

直接进样-超高效液相色谱串联质谱法测定水体中19种磺胺类抗生素

周菁清¹, 刘铮铮¹, 张柳芳¹, 张月红¹, 何士冲¹, 彭安琪², 王静^{1*}

(1. 浙江省生态环境监测中心, 浙江省生态环境监测预警及质控研究重点实验室, 浙江 杭州 310012;
2. 浙江树人学院, 浙江 杭州 310015)

摘要:采用直接进样法,通过超高效液相色谱串联质谱法对水体中19种磺胺类抗生素进行了测定,并对仪器条件进行优化。结果表明,该方法测定19种磺胺类抗生素的线性良好,相关系数均 ≥ 0.996 ,检出限为 $0.1 \sim 0.5 \mu\text{g/L}$ 。对鱼塘地表水、医院废水和药厂废水这3种不同基质的水样进行加标回收实验,回收率为 $84.0\% \sim 119\%$,相对标准偏差为 $0.3\% \sim 10.2\%$ 。该方法简单、快速、准确度和精密度较高、溶剂消耗较少,可在25 min内快速测定19种磺胺类抗生素,能够满足水体中磺胺类抗生素的快速检测要求。

关键词:超高效液相色谱串联质谱;磺胺类抗生素;直接进样;污染水体;方法优化

中图分类号:X832

文献标志码:B

文章编号:1674-6732(2023)03-0048-06

Determination of 19 Sulfonamides in Water by Direct Injection-Ultra-High Performance Liquid Chromatography-Tandem Mass Spectrometry

ZHOU Jingqing¹, LIU Zhengzheng¹, ZHANG Liufang¹, ZHANG Yuehong¹, HE Shichong¹, PENG Anqi², WANG Jing^{1*}

(1. Zhejiang Key Laboratory of Ecological and Environmental Monitoring, Forewarning and Quality Control, Zhejiang Ecological and Environmental Monitoring Center, Hangzhou, Zhejiang 310012, China; 2. Zhejiang Shuren University, Hangzhou, Zhejiang 310015, China)

Abstract: A method for determination of 19 sulfonamides in water was established by using direct injection-ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry. The instrument conditions were optimized. The regression equation of 19 sulfonamides showed good linear relationship, the correlation coefficients were all greater than 0.996. The detection limits were in the range from 0.1 to 0.5 $\mu\text{g/L}$. Different matrix samples, such as fish pond surface water samples, hospital wastewater samples and pharmaceutical wastewater samples, were added to the standard recovery experiment. The recoveries ranged from 84.0% to 119%, and the precision ranged from 0.3% to 10.2%. This method is simple, fast, high efficiency, stable precision and less solvent consumption, which can determine 19 sulfonamides for pollution water in 25 min, and meet the requirements of rapid test for sulfonamides in water.

Key words: UPLC-MS/MS; Sulfonamides; Direct injection; Pollution water; Method optimization

磺胺类抗生素(SAs)是一类人工合成的广谱抗菌药物^[1-2],被广泛应用于多种动物疾病的预防和治疗。但是长时间广泛使用磺胺类抗生素会使该药物的残留和代谢污染物持续不断地进入环境中^[3],对生态环境和人类生活环境构成威胁^[4-9]。

目前,在河流、湖泊、冰川、沼泽等地表水环境中均发现了磺胺类抗生素残留^[9]。Luo等^[10]研究发现,海河主干及支流中的磺胺类抗生素质量浓度最低为 24 ng/L ,最高为 385 ng/L 。阮悦斐等^[11]对淡水养殖水体进行调查,发现一些磺胺

收稿日期:2022-07-24;修订日期:2022-08-14

基金项目:浙江省生态环境科研和成果推广基金项目(2020XM0001)

作者简介:周菁清(1990—),女,工程师,硕士,主要从事有机污染物环境监测与评价研究工作。

* 通讯作者:王静 E-mail:1347480699@qq.com

类抗生素在沉积物中被检测出,质量分数为 1.5 ~ 30.1 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。

水体中磺胺类抗生素的主要检测分析方法为固相萃取-超高效液相色谱串联质谱法^[12-13]、固相萃取-高效液相色谱法^[14-15]、液液萃取-高效液相色谱法^[16]等。这些方法虽然可以满足水体中部分目标物的分析需求,但前处理过程较为复杂,溶剂使用量较大,易造成新的环境污染,因此针对磺胺类抗生素污染的水体,有必要建立一种适用于水体中多种磺胺类药物的快速检测方法。

现采用直接进样方式,建立了超高效液相色谱串联质谱快速筛查测定污染水体中 19 种磺胺类抗生素的方法,以期为水体中此类物质的快速检测提供方法参考。

1 实验部分

1.1 仪器与试剂

1.1.1 仪器与设备

主要仪器与设备见表 1。

表 1 主要仪器与设备

仪器或设备名称	型号/规格	生产厂家
超高效液相色谱串联质谱仪	QTRAP 6500	美国 AB Sciex 公司
超纯水机	ZD 22002	法国 Milli-Q Academic 公司
HSS T3 色谱柱	2.1 mm × 100 mm, 1.8 μm	美国 Waters 公司
BEH C18 色谱柱	2.1 mm × 100 mm, 1.7 μm	美国 Waters 公司
CSH TM Fluoro-Phenyl 色谱柱	2.1 mm × 100 mm, 1.7 μm	美国 Waters 公司

1.1.2 标准品与试剂

标准品:19 种磺胺类抗生素混合标准溶液(100 $\mu\text{g}/\text{mL}$,1ST9239-100M),2 种磺胺类抗生素内标混合标准溶液(10 $\mu\text{g}/\text{mL}$,1ST47775-10),均购自天津阿尔塔科技有限公司。

试剂:甲醇、乙腈和甲酸(质谱纯,美国 Fisher Chemical 公司);0.45 μm 水系滤膜(英国 Whatman 公司);实验用水均为超纯水。

1.2 样品采集和保存

选取具有代表性的 3 种基质的水样(鱼塘地表水、医院废水和药厂废水),样品采集参照《水质

湖泊和水库采样技术指导》(GB/T 14581—93)^[17]和《污水监测技术规范》(HJ 91—2019)^[18]执行。用 1L 具玻璃塞棕色磨口瓶或具有聚四氟乙烯衬垫的棕色螺口玻璃瓶采集样品。若水样中含余氯,每升水加入 80 mg 硫代硫酸钠,6 $^{\circ}\text{C}$ 以下避光运输至实验室^[19]。

样品测定前用 0.45 μm 水系滤膜过滤水样后进样分析。

1.3 仪器分析条件

采用超高效液相色谱串联质谱法对过滤后的样品进行定量分析。HSS T3 色谱柱被用于分离目标物。选取 0.1% 的甲酸水和甲醇溶液作为流动相 A 和流动相 B,液相洗脱程序见表 2。

表 2 液相洗脱程序

t/min	流动相 A/%	流动相 B/%
0	98	2
20	50	50
21	50	50
23	98	2
25	98	2

样品分析过程中,流速设置为 0.3 mL/min,柱温为 40 $^{\circ}\text{C}$,进样体积为 5 μL 。采用正离子电喷雾电离模式进行多反应通道检测^[20]。离子源:电喷雾离子源;碰撞气:氮气(99.999%);电喷雾电压:5 500 V;离子源温度:550 $^{\circ}\text{C}$;吹帘气(CUR):137.90 kPa;雾化气(Gas 1)和辅助气(Gas 2):均为 379.21 kPa;驻留时间:13 ms。

2 结果与讨论

2.1 质谱条件的选择

将 19 种磺胺类抗生素混合标准溶液及 2 种内标混合标准溶液逐级稀释,配制成质量浓度为 50 $\mu\text{g}/\text{L}$ 的中间使用液,采用针泵将样品以 10 $\mu\text{L}/\text{min}$ 的速度直接、连续推入质谱系统^[21],优化目标物的母/子离子、锥孔电压(DP)和碰撞电压(CE),从而优化质谱多反应监测(MRM)模式中各物质检测的灵敏度。各目标物质谱参数优化结果见表 3。

2.2 色谱柱的选择

分别用 BEH C18、HSS T3、CSH TM Fluoro-Phenyl 这 3 种色谱柱对 19 种磺胺类抗生素进行分析,不同色谱柱对目标物的保留时间见表 4。

表 3 各目标物质谱参数优化结果^①

序号	目标物	CAS 号	母离子 (m/z)	子离子 (m/z)	DP/V	CE/V
1	磺胺醋酰	144-80-9	215.0	156.0*, 108.0	52	17, 29
2	磺胺嘧啶	68-35-9	251.1	156.0*, 92.0	40	22, 38
3	磺胺噻唑	72-14-0	256.0	156.0*, 108.0	40	22, 32
4	磺胺吡啶	144-83-2	250.1	156.1*, 108.0	40	23, 32
5	磺胺甲基嘧啶	127-79-7	265.2	156.1*, 172.1	82	25, 25
6	甲氧苄氨嘧啶	738-70-5	291.1	230.1*, 123.1	95	33, 34
7	磺胺二甲嘧啶	57-68-1	279.1	186.1*, 156.0	60	23, 27
8	磺胺间甲氧嘧啶	1220-83-3	281.1	156.0*, 126.1	75	25, 30
9	磺胺甲二唑	144-82-1	271.0	156.1*, 108.0	65	21, 36
10	磺胺甲氧哒嗪	80-35-3	281.0	156.0*, 126.1	75	25, 27
11	磺胺对甲氧嘧啶	651-06-9	281.1	156.1*, 108.0	70	25, 35
12	磺胺氯哒嗪	80-32-0	285.1	156.1*, 108.0	65	22, 37
13	磺胺甲噁唑	723-46-6	254.1	156.1*, 108.0	65	22, 36
14	磺胺二甲异唑	127-69-5	268.1	156.1*, 113.2	82	22, 25
15	磺胺苯酰	127-71-9	277.1	156.0*, 108.0	60	19, 32
16	磺胺多辛	2447-57-6	311.1	156.1*, 108.2	70	30, 37
17	磺胺地索辛	122-11-2	311.1	156.1*, 218.0	70	28, 28
18	磺胺喹噁啉	59-40-5	301.1	156.0*, 108.0	80	24, 36
19	磺胺苯吡唑	526-08-9	315.0	156.0*, 108.0	90	27, 40
20	13C6-磺胺吡啶	1228182-45-3	256.0	162.0*	40	23
21	13C6-磺胺间二甲氧嘧啶	1334378-48-1	317.0	162.0*	70	28

①*表示定量离子对。

表 4 不同色谱柱对目标物的保留时间 min

序号	目标物	保留时间		
		BEH C18 柱	HSS T3 柱	CSH TM Fluoro-Phenyl 柱
1	磺胺醋酰	4.62	4.99	2.67
2	磺胺嘧啶	5.61	6.52	3.61
3	磺胺噻唑	6.21	7.38	4.32
4	磺胺吡啶	6.52	7.80	4.04
5	磺胺甲基嘧啶	6.87	8.52	4.46
6	甲氧苄氨嘧啶	7.96	9.19	1.56
7	磺胺二甲嘧啶	8.15	10.46	5.48
8	磺胺甲二唑	7.79	9.95	6.19
9	磺胺间甲氧嘧啶	8.02	10.16	6.59
10	磺胺甲氧哒嗪	8.52	10.90	6.40
11	磺胺对甲氧嘧啶	9.36	12.09	7.32
12	磺胺氯哒嗪	8.91	11.50	6.91
13	磺胺甲噁唑	9.26	11.85	6.91
14	磺胺二甲异唑	10.07	13.02	7.81
15	磺胺苯酰	10.62	13.86	9.59
16	磺胺多辛	9.97	13.00	8.25
17	磺胺地索辛	12.48	16.33	11.81
18	磺胺喹噁啉	13.07	17.09	13.32
19	磺胺苯吡唑	11.57	15.30	9.98

3 种色谱柱峰形图见图 1(a)–(c), 图中序号对应的目标物与表 3 相同。由图 1 可见, BEH C18 柱有 3 对物质不能达到基线分离; HSS T3 柱有 2 对物质不能达到基线分离, 但峰形较好; CSH TM

Fluoro-Phenyl 柱有 1 对物质不能达到基线分离, 峰形较好但有拖尾。因此, 使用 HSS T3 柱为最佳。

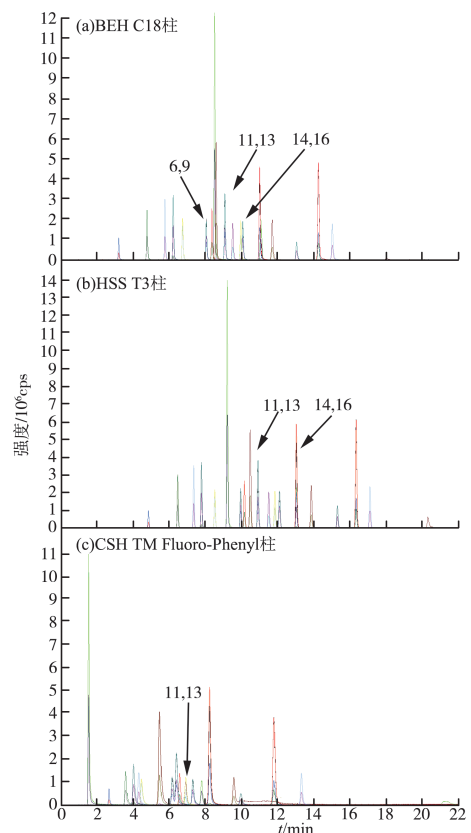


图 1 3 种色谱柱峰形图

2.3 方法检出限、精密度及准确度

2.3.1 方法检出限

添加 2 μg/L 标准样品至超纯水中,分析样品质量浓度的标准偏差,根据《环境监测分析方法编制与修订技术导则》(HJ 168—2020)^[22],计算目标物的检出限和测定下限。对各标准质量浓度点对

应的峰面积与内标物峰面积的比值和内标物质量浓度的乘积进行线性回归分析。19 种磺胺类抗生素的标准曲线及检出限见表 5。由表 5 可见,磺胺类抗生素的线性相关系数 ≥ 0.996, 检出限为 0.1 ~ 0.5 μg/L。

表 5 19 种磺胺类抗生素的标准曲线及检出限 (n = 7)

序号	目标物	标准曲线	相关系数	检出限/(μg · L ⁻¹)	测定下限/(μg · L ⁻¹)
1	磺胺醋酰	$y = 0.79x + 1.91 \times 10^{-3}$	0.998	0.3	1.2
2	磺胺嘧啶	$y = 2.15x - 1.10 \times 10^{-2}$	0.996	0.4	1.6
3	磺胺噻唑	$y = 2.63x - 1.50 \times 10^{-2}$	0.997	0.2	0.8
4	磺胺吡啶	$y = 2.54x - 5.83 \times 10^{-3}$	0.998	0.3	1.2
5	磺胺甲基噻唑	$y = 1.76x - 2.87 \times 10^{-3}$	0.997	0.3	1.2
6	甲氧苄胺嘧啶	$y = 7.77x + 9.11 \times 10^{-2}$	0.996	0.5	2.0
7	磺胺二甲嘧啶	$y = 5.80x + 1.41 \times 10^{-2}$	0.999 7	0.3	1.2
8	磺胺甲二唑	$y = 2.02x + 6.76 \times 10^{-3}$	0.999 6	0.4	1.6
9	磺胺间甲氧嘧啶	$y = 2.55x - 3.79 \times 10^{-4}$	0.999 7	0.2	0.8
10	磺胺甲氧哒嗪	$y = 3.49x + 1.01 \times 10^{-2}$	0.998	0.2	0.8
11	磺胺对甲氧嘧啶	$y = 1.53x - 9.18 \times 10^{-4}$	0.998	0.3	1.2
12	磺胺氯哒嗪	$y = 2.72x - 4.36 \times 10^{-3}$	0.998	0.3	1.2
13	磺胺甲噁唑	$y = 2.71x + 1.03 \times 10^{-2}$	0.999 9	0.2	0.8
14	磺胺二甲异唑	$y = 1.57x + 4.81 \times 10^{-3}$	0.999 7	0.2	0.8
15	磺胺苯酰	$y = 2.52x - 1.29 \times 10^{-3}$	0.999 7	0.3	1.2
16	磺胺多辛	$y = 3.45x + 2.67 \times 10^{-2}$	0.998	0.2	0.8
17	磺胺地索辛	$y = 5.42x - 8.13 \times 10^{-3}$	0.999 7	0.1	0.4
18	磺胺喹噁啉	$y = 2.53x - 9.10 \times 10^{-3}$	0.998	0.1	0.4
19	磺胺苯吡唑	$y = 1.10x - 1.35 \times 10^{-3}$	0.999 2	0.4	1.6

2.3.2 方法精密度和准确度

对鱼塘地表水、医院废水和药厂废水 3 种实际水样进行加标回收实验,加标量分别为 2, 100 和 180 μg/L, 计算加标回收率和相对标准偏差 (RSD)。方法准确度与精密度见表 6。由表 6 可见,3 种基质水样加标回收率为 84.5% ~ 119%,

84.7% ~ 114% 和 84.0% ~ 113%, RSD 分别为 2.4% ~ 12.8%, 1.4% ~ 4.3% 和 0.3% ~ 7.7%。总体来说,不同的水体基质对磺胺类抗生素测定结果的影响较小,低、中和高质量浓度样品测定结果的精密度均较好,说明该方法稳定性较高。

表 6 方法准确度与精密度

序号	目标物	加标量 2 μg/L		加标量 100 μg/L		加标量 180 μg/L	
		回收率	RSD	回收率	RSD	回收率	RSD
1	磺胺醋酰	95.4	8.8	98.3	3.3	93.5	2.4
2	磺胺嘧啶	119	2.4	100	2.6	101	4.8
3	磺胺噻唑	117.7	2.5	98.9	4.3	101	5.4
4	磺胺吡啶	104.8	5.1	99.8	3.0	101	2.8
5	磺胺甲基噻唑	104.2	8.2	93.9	2.9	96.0	5.5
6	甲氧苄胺嘧啶	111.2	9.3	106	2.3	84.0	7.7
7	磺胺二甲嘧啶	85.8	9.2	90.3	3.3	94.5	5.5
8	磺胺甲二唑	84.5	7.2	92.3	1.4	95.5	5.4
9	磺胺间甲氧嘧啶	93.2	7.4	95.7	3.2	103	5.4
10	磺胺甲氧哒嗪	88.3	12.8	93.5	3.2	94.9	4.1

续 表

序号	目标物	加标量 2 μg/L		加标量 100 μg/L		加标量 180 μg/L	
		回收率	RSD	回收率	RSD	回收率	RSD
11	磺胺对甲氧嘧啶	90.6	10.2	85.4	3.3	90.0	5.0
12	磺胺氯哒嗪	93.4	7.0	84.7	2.4	88.2	5.5
13	磺胺甲噁唑	96.5	6.1	93.2	3.1	87.4	3.4
14	磺胺二甲异唑	96.8	6.9	114	2.0	113	1.9
15	磺胺苯酰	96.0	3.4	93.1	2.6	93.2	0.9
16	磺胺多辛	88.9	8.7	103	2.0	101	2.5
17	磺胺地索辛	107.1	2.4	103	1.5	105	0.9
18	磺胺喹噁啉	106	5.7	87.3	2.7	93.0	2.5
19	磺胺苯吡唑	101.4	8.3	92.6	3.8	97.9	0.3

2.4 实际样品测定

采用直接进样,对于液相色谱-三重四极杆质谱法,基质效应尤为明显。为考察实际样品的基质效应,选取了 3 种不同地区采集的医药化工园区地表水样品,编号分别为 1#、2#和 3#,对水样分别加入 2 μg/L 的目标物,考察不同水样的基质效应。同时考察乙二胺四乙酸(Na₂EDTA)的加入对实际水样中磺胺类抗生素的测定是否产生影响。此处用回收率来表征样品的基质效应,当回收率 = 100% 时,不存在基质效应;当回收率 > 100% 时,表

现为基质增强效应;当回收率 < 100% 时,表现为基质抑制效应。实际样品的基质效应见表 7。由表 7 可见,各水样不加 Na₂EDTA 时,磺胺类抗生素回收率为 67.1% ~ 122% (均在 50% ~ 150% 范围内),说明采用直接进样,水体的基质效应可以接受。而加入 Na₂EDTA 时,回收率为 47.8% ~ 123%,添加 Na₂EDTA 对磺胺二甲嘧啶、磺胺甲氧哒嗪等组分产生较强的基质抑制作用。综合来看,直接进样法测定水体中磺胺类抗生素时不需要加入 Na₂EDTA。

表 7 实际样品的基质效应 %

序号	目标物	1#水样回收率		2#水样回收率		3#水样回收率	
		加入 Na ₂ EDTA	不加 Na ₂ EDTA	加入 Na ₂ EDTA	不加 Na ₂ EDTA	加入 Na ₂ EDTA	不加 Na ₂ EDTA
1	磺胺醋酰	75.8	92.0	74.9	85.2	83.0	77.1
2	磺胺嘧啶	69.8	106	84.1	98.6	81.0	90.4
3	磺胺噻唑	117	118	97.6	113	91.9	120
4	磺胺吡啶	90.2	113	92.2	120	110	104
5	磺胺甲基嘧啶	102	115	102	114	104	111
6	甲氧苯氧嘧啶	100	111	112	116	123	112
7	磺胺二甲嘧啶	47.8	94.7	87.2	118	59.8	122
8	磺胺间甲氧嘧啶	70.7	84.5	81.2	82.4	77.2	72.3
9	磺胺甲二唑	96.9	108	95.7	103.1	96.2	94.6
10	磺胺甲氧哒嗪	54.8	95.5	102.6	86.1	59.8	95.1
11	磺胺对甲氧嘧啶	82.1	98.1	89.7	98.3	101	93.0
12	磺胺氯哒嗪	63.0	77.5	71.6	74.3	83.5	76.0
13	磺胺甲噁唑	85.7	86.1	81.7	67.1	67.8	101
14	磺胺二甲异唑	73.6	88.8	91.7	75.4	81.0	81.8
15	磺胺苯酰	83.8	88.3	85.6	87.1	87.4	98.4
16	磺胺多辛	70.0	93.5	94.3	82.4	79.1	77.5
17	磺胺地索辛	88.7	98.0	90.8	85.2	86.3	99.2
18	磺胺喹噁啉	77.8	85.7	77.8	81.7	69.6	85.2
19	磺胺苯吡唑	78.5	79.0	64.7	75.7	60.9	72.1

对鱼塘地表水、医院废水和药厂废水 3 种类型样品进行了 3 次平行测定,实际样品中磺胺类抗生素的测定结果见表 8。由表 8 可见,鱼塘地表水样

品未检出 19 种磺胺类抗生素,医院废水样品检出 4 种磺胺类抗生素,检出率为 21.1%,检出质量浓度为 7.73 ~ 29.9 μg/L,药厂废水样品检出磺胺甲

噁唑和甲氧苄胺嘧啶 2 种磺胺类抗生素,检出质量浓度分别为 50.4 和 12.4 $\mu\text{g/L}$ 。

表 8 实际样品中磺胺类抗生素的测定结果 ($n=3$)^①

序号	目标物	$\mu\text{g/L}$		
		鱼塘地表水	医院废水	药厂废水
1	磺胺醋酰	—	—	—
2	磺胺嘧啶	—	7.73	—
3	磺胺噻唑	—	—	—
4	磺胺吡啶	—	—	—
5	磺胺甲基嘧啶	—	—	—
6	甲氧苄胺嘧啶	—	9.23	12.4
7	磺胺二甲嘧啶	—	—	—
8	磺胺甲二唑	—	—	—
9	磺胺间甲氧嘧啶	—	—	—
10	磺胺甲氧哒嗪	—	—	—
11	磺胺对甲氧嘧啶	—	—	—
12	磺胺氯哒嗪	—	—	—
13	磺胺甲噁唑	—	29.9	50.4
14	磺胺二甲异唑	—	—	—
15	磺胺苯酰	—	—	—
16	磺胺多辛	—	8.43	—
17	磺胺地索辛	—	—	—
18	磺胺喹噁啉	—	—	—
19	磺胺苯吡唑	—	—	—

①“—”代表未检出。

3 结语

建立了一种直接进样-超高效液相色谱串联质谱法同时测定污染水体中 19 种磺胺类抗生素的方法。方法检出限为 0.1 ~ 0.5 $\mu\text{g/L}$,线性相关系数均 ≥ 0.996 。对不同复杂基质的水样(鱼塘地表水、医院废水和药厂废水),加标回收率为 84.0% ~ 119%,经过方法优化后,可实现 19 种磺胺类抗生素的有效分离和准确定量。该方法具有简单、快速、准确度高、溶剂消耗少的优点,可在 25 min 内快速测定 19 种磺胺类抗生素,可为水体中此类物质的分布研究、质量评价和污染防治提供技术支撑。

[参考文献]

[1] 华中农业大学. 用于检测食品中磺胺类药物残留的抗体芯片试剂盒及方法:CN201410830693.7[P]. 2015-05-06.
 [2] 张永生,南海娟,魏新军. 动物源性食品中磺胺类药物多残留检测方法研究进展[J]. 畜牧与饲料科学,2009,30(3):35-37.
 [3] 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.
 [4] 舒晓莲,陈鹰,李杰. 水产品中磺胺类药物残留量实验室间

检测能力的验证结果与分析[J]. 理化检验(化学分册), 2018,54(11):1281-1286.
 [5] 黄冬梅,黄宣运,顾润润,等. 柱后衍生高效液相色谱法测定虾中 14 种磺胺类药物残留量[J]. 色谱,2014,32(8):874-879.
 [6] 于芳. 磺胺类药物残留的检测方法概述[J]. 畜牧兽医科技信息,2020(2):169.
 [7] 王炫凯,曲宝成,艾孜买提·阿合麦提,等. 磺胺类药物残留危害及其检测方法的研究进展[J]. 四川畜牧兽医,2021,48(8):32-36.
 [8] 祁彦洁,刘菲. 地下水中抗生素污染检测分析研究进展[J]. 岩矿测试,2014,33(1):1-11.
 [9] 连璐璐. 抗生素在滨海养殖区表层及柱状沉积物中的分布特征[D]. 大连:大连理工大学,2016.
 [10] LUO Y, XU L, RYSZ M, et al. Occurrence and transport of tetracycline, sulfonamide, quinolone, and macrolide antibiotics in the Haihe river basin, China[J]. Environmental Science & Technology, 2011, 45(5):1827-1833.
 [11] 阮悦斐,陈继森,郭昌胜,等. 天津近郊地区淡水养殖水体的表层水及沉积物中典型抗生素的残留分析[J]. 农业环境科学学报,2011,30(12):2586-2593.
 [12] 唐才明,黄秋鑫,余以义,等. 高效液相色谱-串联质谱法对水环境中微量磺胺、大环内酯类抗生素、甲氧苄胺嘧啶与氯霉素的检测[J]. 分析测试学报,2009,28(8):909-913.
 [13] 苏仲毅,陈猛,袁东星,等. 固相萃取-超高压液相色谱-串联质谱法分析海水中 9 种磺胺类抗生素[J]. 厦门大学学报(自然科学版),2008,46(Z1):72-76.
 [14] 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.
 [15] 孙广大,苏仲毅,陈猛. 海水中 9 种磺胺类抗生素的固相萃取-液相色谱-质谱联用分析[C]//第四届全国环境化学学术大会论文汇编. 2007:39-40.
 [16] 张鸣珊,李腾崖,曹小聪,等. 液液萃取-超高效液相色谱-三重四极杆质谱测定地表水中 19 种磺胺类药物残留[J]. 环境污染与防治,2020,42(7):838-842.
 [17] 国家环境保护局. 水质 湖泊和水库采样技术指导: GB/T 14581—1993[S]. 北京:中国质检出版社,1993.
 [18] 生态环境部. 污水监测技术规范: HJ 91—2019[S]. 北京:中国环境出版集团,2019.
 [19] EPA. Pharmaceuticals and Personal Care Products in Water, Soil, Sediment, and Biosolids by HPLC/MS/MS: Method 1694-2007[S]. 2007.
 [20] 陈书鑫,王静,何士冲,等. 超高效液相色谱串联质谱法测定水体中 17 种抗生素[J]. 中国环境监测,2020,36(6):119-126.
 [21] 杨敏娜,秦兴秀,王来梁. 超高效液相色谱-串联质谱法测定水中拟除虫菊酯和有机磷农药残留[J]. 环境监控与预警, 2021,13(2):24-28.
 [22] 生态环境部. 环境监测分析方法标准制定技术导则: HJ 168—2020[S]. 北京:中国环境出版集团,2020.