

# 液质联用技术在水体中抗生素检测的应用

席艳杰\*, 惠永海, 王磊

岭南师范学院化学化工学院, 广东 湛江

收稿日期: 2022年8月12日; 录用日期: 2022年9月16日; 发布日期: 2022年9月22日

## 摘要

随着抗生素被广泛应用于医学、农业、水产养殖业等领域, 其引发的机体耐药性、环境污染也引起了人们的关注。液质联用技术因检测速度快、灵敏度高、检出限低、应用范围广等优点, 在抗生素检测领域得到广泛使用。论文对水体及我国水产养殖中抗生素的使用现状及问题进行了总结, 列举了液质联用技术在水体中抗生素检测的实际应用, 为后续进一步研究提供参考。

## 关键词

抗生素, 液质联用, 水体

# Application of Liquid-Mass Spectrometry in the Detection of Antibiotics in Water

Yanjie Xi\*, Yonghai Hui, Lei Wang

School of Chemistry and Chemical Engineering, Lingnan Normal University, Zhanjiang Guangdong

Received: Aug. 12<sup>th</sup>, 2022; accepted: Sep. 16<sup>th</sup>, 2022; published: Sep. 22<sup>nd</sup>, 2022

## Abstract

As antibiotics are widely used in medicine, agriculture, aquaculture and so on, the body resistance and environmental pollution caused by antibiotics have also attracted people's attention. Liquid-mass spectrometry has been widely used in the field of antibiotic detection due to its high detection speed, high sensitivity, low detection limit and wide application range. In this paper, the use and problems of antibiotics in water and aquaculture in China were summarized, and the practical applications of liquid-mass spectrometry in determination of antibiotics in water were briefly reviewed, which would provide reference for further research.

\*通讯作者。

## Keywords

Antibiotics, Liquid-Mass Spectrometry, Water

Copyright © 2022 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

## 1. 引言

自青霉素被发现以来, 由于对微生物的抑制和干扰作用, 抗生素已被用于预防和治疗多种细菌、真菌类传染性疾病。抗生素可抑制、杀死入侵的致病菌, 使机体的代谢回归正常[1]。自被用于人类医学领域后, 抗生素极大地遏制了多种感染性疾病, 一度被誉为“最伟大的医药发明”[2]。

抗生素不仅可以作用于人体, 还可用于农业、畜牧业等领域, 以促进动物生长, 预防动物传染病, 降低死亡率, 缩减成本[1]。由于对抗生素的依赖性日益增强, 使用量也大大增加, 尤其以发展中国家更为突出。我国是世界上最大的抗生素生产国与消费国[3], 抗生素年产量约 21 万吨, 使用量约 18 万吨[4][5]。抗生素的过度使用, 随之引发了新的问题: 细菌的耐药性。

目前, 由抗生素滥用引发的耐药性现象在全球各国普遍存在, 严重威胁了人类和环境健康。据统计, 全世界每年与抗生素抗性直接或间接相关的死亡人数约 70 万人, 预计 2050 年这一数字将上升至 1000 万人[6]。卫生部 2003 年公布的数据显示, 我国每年因抗生素滥用导致的死亡人数达 8 万人。2014 年世卫组织发布了“控制细菌耐药全球行动计划”, 呼吁全球合作, 共同遏制抗生素耐药性的继续发展[7]。本文综述了水体及我国水产养殖中抗生素的使用现状及存在的问题, 以及液质联用技术在水体中抗生素检测的实际应用, 为后续的进一步研究提供参考。

## 2. 水体中的抗生素现状

抗生素在环境中分布广泛, 尤其以水体中更甚[8]。水体中抗生素的污染已成为许多国家不容忽视的环境问题。近年来, 研究人员从海洋、河流、湖泊、地下水、污水处理厂、乃至饮用水中, 均检测到了不同种类抗生素的存在[9]。Binh [10]等在越南水体中检测到了磺胺类、四环素类、大环内酯类等多种抗生素, 浓度为 0~6.06 mg/L。法国塞纳河中同样检测到了磺胺类、氟喹诺酮类等四大类共 17 种抗生素的存在[11]。

近年来, 我国水体中也有不同程度地抗生素检出。据统计, 2005~2016 年间, 从我国境内水体采集的水样中已监测到了 90 多种抗生素, 浓度范围在 0.1~1000 ng/L [12]。刘昔[13]等在长江三角洲、珠江三角洲地表水中检测到磺胺甲基异噁唑的浓度分别为 257 和 218 ng/L。Zou [14]等在渤海湾中检测到诺氟沙星和氧氟沙星的残留浓度高达 6800、5100 ng/L。

## 3. 我国水产养殖中的抗生素现状

我国是世界上最大的水产品生产国、消费国和出口国[15]。据 2019 中国渔业统计年鉴报告显示[16], 2018 年我国海水鱼类养殖年产量约 149.5 万吨, 约占世界总量的 60%。近些年来, 为了提高养殖产量和收益, 养殖人员不断增大养殖规模和密度, 投饵量也在不断增加, 水体中的剩余饵量和排泄物日积月累, 使水体环境持续恶化, 从而引发各种鱼病[17]。为了预防和控制鱼病的产生, 提高成活率, 促进动物生长,

抗生素的使用更为严重。然而由于使用缺乏科学指导, 滥用现象普遍存在。

水产养殖中使用的抗生素, 约 20%~30%被鱼、虾等水生生物吸收, 在体内富集进而诱导机体产生抗性基因(ARGs) [18]。ARGs 会随食物链层层而传递富集, 增强机体的抗药性。人体长期摄入含抗生素的食物, 会造成毒性累积而引起器官病变。剩余未被吸收、代谢的抗生素, 会破坏生态系统的正常循环和能量传递, 影响生态平衡[19], 加剧水体污染。

抗生素滥用造成的水体污染, 不但抑制水生植物的生长, 而且影响鱼、虾、蟹等生物的繁殖与生长。研究表明, 已有 226 种抗生素会对水生动植物的生长产生影响, 其中 50 多种会抑制藻类的光合作用, 100 多种会对水生动物造成毒害[20]。此外, 由于水产养殖使用的抗生素药物一般会直接溶于水体中, 会更大程度污染周围的河流、湖泊、海洋等自然水体, 因而对水体中抗生素的检测与监测需引起重视。

#### 4. 抗生素的检测方法

目前, 针对环境中抗生素检测的主要方法: 微生物显色法[21]、酶联免疫法[22]、荧光光度法[23]、毛细管电泳法[24]、气相色谱法、液相色谱法[25]、液质联用法[26]等。

微生物显色法操作简单、检测效率高、成本低, 但特异性差、灵敏度低, 无法准确定性、定量[22], 因而使用较少。酶联免疫法前处理简单、速度快、灵敏度高, 但会出现假阳性, 干扰测定结果。荧光光度法专属性强, 灵敏度高, 但只能测定具有荧光发光基团的物质, 应用范围受限。毛细管电泳法测试简便、快速, 样品用量少, 但经常需要与荧光、紫外、质谱检测器结合使用, 使用较为麻烦。气相色谱法选择性较强, 灵敏度高, 但需衍生化, 不适合用来测定热稳定性高的抗生素。液相色谱法分析时间相对较长, 受基质影响大, 无法对离子进行定性, 容易出现假阳性[27]。相比之下, 液质联用法分析速度快, 灵敏度高、回收率高, 重现性好、检出限可达 ng/L, 是目前应用最广的检测手段。

#### 5. 液质联用在水体中抗生素检测的应用

我国境内的抗生素残留, 以喹诺酮类(QNs)、大环内酯类(MALs)、磺胺类(SAs)、多肽类、四环素类(TCs)最为常见[28]。

##### 5.1. 喹诺酮类抗生素

喹诺酮类属于广谱类抗生素, 在预防和治疗多种动物疾病、微生物污染方面成效明显, 且不良反应小, 价格低廉, 因而在水产、临床、畜牧业等领域应用广泛。张颖[29]等利用 QuEChERS EMR-Lipid 技术对水体中的大黄鱼进行前处理, 利用三重四极杆-液质联用仪测定了常见的 15 种喹诺酮类抗生素, 方法检出限 0.5~2.0  $\mu\text{g}/\text{kg}$ , 平均回收率 75.8%~112.3%。同时利用该方法对市场上购买的大黄鱼、鲫鱼、黑鱼等水产品进行检测, 部分产品有不同程度的抗生素检出。魏丹[30]等采用以磁性材料为吸附剂的改进固相萃取(SPE)技术, 对环境水样进行前处理, 利用高效液相色谱-串联质谱仪测定了其中 12 种喹诺酮类抗生素, 方法检出限低至 1.6~9.6 ng/L, 回收率 90.3%~103%。

##### 5.2. 大环内酯类抗生素

大环内酯类抗生素是以大环内酯为母核, 通过糖苷键与糖联结得到的一类广谱抗生素[31], 具有促进动物生长、治疗疾病、提高饲料利用率[32]的功效。但若使用不当, 或过度使用, 残留的抗生素会通过食物链转移到人体并富集, 可能引起听力减退、眩晕、肝、肾脏受损甚至慢性中毒[33]。

吴明媛[34]等利用 C18 固相萃取膜对海水富集, 采用液相色谱-四极杆静电场轨道阱高分辨质谱, 对海水中的 9 种大环内酯类抗生素进行了测定, 方法检出限可低至 0.02~0.12 ng/L, 回收率 79.0%~105%, 所得结果如表 1 所示。

**Table 1.** Linearity parameters, detection limits and lower limits of determination**表 1.** 方法线性参数、检出限、测定下限

抗生素	线性回归方程	相关系数	检出限(ng/L)	测定下限(ng/L)
ERY	$y = 6.054 \times 10^5 + 1.764 \times 10^7x$	0.9985	0.02	0.08
ROM	$y = 2.916 \times 10^5 + 9.728 \times 10^6x$	0.9984	0.04	0.14
FRM	$y = 1.796 \times 10^5 + 1.082 \times 10^7x$	0.9965	0.05	0.17
CLM	$y = 3.034 \times 10^5 + 1.705 \times 10^7x$	0.9987	0.02	0.08
AZM	$y = 2.353 \times 10^5 + 4.483 \times 10^6x$	0.9966	0.09	0.29
OLM	$y = 5.022 \times 10^5 + 3.307 \times 10^6x$	0.9976	0.10	0.34
TLS	$y = 4.179 \times 10^5 + 4.860 \times 10^6x$	0.9990	0.09	0.30
TMC	$y = 2.570 \times 10^5 + 3.174 \times 10^6x$	0.9987	0.12	0.40
JSM	$y = 1.337 \times 10^5 + 1.078 \times 10^7x$	0.9988	0.04	0.14

研究同时采集了广西北部湾贝类养殖区域的海水样品,对 25 个水样中 9 种大环内酯类抗生素进行了测定,具有实际应用价值。宋焕杰[35]等利用固相萃取-超高效液相色谱-串联质谱技术(SPE-UPLC-MS/MS)测定了水环境中包括大环内酯类在内的 15 种抗生素,方法检出限达 0.04~0.09 ng/L,加标回收率 59.5%~102.8%,同时将该方法应用于自来水厂的水质检测,实用性强,可用于水体中痕量残留的检测。

### 5.3. 多肽类抗生素

多肽类抗生素是氨基酸通过肽链形式联结形成的一类抗生素[36],包括杆菌肽、多粘菌素、万古霉素等,可有效遏制革兰氏阳性菌、革兰氏阴性菌感染。长期滥用或不遵循休药期等错误使用方法,会造成神经系统毒性,皮肤过敏、畸形、癌症、肾脏毒性等不良后果[37]。杜业刚[38]等利用 HLB 固相萃取柱对水体中鱼类的抗生素进行富集,联用超高效液质联用仪,以反应监测(SRM)模式,测定了鱼类等产品中的 8 种多肽类抗生素,方法检出限 0.1~10  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,加标回收率 61.0%~99.6%。钱卓真等[39]利用固相萃取柱进行预处理、HPLC-MS/MS 测定了水产养殖环境中的 3 种多肽抗生素,方法检出限 2~5  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,多肽类抗生素回收率 79.7%~91.6%,具有良好的精密度和准确度,适用范围广。

### 5.4. 磺胺类抗生素

磺胺类抗生素(SAs)指含对氨基苯磺酰胺结构的一类抗生素,因具有性质稳定、易存储、价格低廉、见效快等优点被广泛使用[40]。研究表明,SAs 通常以 ng/L~ $\mu\text{g}/\text{L}$  水平在环境中存在,虽含量不高,但长此以往,亦会对人体、生态系统都会造成损害[41]。郑璇[40]等利用 OASIS HLB 固相萃取柱对待测水系进行富集萃取,利用超高效液相色谱-三重四极杆质谱对地表水和养殖废水中的 19 种磺胺类抗生素进行测定,内标法定量,准确度高,检出限达 0.6~2.0 ng/L,加标回收率 77.6%~134%。高振刚[42]等利用 HLB 固相萃取柱对提取水样进行富集,超高效液相色谱-三重四极杆串联质谱测定了水中的磺胺类、喹诺酮类、四环素类共 15 种抗生素,检出限 0.15~1.04 ng/L,平均回收率 81.2%~116.6%,方法检出限低、回收率高、使用的试剂温和毒性小,可同时检测多种抗生素,基本满足水中痕量抗生素的分析。

### 5.5. 四环素类抗生素

四环素类抗生素是由放线菌产生的,有并四苯一类结构的广谱抗生素。孙慧婧[43]等采用大体积直接

进样, 联用超高效液相色谱 - 串联质谱, 建立了一种快速测定环境水体中的 7 类(四环素类、磺胺类、喹诺酮、大环内酯类等) 42 种抗生素的方法。方法检出限低至 0.015~3.561 ng/L, 回收率 80.1%~125%。此外, 研究人员将该方法用于 10 份水源水和 5 份末梢水的测定, 方法简单快速、通量高、精密度高, 实用性强。姜明宏[44]等建立了固相萃取 - 高效液相色谱串联质谱, 测定海水中 3 类(磺胺类、喹诺酮类、四环素)共 12 种抗生素的方法, 方法检出限 0.07~1.78 ng/L, 加标回收率 62.8%~106.6%, 将该方法用于对莱州湾海域 21 个海水样品的检测, 其中 9 种抗生素均有不同程度的检出, 检测结果如表 2 所示, 方法灵敏度高, 实用性强。

**Table 2.** Exposure levels of 12 antibiotics in Laizhou Bay

**表 2.** 莱州湾海域 12 种抗生素的暴露水平

抗生素	最大浓度(ng/L)	最小浓度(ng/L)	平均浓度(ng/L)	检出率(%)
SMZ	60.15	1.57	10.35	76.7
SMR	10.94	1.29	7.36	53.3
SM2	22.09	0.89	2.86	56.6
SDZ	3.67	0.80	2.40	50.0
NOR	17.10	1.57	6.21	73.3
ENO	5.82	0.92	2.76	46.7
CPFx	4.73	1.17	3.03	40.0
ENRO	2.29	0.40	1.08	26.7
OTC	17.46	4.33	8.71	10.0

## 6. 国外液质联用技术在水体中抗生素检测的应用

近年来, 国外利用液质联用技术对水体中抗生素的检测研究也一直在进行中。Cunha [45]等利用低温分配萃取(LTPE)手段进行前处理, 配合高效液相色谱 - 三重四极杆质谱联用仪, 分别对废水中的  $\beta$ -内酰胺类、磺胺类、氟喹诺酮类、大环内酯类和二氨基嘧啶类共 8 种抗生素进行了提取和检测, 方法简单、通用性强、成本低、环境友好, 方法检测限 18.54 ng/L~78.49 ng/L。将方法运用至城市污水处理厂的水体检测, 结果表明, 8 种抗生素中有 6 种在流入废水中检出, 5 种在流出废水中检出, 浓度分别为 237~9553 ng/L 和 212~1660 ng/L。Licul-Kucera [46]等采用固相萃取液相色谱串联质谱技术, 对水体中 3 种大环内酯类抗生素进行测定, 并将其应用于蓝色多瑙河水样的分析。Meritxell Gros [47]等利用全自动离线固相萃取技术对医院、城市废水和河水中的抗生素进行萃取富集, 利用超高效液相色谱 - 线性四级杆离子阱质谱(UHPLC-QqLIT)测定了几大类抗生素(喹诺酮类、青霉素类、头孢菌素类、大环内酯类、四环素类、磺胺类等)中的共 53 种抗生素, 检出限均在 ng/L 级别, 具有高通量和高灵敏度。并将该方法应用于西班牙东北部的医院、废水、河水、污水处理厂中的抗生素残留分析, 应用基质范围广, 实用性强。

## 7. 结语

目前, 虽然对抗生素的监测暂未有系统的规定出台, 相信随着人们对自身安全及环保意识的日渐增强, 对海洋、河流、地表水等水体安全的监测会更加重视, 对抗生素等的监测会日益规范化、程序化。建立更快速、简便、有效的抗生素测定方法, 及时监控和掌握抗生素在水体中的分布, 做好水污染防控

具有重要的现实意义。

## 基金项目

广东省高校重点学科项目(2019-GDXK-0024); 广东高校重点建设学科科研能力提升项目(2021ZDJS036)。

## 参考文献

- [1] 常东浩, 葛菁萍. 生态环境中抗生素检测与降解方法的研究进展[J]. 中国农学通报, 2021, 37(27): 59-64.
- [2] Cháfer-pericás, C., Maquieira, Á. and Puchades, R. (2010) Fast Screening Methods to Detect Antibiotic Residues in Food Samples. *TrAC—Trends in Analytical Chemistry*, **29**, 1038-1049. <https://doi.org/10.1016/j.trac.2010.06.004>
- [3] 李福长, 刘梨平. 我国抗生素滥用现状及其对策[J]. 临床合理用药杂志, 2014, 7(26): 175-177.
- [4] 许琳. 正确看待养殖业中抗生素的使用[J]. 养禽与禽病防治, 2017(7): 40-43.
- [5] 陈红英, 王月颖, 傅思武. 抗生素在养殖业中的应用现状[J]. 现代畜牧科技, 2019, 53(5): 1-3.
- [6] O'Neill, J. (2016) Tackling Drug-Resistant Infections Globally: Final Report and Recommendations. Government of the United Kingdom, London.
- [7] 金亦豪, 刘子述, 胡宝兰. 环境中胞内胞外抗性基因的分离检测、分布与传播研究进展[J]. 微生物学报, 2022(4): 1247-1259.
- [8] 雷雨洋, 李方方, 欧阳洁, 等. 浙江地区抗生素残留的环境分布特征及来源分析[J]. 化学进展, 2021, 33(8): 1414-1425.
- [9] Cheng, D., Ngo, H.H., Guo, W., *et al.* (2020) A Critical Review on Antibiotics and Hormones in Swine Wastewater: Water Pollution Problems and Control Approaches. *Journal of Hazardous Materials*, **387**, Article ID: 121682. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2019.121682>
- [10] Binh, V.N., Dang, N., Anh, N.T.K., *et al.* (2018) Antibiotics in the Aquatic Environment of Vietnam: Sources, Concentrations, Risk and Control Strategy. *Chemosphere*, **197**, 438-450. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2018.01.061>
- [11] Tamtam, F., Mercier, F., Le Bot, B., *et al.* (2008) Occurrence and Fate of Antibiotics in the Seine River in Various Hydrological Conditions. *Science of the Total Environment*, **393**, 84-95. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2007.12.009>
- [12] 陈汝琬. 水环境中抗生素的抑菌性检测手段探讨[J]. 绿色环保建材, 2021(8): 172-174.
- [13] 刘昔, 王智, 王学雷, 等. 我国典型区域地表水环境中抗生素污染现状及其生态风险评价[J]. 环境科学, 2019, 40(5): 2094-2100.
- [14] Zou, S., Xu, W., Zhang, R., *et al.* (2011) Occurrence and Distribution of Antibiotics in Coastal Water of the Bohai Bay, China: Impacts of River Discharge and Aquaculture Activities. *Environmental Pollution*, **159**, 2913-2920. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2011.04.037>
- [15] Cao, L., Naylor, R.L., Henriksson, P., *et al.* (2015) China's Aquaculture and the World's Wild Fisheries. *Science*, **347**, 133-135. <https://doi.org/10.1126/science.1260149>
- [16] 农业农村部渔业渔政管理局, 全国水产技术推广总站, 中国水产学会, 等. 2019 中国渔业统计年鉴[M]. 北京: 中国农业出版社, 2019.
- [17] 黄铢玉, 方龙香, 宋超, 等. 抗生素恩诺沙星在渔业中的研究进展[J]. 农学学报, 2019, 9(11): 57-62.
- [18] 李贞金, 张洪昌, 沈根祥, 等. 水产养殖水、沉积物中抗生素检测方法优化及残留特征研究[J]. 生态毒理学报, 2020, 15(1): 209-219.
- [19] Hernando, M.D., Mezcuca, M., Fernandez-Alba, A.R., *et al.* (2006) Environmental Risk Assessment of Pharmaceutical Residues in Wastewater Effluents, Surface Waters and Sediments. *Talanta*, **69**, 334-342. <https://doi.org/10.1016/j.talanta.2005.09.037>
- [20] Sanderson, H., Brain, R.A., Johnson, D.J., *et al.* (2004) Toxicity Classification and Evaluation of Four Pharmaceuticals Classes: Antineoplastics, Cardiovascular, and Sex Hormones. *Toxicology*, **203**, 27-40. <https://doi.org/10.1016/j.tox.2004.05.015>
- [21] 高晓月, 范维, 陈淑敏, 等. 微生物显色法检测禽畜肉中混合抗生素残留[J]. 肉类研究, 2019, 33(4): 36-41.
- [22] 李小刚, 李曼玉, 马良坤. 食源性抗生素快速检测技术研究进展[J]. 分析试验室, 2019, 28(11): 1374-1380.
- [23] Medina, M.B. (2004) Development of a Fluorescent Latex Immunoassay for Detection of a Spectinomycin Antibiotic.

*Journal of Agricultural and Food Chemistry*, **52**, 3231-3236. <https://doi.org/10.1021/jf030542a>

- [24] 朱妍, 葛淑丽, 吴敏, 等. 毛细管电泳非接触式电导检测快速分离和测定氨基糖苷类抗生素[J]. 理化检验-化学分册, 2014, 50(5): 525-528.
- [25] 赵海香, 刘海萍. 多壁碳纳米管固相萃取净化-高效液相色谱法测定猪肉和鸡肉中的磺胺多残留[J]. 色谱, 2014, 3(32): 294-298.
- [26] 胡钰, 朱青青, 胡立刚, 等. 超高效液相色谱-串联质谱法同时测定土壤中 30 种抗生素[J]. 色谱, 2021, 39(8): 878-888.
- [27] 梁敏, 章雪琴. 水产品中大环内酯类药物残留检测技术的研究进展[J]. 食品安全质量检测学报, 2021, 12(2): 595-601.
- [28] 傅生会, 许倩影, 刘忠芳, 等. 荧光光度法测定头孢菌素类抗生素含量的研究进展[J]. 理化检验-化学分册, 2014, 50(9): 1183-1186.
- [29] 张颖, 陈璐, 赵巧灵, 等. QuEChERS EMR-Lipid 结合 LC/MS/MS 测定水产品中 15 种喹诺酮类抗生素[J]. 食品工业, 2021, 42(3): 299-302.
- [30] 魏丹, 国明, 吴慧珍, 等. 磁性固相萃取-高效液相色谱-串联质谱法测定环境水样中 12 种喹诺酮类抗生素残留[J]. 理化检验-化学分册, 2020, 56(3): 320-325.
- [31] 黄允省. 大环内酯类抗生素的研究新进展[J]. 临床合理用药, 2018, 11(1): 164-165.
- [32] Wang, J., Macneil, J.D., Kay, J.F., *et al.* 食品中抗菌药物残留的化学分析[M]. 于康震, 沈建忠, 译. 北京: 中国农业出版社, 2017: 21-25.
- [33] 李雪红, 张煌涛, 占秀梅. 动物性食品中大环内酯类抗生素残留分析综述[J]. 草食家畜, 2006(3): 10-12.
- [34] 吴明媛, 余焘, 谢宗升, 等. 液相色谱-四极杆/静电场轨道阱高分辨质谱法快速筛查海水中大环内酯类抗生素[J]. 理化检验-化学分册, 2021, 57(5): 444-449.
- [35] 宋焕杰, 谢卫民, 王俊, 等. SPE-UPLC-MS/MS 同时测定水环境中 4 大类 15 种抗生素[J]. 分析试验室, 2022, 41(1): 50-54.
- [36] 顾艳, 胡文彦, 杨军. 多肽类抗生素的最大残留限量标准分析与检测方法研究进展[J]. 食品安全质量检测学报, 2021, 12(24): 9392-9398.
- [37] Song, X., Huang, Q., Zhang, Y., *et al.* (2019) Rapid Multiresidue Analysis of Authorized/Banned Cyclopolypeptide Antibiotics in Feed by Liquid Chromatography-Tandem Mass Spectrometry Based on Dispersive Solid-Phase Extraction. *Journal of Pharmaceutical & Biomedical Analysis*, **170**, 234-242. <https://doi.org/10.1016/j.jpba.2019.03.050>
- [38] 杜业刚, 阳洪波, 古丽君, 等. UPLC-MS/MS 法同时测定动物源性食品中 8 种多肽类抗生素[J]. 食品工业科技, 2016, 37(8): 85-91.
- [39] 钱卓真, 罗冬莲, 罗方方, 等. 高效液相色谱-串联质谱法测定养殖环境沉积物中多肽类抗生素残留量[J]. 分析化学, 2016, 44(6): 870-875.
- [40] 郑璇, 张晓岭, 邹家素, 等. 超高效液相色谱-三重四极杆质谱法测定地表水和废水中的 19 种磺胺类抗生素[J]. 理化检验-化学分册, 2018, 54(6): 680-687.
- [41] 洪蕾洁, 石璐, 张亚雷, 等. 固相萃取-高效液相色谱法同时测定水体中的 10 种磺胺类抗生素[J]. 环境科学, 2012, 33(2): 652-657.
- [42] 高振刚, 梁延鹏, 曾鸿鹄, 等. 固相萃取-超高效液相色谱-三重四极杆质谱法测定水中 15 种抗生素残留[J]. 分析试验室, 2021, 40(8): 875-880.
- [43] 孙慧婧, 李佩纹, 张蓓蓓, 等. 大体积直接进样-超高效液相色谱-三重四极杆质谱法测定水中 7 大类 42 种抗生素残留[J]. 色谱, 2022, 40(4): 333-342.
- [44] 姜明宏, 王金鹏, 赵阳国. 固相萃取-高效液相色谱-串联质谱法同时测定海水中 12 种抗生素[J]. 中国海洋大学学报, 2021, 51(10): 107-114.
- [45] Cunha, C., Freitas, M.G., Rodrigues, D., *et al.* (2021) Low-Temperature Partitioning Extraction Followed by Liquid Chromatography Tandem Mass Spectrometry Determination of Multiclass Antibiotics in Solid and Soluble Wastewater Fractions. *Journal of Chromatography A*, **1650**, Article ID: 462256. <https://doi.org/10.1016/j.chroma.2021.462256>
- [46] Licul-Kucera, V., Ladányi, M., Hizsnyik, G., *et al.* (2019) A Filtration Optimized Online SPE-HPLC-MS/MS Method for Determination of Three Macrolide Antibiotics Dissolved and Bound to Suspended Solids in Surface Water. *Microchemical Journal*, **148**, 480-492. <https://doi.org/10.1016/j.microc.2019.05.015>
- [47] Gros, M., Rodríguez-Mozaz, S., Barceló, D. (2013) Rapid Analysis of Multiclass Antibiotic Residues and Some of Their

Metabolites in Hospital, Urban Wastewater and River Water by Ultra-High-Performance Liquid Chromatography Coupled to Quadrupole-Linear Ion Trap Tandem Mass Spectrometry. *Journal of Chromatography A*, **1292**, 173-188.  
<https://doi.org/10.1016/j.chroma.2012.12.072>