-72. DOI:10.7506/rlyj1001-8123-20190826-199. <http://www.rlyj.net.cn>

近年来, 随着我国经济发展及消费者膳食结构的改变, 食品需求逐步向中高端发展。功能型农产品、特色地域标志农产品等优质农产品开始受到消费者的青睐。特色地域标志农产品, 如五常大米、阳澄湖大闸蟹等, 由于供给不平衡, 产业附加值高, 在市场上出现许多假冒伪劣产品, 损害了消费者和企业的利益。产地溯源技术的开发为保护特色地域标志农产品提供了监管手段, 为保障食品安全追溯提供了技术支撑。目前报道的产地溯源技术主要有稳定同位素溯源^[1]、矿物元素指纹分析^[2]、近红外光谱^[3]、核磁^[4]、有机成分指纹分析^[5]和DNA分

析^[6]等技术^[7-8]。这些方法都是根据动植物生长发育的土壤、环境的不同而形成的特有指标进行产地识别。

稳定同位素和矿物元素分析被认为是食品产地溯源最为可靠的技术手段之一。稳定同位素和矿物元素溯源技术的基本原理是: 在自然界中, 生物体不断与外界环境进行物质交换, 其体内的同位素及矿物元素组成受气候、环境、生物代谢类型等因素的影响而发生自然分馏效应, 从而使不同种类及不同地域来源的农产品中元素含量及同位素自然丰度产生差异, 这种差异携带有环境因子信息, 可反映生物体所处的环境条件。同位素及矿

收稿日期: 2019-08-26

基金项目: “十三五”国家重点研发计划重点专项(2016YFD0401203); 北京市博士后科研活动经费资助项目(2017-zz-138)

第一作者简介: 齐婧(1990—)(ORCID: 0000-0001-9484-0729), 女, 硕士, 研究方向为食品科学。E-mail: qijing90@163.com

*通信作者简介: 王守伟(1961—)(ORCID: 0000-0002-6390-4803), 男, 教授级高级工程师, 硕士, 研究方向为食品科学。

E-mail: cmrcsw@126.com

物元素组成是生物体的一种“自然指纹”，能够反映食品原产地信息，且不随化学添加剂的改变而改变，因此可以为食品溯源提供一种科学、独立、不可改变且随整个食品链流动的身份鉴定信息。稳定同位素和矿物元素溯源技术的分析方法如下：电感耦合等离子体质谱和电感耦合等离子体发射光谱常用于矿物元素分析；同位素比质谱仪常用于稳定同位素分析。稳定同位素和矿物元素分析技术通常得到的是多元数据，可通过多变量分析或化学计量学对数据进行解析，从而得到对产地识别有效的元素，最终构建判别模型来进行产地溯源。产地溯源中常用的化学计量学方法详见表1。

表1 产地溯源中的化学计量学方法举例
Table 1 Application of chemometrics in geographical origin traceability

分析方法	适用条件
主成分分析 ^[9]	1
聚类分析 ^[10]	1
线性判别分析 ^[11]	2
簇类独立软模式法 ^[12]	2
最邻近规则算法 ^[12]	3
人工神经网络 ^[13]	3

注：1. 无监督模式分类：对变量的数据进行探索性解析、分类；2. 有监督模式分类的参数方法：对统计分布进行假设，例如假设研究的问题服从某个分布，这个分布中有一些确定的参数，然后用样本的统计量来估计总体参数，样品数较少时也很适用；3. 有监督模式分类的无参数方法：不对统计分布进行假设，无参数方法由于不存在模型的错误假定问题，当训练数据量趋于无穷大的时候，非参数模型可以逼近任意复杂的真实模型，可获得更多的统计信息。

稳定同位素分析技术和矿物元素分析技术经常联用，广泛应用于食品产地溯源中^[14]，目前国内该类技术主要应用在植物源性农产品中，如水果、蔬菜、谷物、茶叶、葡萄酒等^[11-13,15-16]。肉类食品也是人类饮食的重要组成部分。近年来，我国人均肉类消费消费量呈加速增长趋势^[17]。随着收入水平的提高，中高端肉类食品消费比重随之上升，进口肉类食品的消费比重也有所上升。因此，中国肉类食品产地溯源技术的发展成为必然趋势。但由于存在基质复杂、干扰因素多等困难，稳定同位素和矿物元素技术在肉类食品产地溯源中的应用相对较少。10年前我国应用稳定同位素和矿物元素分析技术对肉类食品进行产地溯源的研究刚起步，近10年相关技术有了深入的发展。稳定同位素和矿物元素分析技术在上应用上经常相辅相成，本文按照肉类食品的种类，包括牛肉、羊肉、猪肉和禽肉，较全面地综述了近年来国内外稳定同位素和矿物元素分析技术在肉类食品产地溯源中的应用进展，还分析了现阶段存在的问题，为今后的发展提出相关建议和展望。

1 牛肉的产地溯源

相比其他动物，国内外应用矿物元素和稳定同位素分析技术研究牛肉的产地溯源和真实性鉴别相对较早，主要的同位素指标包括C、H、O、N、S、Sr等。

表2 牛肉产地溯源中几种常用的同位素及其溯源原理
Table 2 Several common isotopes in geographical origin traceability and underlying principles

同位素种类	溯源原理
C	主要与饮食中C ₃ 植物和C ₄ 植物的比例有关 ^[18]
H、O	主要受纬度效应、陆地效应、季节效应及海拔效应影响 ^[19-20]
N	主要受食物源和新陈代谢两方面因素影响 ^[19,21]
S	主要受地质环境、降雨因素影响 ^[19,21]
Sr	主要受地质条件影响 ^[22]

由表2可知：C同位素组成与动物饲料种类密切相关，能够反映饮食中C₃植物和C₄植物的比例，进而鉴别饲养方式为有机喂养还是传统喂养；动物组织中的H、O同位素比值主要受饮用水影响，与当地降水和地下水中H、O同位素比值相关，也与地理纬度相关；N、S同位素比值与土壤和气候相关；Sr同位素比值主要受地质条件影响。

动物体内矿物元素含量主要受天然沉积和人为添加的影响，也能体现不同地域来源的独特信息。早期的文献报道初步探讨了应用矿物元素和稳定同位素技术研究牛肉产地溯源和真实性鉴别的可行性及机理^[23]。Boner等^[19]研究表明，通过H、O同位素能溯源牛肉原产国，通过N、S同位素能区分来自本地不同农场的牛，通过C同位素能区分喂养方式是有机喂养还是传统喂养。但是季节、牛的品种等因素会影响判别结果。Schmidt等^[21]证明C、N、S稳定同位素技术是鉴别牛肉产地和喂养方式的有效手段，其研究表明，美国、巴西和北欧的牛肉中C同位素不同主要与饮食中C₃植物和C₄植物的比例有关。相较于传统方式喂养的牛，有机方式喂养的牛肉中¹⁵N和¹³C含量偏低，而³⁴S含量偏高，但也需考虑季节因素^[24]。此外，Franke等^[20,22,25-26]分别研究O和Sr稳定同位素、矿物元素、水、蛋白质、碳水化合物等有机组成以及这些混合因素在牛肉干产地鉴别中的应用，结果表明，As、B、Ba、Ca、Cd、Cu、Dy、Er、Fe、Li、Mn、Pd、Rb、Se、Sr、Te、Tl、U和V对牛肉干的产地鉴别率为79%，但是将¹⁸O和矿物元素进行交叉校正时，并没有有效降低产地判别错误率。¹⁸O受地下水同位素组成、气候及地理纬度差异的影响，是一种很难掺假的判别标准，但是牛肉中¹⁸O含量会受加工、贮存条件或干燥过程的影响，地区间的差异可能被掩盖。在动物源性食品中，Sr同位素的鉴别作用较低。为了达到更高的判别率，还需要综合研究多种鉴别因子，多种稳定同位素和矿物元素组合是一种优势互补的产地识别指标。Heaton等^[27]通过测定牛肉中稳定同位素比值和矿物元素含量，发现用¹³C、Sr、Fe、²H、Rb和Se能得到牛肉样品的最大判别率。

近年来，研究人员多利用稳定同位素和矿物元素对各国牛肉产地溯源进行应用研究。Guo Boli^[28]、



Nakashita^[29]等分别证明稳定同位素在中国和日本鉴别牛肉来源的可能性。Horacek等^[30]用C、H、N稳定同位素将韩国的牛肉与其他出口国牛肉进行鉴别,并检验了方法的有效性和局限性。Osorio等^[31-32]用C、H、N、S稳定同位素对牛的产地和喂养方式进行鉴别,证明有可能在使用4个同位素比率的交叉验证中100%正确识别爱尔兰牧草喂养的牛。

郭波莉^[10]较早研究了中国牛肉产地溯源技术,结果表明:来自我国不同地域牛组织中的稳定性C、N同位素组成有极显著差异;受组织分馏作用的影响,动物不同组织中的同位素比值存在较大差异;筛选出Se、Sr、Fe、Ni和Zn作为牛肉产地判别的有效指标。而后研究人员进行了更深入的研究。Zhao Yan等^[9]在已有研究基础上,提高了分类正确率,该研究表明,同位素(¹³C和¹⁵N)与多元素分析相结合能确定中国牛肉的产地来源,且判别率可达100%。蔡先峰^[33]、刘晓玲^[34]等先后将郭波莉^[10]的产地溯源技术应用到不同牛组织上,包括牛的组织器官和牛尾毛,实现了牛的产地溯源。项洋等^[35]证明,利用稳定同位素能对其他种类的牛(牦牛)进行有效区分。目前,我国应用稳定同位素和矿物元素分析技术对牛的产地溯源进行的研究相较于猪、羊、禽更为深入和全面。

2 羊肉的产地溯源

世界上有一些著名的产羊地区与国家,如南非、英国、法国、荷兰、德国等。在欧盟国家,马恩岛曼克斯罗孚坦羊肉(Isle of Man Manx Loaghtan lamb)、奥克尼羊肉(Orkney lamb)等产品具有很强的区域特性,是受到指定原产地保护的。中国有内蒙古、宁夏、新疆、甘肃、青海等几大羊肉主产区,饲养的地域特色羊种也受到消费者追捧。因此,羊肉产地溯源技术的开发十分必要。相比猪肉和鸡肉,羊肉中稳定同位素含量受人干扰少,更能与产地地理气候、饮食等因素联系起来。目前,国外的羊肉产地溯源研究多基于稳定同位素技术。Camin等^[36]通过研究澳大利亚、法国、德国、希腊、爱尔兰、意大利及英国等地脱脂羊肉中的稳定同位素比率发现,H同位素能够反映产区降水和地下水情况,C、N同位素与饲养方式和气候相关,S同位素与地理位置相关,利用稳定同位素对欧洲地区羊肉原产地进行判别的准确率超过78%。Erasmus等^[37]通过¹³C/¹²C和¹⁵N/¹⁴N对南非杜泊羔羊的真实产地进行判别,结果表明,¹³C/¹²C能反映饲料差异,利用¹³C/¹²C和¹⁵N/¹⁴N能区分来自7个饲养方式不同农场的羊,与产地有关的饲养制度是区分南非羔羊产地的一个重要因素。为了增加地理分辨率,扩展和加强基础数据,Erasmus等^[38]于2018年对更大样本量进行分

析,考虑到来自农场、年龄、饮食等方面的更多因素,应用判别分析得到,95%和90%的观测值被正确分类,分别用于估计和验证。可见,同位素对羔羊肉产地认证稳健分类模型的建立需要建立在大数据基础上。也有研究人员将同位素与其他溯源技术联用,实现羊肉产地溯源。Sacco等^[39]研究能够表征羊肉产地信息的参数,测定阿普利亚羊肉的水分、灰分、脂肪和蛋白质含量、稳定同位素比值(¹³C/¹²C和¹⁵N/¹⁴N)、常量元素(钾、钙、钠、镁)和微量元素(锌、铜、铁、铬)含量以及高分辨魔角旋转质子核磁共振波谱分析数据,同位素比和核磁共振数据集的预测能力为96%,结果表明,稳定同位素分析和核磁共振作为羔羊肉产地溯源的工具具有较大潜力。Mekki等^[40]将稳定同位素技术和有机指纹技术(主要是脂肪酸含量)联用,进行突尼斯本地羊肉鉴别,结果表明,稳定同位素在鉴别阿姆杜恩地区生产的羔羊方面似乎是可靠的,如在分类模型中加入脂肪酸含量能略微改善对农业系统的评估能力,平均准确率能提高2%~94%。

国外应用矿物元素指纹技术溯源羊肉产地的研究较少。动物组织中矿物元素的组成受天然沉积物和动物饲料中元素补充物的影响,会导致产地溯源的不确定性,这是限制矿物元素组成在动物产品产地溯源中应用的主要原因。与家禽和猪相比,羊的情况较为简单。由于羊群以散养为主,以当地的牧草为食,而饲料中很少使用补充剂和进口饲料。因此,羊组织中的微量元素与饲养环境关系更为密切,从而可以更好地确定羊肉的产地。中国是较早应用同位素和矿物元素技术研究羊肉原产地溯源的国家^[41-43]。Sun Shumin等^[42-43]对中国羊肉产地溯源进行了相对系统的研究,他们对从中国五大羊肉主产区(内蒙古锡林郭勒盟、阿拉善盟、呼伦贝尔市牧区及山东菏泽、重庆农区)采集的羊肉、羊颈毛、饲料和饮用水样品的稳定同位素比值及25种矿物元素含量进行测定,结合方差分析、主成分分析等数理统计手段,系统研究不同地域来源羊组织中稳定同位素比值和矿物元素含量差异与地域的关系,为中国羊肉产地溯源技术体系的建立和完善提供了技术依据和理论支撑。

3 猪肉的产地溯源

目前,将稳定同位素技术和矿物元素指纹技术应用到猪肉产地溯源的研究较少。这主要是由于与牛、羊不同,猪的饲养方式存在差异性和复杂性。猪的喂养周期较短,主要是饲料喂养和圈养,而且存在异地调种、异地育肥的问题,可能造成地域信息的干扰。目前市场上推广许多地域特色猪肉,如北京黑六、香猪、湘西黑猪等,这些地域特色猪肉的产地溯源是猪肉产业发展和广大

生产者普遍关心的问题。López-Bascón^[44]、Zhao Yan^[45]等研究喂养方式与猪体内矿物元素与稳定同位素之间的相关性。这些研究可以为猪肉的产地溯源提供一定依据。在猪肉产地溯源方面, Kim等^[46]应用稳定同位素技术对335个韩国猪肉样品和264个来自美洲和欧洲13个国家猪肉样品的C、N同位素比率进行测定, 由于饲养方式不同, 不同产地猪肉的C、N同位素比率不同, 因此可以将韩国猪肉与其他国家猪肉区分开; 之后他们又通过猪肉中多种矿物元素含量将韩国猪肉与美国、德国、澳大利亚、荷兰、比利时进口猪肉进行区分, 判别率达97%^[47]; 采用矿物元素及C、N同位素比率对韩国和其他国家的猪肉进行判别, 判别率达100%^[48]。由此可见, 将多种判别因子结合可以大大提高猪肉产地判别的准确率。国内对猪肉的产地溯源研究较少。通过学习和借鉴, 我国在利用稳定同位素技术和矿物元素指纹技术进行猪肉产地溯源方面还有很多工作可以开展。例如, 地域特色猪肉溯源技术的开发、研究肉猪调种、饲养过程及环境因素对猪肉中矿物元素含量和稳定同位素比值的影响、构建系统的溯源数据库等。

4 禽肉的产地溯源

目前, 禽肉在中国动物源性食品消费中的占比逐渐增大。但由于家禽疫病的存在, 人们的饮食安全受到严重威胁。在中国, 农产品追溯能力仍滞后于需求。目前市售鸡肉大多不分品种、等级、产地等, 产品附加值低, 难以管理, 对黑水凤尾鸡、和田黑鸡、湖北景阳鸡等优良地域标志品种鸡肉产生冲击。因此, 禽肉产地溯源技术的开发能为保障食品安全提供技术支撑, 也可以鉴别特色地域鸡品种的真伪。

Franke等^[26]对来自瑞士、法国、德国、匈牙利、巴西和泰国的25个鸡胸肉样本中的72种元素进行分析, 结果表明, 不同鸡胸肉中砷、钠、铷、铯含量有显著差异。Franke等^[22]研究⁸⁷Sr/⁸⁶Sr和¹⁸O在鸡肉产地溯源中的应用, 结果表明, ¹⁸O易受鸡肉贮藏条件的影响, 矿物元素和O同位素相结合并不能提高鸡肉产地判别正确率。Zhao Yan^[49]、Rees^[50]等深入研究稳定同位素和矿物元素统计数据在鸡肉产地溯源中的应用。Zhao Yan等^[49]结合稳定同位素和矿物元素对来自中国4个省的鸡肉进行溯源, 从12种元素中筛选出K、Zn、Rb和¹³C、¹⁵N组成判别模型, 判别率达100%。Rees等^[50]选择¹³C、¹⁵N、²H、Mg、Tl、Rb、Mo等18种同位素和矿物元素对主要鸡肉产区进行溯源, 综合判别率为88.3%。在我国, 孙丰梅等^[51]较早利用稳定同位素C、N、S、H、O对来自北京、山东、湖南、广东4个省市、9个不同地区的鸡肉进行研究, 多元方差分析结果表明, ¹³C、¹⁵N、³⁴S、²H 4种稳定

同位素比值在不同地区的鸡肉中均有显著差异, 正确判别率达100%。白婷等^[52]利用15种微量元素指纹图谱区分国家地理标志产品黑水凤尾鸡与市售白羽肉鸡, 区分率100%, 初步推断Mn、Sr、Mo、Cs、Ag 5种元素具有应用于凤尾鸡溯源的潜力。综上可知, 将稳定同位素技术和矿物元素指纹技术应用在禽类产地溯源中, 可以得到相对较高的判别率。

5 结 语

国内外应用矿物元素和稳定同位素分析技术开展的肉类食品产地溯源研究已取得了阶段性成果。但是相较国外, 我国相关技术起步较晚, 缺少基础性和前瞻性研究, 还处于研发和初级应用阶段。

基础研究方面, 国内外研究人员已经探索出多种稳定同位素和矿物元素用于肉类食品产地溯源的基本原理。动物饲养和生产条件的差异以及动物年龄、品种等因素对矿物元素和稳定同位素的影响导致动物体内的稳定同位素和矿物元素指标有所差异。因此, 在今后的研究中可以更深入研究多种复杂因素存在情况下, 稳定同位素和矿物元素用于动物源性食品产地溯源的判别模型; 根据各种技术手段的适用性, 辅助其他产地溯源手段, 提高产地溯源的判别率; 矿物元素和稳定同位素技术结合的多因素分析结果应采用多种数学方法进行统计分析, 以达到准确判别的效果。

技术应用方面, 目前欧盟、日本、新西兰等发达国家和地区已经构建了葡萄酒、橄榄油、牛乳等产品信息的基础数据库, 并将溯源技术应用于市场监管、国际贸易和消费者权益保护等领域。而肉类食品还没有官方的稳定同位素和矿物元素产地溯源方法。

我国下一步的研究重点应是成果的转化和实际应用。通过获取更多的数据集, 并了解多地的地理条件等信息, 将来不仅能够明确将样品准确分配到所属地理区域, 还能根据全球气候地理和地质地图对不同地区动物源性食品中的稳定同位素和矿物元素含量进行预测, 进而构建系统的溯源数据库。

参考文献:

- [1] CAMIN F, BONER M, BONTEMPO L, et al. Stable isotope techniques for verifying the declared geographical origin of food in legal cases[J]. Trends in Food Science and Technology, 2017, 61(3): 176-187. DOI:10.1016/j.tifs.2016.12.007.
- [2] 刘美玲, 高珂玲, 闫鑫磊, 等. 矿物质指纹技术在动物性食品产地溯源中的应用[J]. 中国食物与营养, 2017, 23(5): 9-13. DOI:10.3969/j.issn.1006-9577.2017.05.002.
- [3] 宋雪健, 钱丽丽, 张东杰, 等. 近红外光谱技术在食品溯源中的应用进展[J]. 食品研究与开发, 2017, 38(12): 197-200. DOI:10.3969/j.issn.1005-6521.2017.12.043.



- [4] SHINTU L, CALDARELLI S, FRANKE B M. Pre-selection of potential molecular markers for the geographic origin of dried beef by HR-MAS NMR spectroscopy[J]. *Meat Science*, 2007, 76(4): 700-707. DOI:10.1016/j.meatsci.2007.02.010.
- [5] CHEN Juluan, YAN Sijie, FENG Zuoshan, et al. Changes in the volatile compounds and chemical and physical properties of Yali pear (*Pyrus bertschneideri* Reld) during storage[J]. *Food Chemistry*, 2006, 97(2): 248-255. DOI:10.1021/jf061089g.
- [6] 宋君, 雷绍荣, 郭灵安, 等. DNA指纹技术在食品掺假、产地溯源检验种的应用[J]. *安徽农业科学*, 2012, 40(6): 3226-3228; 3233. DOI:10.3969/j.issn.0517-6611.2012.06.006.
- [7] LUYKX D M A M, VAN RUTH S M. An overview of analytical methods for determining the geographical origin of food products[J]. *Food Chemistry*, 2008, 107(2): 897-911. DOI:10.1016/j.foodchem.2007.09.038.
- [8] MONAHAN F J, SCHMIDT O, MOLONEY A P. Meat provenance: authentication of geographical origin and dietary background of meat[J]. *Meat Science*, 2018, 144: 2-14. DOI:10.1016/j.meatsci.2018.05.008.
- [9] ZHAO Yan, ZHANG Bin, CHEN Gang, et al. Tracing the geographic origin of beef in China on the basis of the combination of stable isotopes and multielement analysis[J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2013, 61(29): 7055-7060. DOI:10.1021/jf400947y.
- [10] 郭波莉. 牛肉产地同位素与矿物元素指纹溯源技术研究[D]. 北京: 中国农业科学院, 2007: 84-88. DOI:10.7666/d.Y1057306.
- [11] 邵圣枝, 陈元林, 张永志, 等. 稻米中同位素与多元素特征及其产地溯源PCA-LDA判别[J]. *核农学报*, 2015, 29(1): 119-127. DOI:10.11869/j.issn.100-8551.2015.01.0119.
- [12] 余僧. 油菜蜜产地溯源技术研究[D]. 福州: 福建农林大学, 2018: 39-46.
- [13] 林昕, 沙岭杰, 兰珊珊, 等. 在普洱茶产地溯源中化学计量学工具的应用研究[J]. *食品安全质量检测学报*, 2015, 6(9): 3646-3653.
- [14] DRIVELOS S A, GEORGIOU C A. Multi-element and multi-isotope-ratio analysis to determine the geographical origin of foods in the European Union[J]. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 2012, 40: 38-51. DOI:10.1016/j.trac.2012.08.003.
- [15] 胡桂仙, 邵圣枝, 张永志, 等. 杨梅中稳定同位素和多元素特征在其产地溯源中的应用[J]. *核农学报*, 2017, 31(12): 2450-2459. DOI:10.11869/j.issn.100-8551.2017.12.2450.
- [16] 张昂, 高捷, 刘亚新, 等. 基于矿质元素指纹分析的原产地葡萄酒判别研究[J]. *酿酒科技*, 2017(11): 38-43. DOI:10.13746/j.njkj.2017189.
- [17] 崔姹, 王明利. 中国肉类消费发展分析及未来展望[J]. *农业展望*, 2016(10): 74-80. DOI:10.3969/j.issn.1673-3908.2016.10.020.
- [18] BAHAR B, MONAHAN F J, MOLONEY A P, et al. Alteration of the carbon and nitrogen stable isotope composition of beef by substitution of grass silage with maize silage[J]. *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, 2005, 19(14): 1937-1942. DOI:10.1002/rcm.2007.
- [19] BONER M, FÖRSTEL H. Stable isotope variation as a tool to trace the authenticity of beef[J]. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 2004, 378(2): 301-310. DOI:10.1007/s00216-003-2347-6.
- [20] FRANKE B M, HADORN R, BOSSET J O, et al. Is authentication of the geographic origin of poultry meat and dried beef improved by combining multiple trace element and oxygen isotope analysis?[J]. *Meat Science*, 2008, 80(3): 944-947. DOI:10.1016/j.meatsci.2008.03.018.
- [21] SCHMIDT O, QUILTER J M, BAHAR B, et al. Inferring the origin and dietary history of beef from C, N and S stable isotope ratio analysis[J]. *Food Chemistry*, 2005, 91(3): 545-549. DOI:10.1016/j.foodchem.2004.08.036.
- [22] FRANKE B M, KOSLITZ S, MICAUX F, et al. Tracing the geographic origin of poultry meat and dried beef with oxygen and strontium isotope ratios[J]. *European Food Research and Technology*, 2008, 226(4): 761-769. DOI:10.1007/s00217-007-0588-x.
- [23] 孙淑敏, 郭波莉, 魏益民, 等. 动物源性食品产地溯源技术研究进展[J]. *食品科学*, 2010, 31(3): 288-292. DOI:10.7506/spkx1002-6300-201003066.
- [24] BAHAR B, SCHMIDT O, MOLONEY A P, et al. Seasonal variation in the C, N and S stable isotope composition of retail organic and conventional Irish beef[J]. *Food Chemistry*, 2008, 106(3): 1299-1305. DOI:10.1016/j.foodchem.2007.07.053.
- [25] FRANKE B M, HALDIMANN M, GREMAUD G, et al. Element signature analysis: its validation as a tool for geographic authentication of the origin of dried beef and poultry meat[J]. *European Food Research and Technology*, 2008, 227(3): 701-708. DOI:10.1007/s00217-007-0776-8.
- [26] FRANKE B M, HALDIMANN M, REIMANN J, et al. Indications for the applicability of element signature analysis for the determination of the geographic origin of dried beef and poultry meat[J]. *European Food Research and Technology*, 2007, 225(3/4): 501-509. DOI:10.1007/s00217-006-0446-2.
- [27] HEATON K, KELLY S D, HOOGEWERFF J, et al. Verifying the geographical origin of beef: the application of multi-element isotope and trace element analysis[J]. *Food Chemistry*, 2008, 107(1): 506-515. DOI:10.1016/j.foodchem.2007.08.010.
- [28] GUO Boli, WEI Yimin, PAN Jiarong, et al. Stable C and N isotope ratio analysis for regional geographical traceability of cattle in China[J]. *Food Chemistry*, 2010, 118(4): 915-920. DOI:10.1016/j.foodchem.2008.09.062.
- [29] NAKASHITA R, SUZUKI Y, AKAMATSU F, et al. Stable carbon, nitrogen, and oxygen isotope analysis as a potential tool for verifying geographical origin of beef[J]. *Analytica Chimica Acta*, 2008, 617(1/2): 148-152. DOI:10.1016/j.aca.2008.03.048.
- [30] HORACEK M, MIN J S. Discrimination of Korean beef from beef of other origin by stable isotope measurements[J]. *Food Chemistry*, 2010, 121(2): 517-520. DOI:10.1016/j.foodchem.2009.12.018.
- [31] OSORIO M T, MOLONEY A P, SCHMIDT O, et al. Beef authentication and retrospective dietary verification using stable isotope ratio analysis of bovine muscle and tail hair[J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2011, 59(7): 3295-3305. DOI:10.1021/jf1040959.
- [32] OSORIO M T, MOLONEY A P, SCHMIDT O, et al. Multielement isotope analysis of bovine muscle for determination of international geographical origin of meat[J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2011, 59(7): 3285-3294. DOI:10.1021/jf1040433.
- [33] 蔡先峰. 牛组织器官矿物元素指纹溯源信息特征研究[D]. 北京: 中国农业科学院, 2011: 7-65.
- [34] 刘晓玲. 牛尾毛稳定同位素分析在牛肉产地溯源中的应用研究[D]. 杨凌: 西北农林科技大学, 2012: 13-60.
- [35] 项洋, 郝力壮, 牛建章, 等. 稳定性碳、氮、氢同位素在牦牛产地区分中的应用[J]. *食品科学*, 2015, 36(12): 191-195. DOI:10.7506/spkx1002-6630-201512035.
- [36] CAMIN F, BONTEMPO L, HEINRICH K, et al. Multi-element (H, C, N, S) stable isotope characteristics of lamb meat from different European regions[J]. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 2007, 389(1): 309-320. DOI:10.1007/s00216-007-1302-3.
- [37] ERASMUS S W, MULLER M, RIJST M V D, et al. Stable isotope ratio analysis: a potential analytical tool for the authentication of South African lamb meat[J]. *Food Chemistry*, 2016, 192(3): 997-1005. DOI:10.1016/j.foodchem.2015.07.121.

- [38] ERASMUS S W, MULLER M, BUTLER M, et al. The truth is in the isotopes: authenticating regionally unique South African lamb[J]. Food Chemistry, 2018, 239(2): 926-934. DOI:10.1016/j.foodchem.2017.07.026.
- [39] SACCO D, BRESCIA M A, BUCCOLIERI A, et al. Geographical origin and breed discrimination of Apulian lamb meat samples by means of analytical and spectroscopic determinations[J]. Meat Science, 2005, 71(3): 542-548. DOI:10.1016/j.meatsci.2005.04.038.
- [40] MEKKI I, CAMIN F, PERINI M, et al. Differentiating the geographical origin of Tunisian indigenous lamb using stable isotope ratio and fatty acid content[J]. Journal of Food Composition and Analysis, 2016, 53: 40-48. DOI:10.1016/j.jfca.2016.09.002.
- [41] 孙淑敏. 羊肉产地指纹图谱溯源技术研究[D]. 杨凌: 西北农林科技大学, 2012: 17-111.
- [42] SUN Shumin, GUO Boli, WEI Yimin, et al. Multi-element analysis for determining the geographical origin of mutton from different regions of China[J]. Food Chemistry, 2011, 124(3): 1151-1156. DOI:10.1016/j.foodchem.2010.07.027.
- [43] SUN Shumin, GUO Boli, WEI Yimin. Origin assignment by multi-element stable isotopes of lamb tissues[J]. Food Chemistry, 2016, 213(24): 675-681. DOI:10.1016/j.foodchem.2016.07.013.
- [44] LÓPEZ-BASCÓN M A, PRIEGO-CAPOTE F, CALDERÓN-SANTIAGO M, et al. Determination of fatty acids and stable carbon isotopic ratio in subcutaneous fat to identify the feeding regime of Iberian pigs[J]. Journal of Agricultural and Food Chemistry, 2015, 63(2): 692-699. DOI:10.1021/jf505189x.
- [45] ZHAO Yan, WANG Donghua, YANG Shumin. Effect of organic and conventional rearing system on the mineral content of pork[J]. Meat Science, 2016, 118: 103-107. DOI:10.1016/j.meatsci.2016.03.030.
- [46] KIM K S, KIM J S, HWANG I M, et al. Application of stable isotope ratio analysis for origin authentication of pork[J]. Korean Journal for Food Science of Animal Resources, 2013, 33(1): 39-44. DOI:10.5851/kosfa.2013.33.1.39.
- [47] KIM J S, HWANG I M, LEE G H, et al. Geographical origin authentication of pork using multi-element and multivariate data analyses[J]. Meat Science, 2017, 123(1): 13-20. DOI:10.1016/j.meatsci.2016.08.011.
- [48] PARK Y M, LEE C M, HONG J H, et al. Origin discrimination of defatted pork via trace elements profiling, stable isotope ratios analysis, and multivariate statistical techniques[J]. Meat Science, 2018, 143(9): 93-103. DOI:10.1016/j.meatsci.2018.04.012.
- [49] ZHAO Yan, ZHANG Bin, GUO Bin, et al. Combination of multi-element and stable isotope analysis improved the traceability of chicken from four provinces of China[J]. CyTA-Journal of Food, 2016, 14(2): 163-168. DOI:10.1080/19476337.2015.1057235.
- [50] REES G, KELLY S D, CAIRNS P, et al. Verifying the geographical origin of poultry: the application of stable isotope and trace element (SITE) analysis[J]. Food Control, 2016, 67: 144-154. DOI:10.1016/j.foodcont.2016.02.018.
- [51] 孙丰梅, 王慧文, 杨曙明. 稳定同位素碳, 氮, 硫, 氢在鸡肉产地溯源中的应用研究[J]. 分析测试学报, 2008, 27(9): 925-929. DOI:10.3969/j.issn.1004-4957.2008.09.005.
- [52] 白婷, 蔡浩洋, 邓银华. 基于微量元素指纹图谱对黑水凤尾鸡进行产地溯源的研究[J]. 中国测试, 2018, 44(9): 57-62. DOI:10.11857/j.issn.1674-5124.2018.09.011.