

# 我国市场上 UHT 灭菌乳和巴氏杀菌乳中四种兽药残留风险评估

乔勤勤<sup>1,2</sup> 文芳<sup>2</sup> 郑楠<sup>2</sup> 王加启<sup>2</sup> 程建波<sup>3\*</sup> 薛秀恒<sup>1\*</sup>

(1. 安徽农业大学 茶与食品科技学院, 合肥 230036;

2. 中国农业科学院 北京畜牧兽医研究所/农业农村部奶及奶制品质量安全控制重点实验室/  
农业农村部奶产品质量安全风险评测试验室(北京), 北京 100193;

3. 安徽农业大学 动物科技学院, 合肥 230036)

**摘要** 为评估我国市场上液态奶产品中兽药残留状况, 采集 2016 年和 2017 年共计 150 份超高温(UHT)灭菌乳和 50 份巴氏杀菌乳样品。基于 ELISA 的可视化微阵列芯片技术检测其中氟喹诺酮、四环素、链霉素和林可霉素的兽药残留。结果表明: UHT 灭菌乳样品中氟喹诺酮、四环素、链霉素和林可霉素的检出率分别为 0%、0%、3.3% 和 0%, 巴氏杀菌乳样品的检出率分别为 0%、0%、8.0% 和 2.0%; 所有牛奶样品中氟喹诺酮和四环素测定浓度均低于方法检测限, 链霉素和林可霉素的最高浓度分别为 21.16 和 16.48  $\mu\text{g/L}$ , 均未超过欧盟、食品法典委员会和我国标准中规定的最大残留限量值(MRLs)。由此推断, 当前我国市场上 UHT 和巴氏杀菌乳中氟喹诺酮、四环素、链霉素和林可霉素等兽药的残留情况并没有超标, 是安全的。

**关键词** UHT 灭菌乳; 巴氏杀菌乳; 兽药; 风险评估

中图分类号 TS252.2

文章编号 1007-4333(2020)01-0105-08

文献标志码 A

## Risk assessment of four veterinary drug residues in UHT sterilized milk and pasteurized milk in China

QIAO Qinqin<sup>1,2</sup>, WEN Fang<sup>1</sup>, ZHENG Nan<sup>1</sup>, WANG Jiaqi<sup>2</sup>, CHENG Jianbo<sup>3\*</sup>, XUE Xiuheng<sup>1\*</sup>

(1. Tea and Food Science and Technology College, Anhui Agricultural University, Hefei 230036, China;

2. Institute of Animal Science/Key Laboratory of Quality & Safety Control for Milk and Dairy Products of Ministry of Agriculture and Rural Affairs/Laboratory of Quality and Safety Risk Assessment for Dairy Products of Ministry of Agriculture and Rural Affairs, Chinese Academy of Agricultural Sciences, Beijing 100193, China;

3. College of Animal Science and Technology, Anhui Agricultural University, Hefei 230036, China)

**Abstract** In order to assess the veterinary drug residues in liquid milk products on the market in China, a total of 150 ultra-heat temperature (UHT) and 50 pasteurized milk samples were collected on 2016 and 2017. ELISA-based visual microarray technology was used to detect veterinary drugs including quinolones, tetracyclines, streptomycin and lincomycin. The results showed that the detection rates of fluoroquinolone, tetracycline, streptomycin and lincomycin were 0%, 0%, 3.3% and 0% in UHT milk samples, respectively, and their detection rates in pasteurized milk samples were 0%, 0%, 8.0% and 2.0%, respectively. The concentrations of fluoroquinolone and tetracycline in all milk samples were lower than the detection limit of the method. The maximum concentrations of streptomycin and lincomycin were 21.16 and 16.48  $\mu\text{g/L}$ , respectively, both of which were below the maximum residue limits of European Union, the Codex Alimentarius Commission and China standards. It is concluded that the residual conditions

收稿日期: 2019-04-27

基金项目: 中国农业科学院科技创新工程(ASTIP-IAS12); 公益性行业(农业)科研专项(201403071); 安徽省重点研究与开发项目(1704a07020069)

第一作者: 乔勤勤, 硕士研究生, E-mail: 1205525113@qq.com

通讯作者: 程建波, 教授, 主要从事反刍动物营养研究, E-mail: chengjianboahau@163.com

薛秀恒, 副教授, 主要从事动物性食品加工与安全检测研究, E-mail: xuexiuheng@126.com

of fluoroquinolone, tetracycline, streptomycin and lincomycin in UHT and pasteurized milk in China are under control and safe.

**Keywords** UHT sterilized milk; pasteurized milk; veterinary drug; risk assessment

在奶牛养殖过程中使用兽药可预防和治疗奶牛疾病,提高养殖业生产率<sup>[1-3]</sup>。然而,兽药使用不当或休药时间不足可能会导致牛奶中出现兽药残留,危害消费者健康,如引起过敏反应、导致耐药性增强和致癌等<sup>[4-8]</sup>。一般兽药在热处理下具有高稳定性,兽药残留很容易从生鲜乳中转移到超高温灭菌乳(UHT乳)和巴氏杀菌乳中<sup>[9-11]</sup>。因此,欧盟(The European Union)、食品法典委员会(The Codex Alimentarius Commission)和我国农业农村部分别对牛奶中兽药的最大残留限量(Maximum residue limits)作出了明确的规定<sup>[12-14]</sup>。我国农业农村部235公告中明确规定牛奶中氟喹诺酮(Quinolones)、四环素(Tetracyclines)、链霉素(Streptomycin)和林可霉素(Lincomycin)的最高残留限量分别为100、100、200和150  $\mu\text{g}/\text{kg}$ <sup>[14]</sup>。

以酶联免疫吸附试验(ELISA)为基础的可视化微阵列检测技术作为一种快速、高特异性的分析牛奶中兽药残留方法,与传统检测方法如液相色谱法(LC)、液相色谱质谱联用法(LC-MS/MS)和ELISA等相比较,具有操作简便、特异性强、检测速度快、检测通量大,可同时检测牛奶中多种残留物等优点<sup>[15-18]</sup>。该检测技术已成功应用于检测多种目标物分析中,如抗生素残留、硝基咪唑代谢物和乳铁蛋白等<sup>[19-21]</sup>。

目前,对我国市场上牛奶中四环素和喹诺酮的残留进行风险评估的报道较少<sup>[22-23]</sup>,缺乏对于牛奶中链霉素和林可霉素的残留分析的相关研究。因此,本研究拟以从我国25个省(市)中采集的150份UHT灭菌乳样品和50份巴氏杀菌乳样品为研究对象,采用ELISA可视化微阵列芯片检测试剂盒检测我国奶牛养殖过程中常用的氟喹诺酮、四环素、链霉素和林可霉素类等4种兽药残留并进行分析,以检测我国市场上UHT灭菌乳样品和巴氏杀菌乳样品中兽药残留并分析风险水平。

## 1 材料与方法

### 1.1 样品采集

2017年3—9月,本课题组分别从我国北京、天津、河北、上海、山东、山西、陕西、湖北、河南、江苏、

江西、浙江、安徽、四川、重庆、甘肃、黑龙江、辽宁、内蒙古、宁夏、新疆、福建、广东、广西和云南等25个省(市)的超市共收集了150份UHT灭菌乳样品和50份巴氏杀菌乳样品。在分析之前,将UHT灭菌乳样品在室温下储存,巴氏杀菌乳样品在4℃下储存。所有分析均在样品保质期到期之前完成。

### 1.2 试剂及仪器

芯片扫描仪(MRS-4800QA,上海中晶科技有限公司,中国),氮吹浓缩仪(N1-Automatic Nitrogen Concentrator,上海屹尧仪器科技发展有限公司,中国),涡旋振荡器(Vortex-Genie 2, Scientific Industries,美国),恒温震荡孵育器(MTS-2,南京祥中生物科技有限公司,中国),ELISA可视化微阵列芯片检测试剂盒(南京祥中生物科技有限公司,中国)。

氟喹诺酮、四环素、链霉素和林可霉素混合标准液、抗体工作液、二抗工作液、显色液A、显色液B、终止液、10×浓缩复溶液、20×浓缩洗涤液、10×浓缩标准液,均购自南京祥中生物科技有限公司。乙酸乙酯(分析纯)和正己烷(分析纯)购自国药集团化学试剂有限公司。

1)配制洗涤工作液:去离子水20×浓缩洗涤液按1:19体积比进行稀释用于芯片板的洗涤,于4℃储存。

2)配制复溶工作液:去离子水10×浓缩复溶液按1:9体积比进行稀释用于芯片板的洗涤,于4℃储存。

3)配制标准工作液:复溶工作液按照1:9的体积比例稀释10×浓缩标准液,现配现用。

### 1.3 试验方法

#### 1.3.1 样品前处理

移取 $1.00 \pm 0.05$  mL牛奶样品至50 mL聚苯乙烯离心管中,加入6 mL乙酸乙酯,2 500 r/m转速下涡旋振荡,5 000 r/m转速下离心10 min。离心后,移取3 mL乙酸乙酯至10 mL干净干燥的玻璃试管中,于50℃下用氮吹仪吹干。加入1 mL正己烷,用振荡仪(2 000 r/m)振荡1 min。再加入500  $\mu\text{L}$ 复溶工作液,用振荡仪(2 000 r/m)振荡3 min。移入2 mL聚苯乙烯于离心管中,在

5 000 r/m 转速条件下离心 10 min。去除上层有机相,取下层水相 25  $\mu\text{L}$  用于分析。

### 1.3.2 检测牛奶中四种兽药残留

采用 ELISA 可视化微阵列芯片试剂盒同时检测牛奶中氟喹诺酮、四环素、链霉素和林可霉素残留。本试验检测方法按照试剂盒的说明书进行。方法概要如下:

- 1) 使用前,将试剂盒置于室温(20~25  $^{\circ}\text{C}$ )下平衡 30 min 以上,摇匀所有液体试剂并避光储存。
- 2) 在微孔支架中插入足够数量的芯片微孔条,以容纳所有标准品、对照品和样品。并按照对应微孔按序编号,每个标准品、对照品和样品均做双孔平行。
- 3) 加样:依次加入 25  $\mu\text{L}$  样品或标准品和 25  $\mu\text{L}$  抗体工作液到各自的微孔中,用盖板膜封板,轻轻振荡混匀,25  $^{\circ}\text{C}$  600 r/m 振荡反应 30 min。
- 4) 洗板:将液体从孔中倒出,然后将微孔支架上下颠倒 3 次,放在吸水纸上以完全除去液体。用 250~300  $\mu\text{L}$  洗涤缓冲液填充所有微孔,并如上步

骤中所述倒出液体,重复洗涤 3 次。

5) 向每个孔中加入 50  $\mu\text{L}$  二抗溶液,用盖板膜封板,轻轻振荡混匀,37  $^{\circ}\text{C}$  600 r/m 振荡速度下反应 30 min。取出并重复洗板操作。

6) 显色:将显色液 A 和显色液 B 以 1:1 混合均匀。每孔加入混合液 50  $\mu\text{L}$ ,37  $^{\circ}\text{C}$  600r/m 避光孵育 12 min。重复洗板操作。

7) 测定:对于比色成像和信号采集,使用微阵列定制的芯片扫描仪(灰度从 0 到 65,535 任意单位,分辨率为 3 200 dpi)扫描和分析 96 孔板,同时进行成像和数据采集,检测结果报告将自动生成。

本试验所采用的试剂盒对牛奶中氟喹诺酮、四环素、链霉素和林可霉素残留的检测限(Limit of detection, LOD)分别为 5.00、10.00、10.00 和 10.00  $\mu\text{g}/\text{L}$ ,低于检测限则判定为未检出。本试验首先对试剂盒的相关参数进行验证分析,以确保试验的准确性。试验中 4 种兽药标准品浓度见表 1,试剂盒相关参数见表 2。

表 1 四种兽药标准品质量浓度

Table 1 Standard concentrations of four different veterinary drugs  $\mu\text{g}/\text{L}$

标准液 Standard liquid	氟喹诺酮 Quinolones	四环素 Tetracyclines	链霉素 Streptomycin	林可霉素 Lincomycin
标准品 1 Standard product 1	0.0	0.0	0.0	0.0
混合标准品 2 Mixed standard product 2	1.6	5.0	2.0	1.6
混合标准品 3 Mixed standard product 3	4.8	10.0	6.0	4.0
混合标准品 4 Mixed standard product 4	14.4	20.0	18.0	8.0
混合标准品 5 Mixed standard product 5	43.2	40.0	54.0	20.0
混合标准品 6 Mixed standard product 6	129.6	80.0	162.0	50.0

### 1.3.3 试剂盒相关参数验证试验

氟喹诺酮、四环素、链霉素和林可霉素的标准溶液浓度为 1 000  $\mu\text{g}/\text{L}$ ,向 1 mL 牛奶样品中添加标准溶液体积为 20  $\mu\text{L}$ ,牛奶样品中氟喹诺酮、四环素、链霉素和林可霉素加标浓度为 20  $\mu\text{g}/\text{L}$ 。随机选取 24 份牛奶样品,每份样品进行 2 次平行

试验。

### 1.4 统计方法

每份牛奶样品进行 2 个平行测定,平均值用于计算兽药的残留水平。使用 MiELISA 软件(MiELISA v 1.11,南京祥中生物科技有限公司)自动进行图像分析和定量分析。

表2 试剂盒相关参数

Table 2 Related parameters of experiment kit used

加标兽药 Veterinary drug	灵敏度/ $(\mu\text{g/L})$ Sensitivity	检测限/ $(\mu\text{g/L})$ Limit of detection	回收率/% Recovery	相对标准偏差/% Relative standard deviation
氟喹诺酮 Quinolones	0.05	5.00	70~120	<15
四环素 Tetracyclines	0.08	10.00	70~120	<15
链霉素 Streptomycin	0.05	10.00	70~120	<15
林可霉素 Lincomycin	0.05	10.00	70~120	<15

## 2 结果与分析

### 2.1 试剂盒的相关参数验证

验证试剂盒的相关参数的结果表明:氟喹诺酮测定浓度 17.02~23.41  $\mu\text{g/L}$ ,回收率 85%~117%;四环素测定浓度 17.00~23.61  $\mu\text{g/L}$ ,回收率 85%~118%;链霉素测定浓度 16.34~25.5  $\mu\text{g/L}$ ,回收率 82%~128%;林可霉素测定浓度 17.44~

21.88  $\mu\text{g/L}$ ,回收率 87%~109%。进一步统计发现(表3):牛奶样品中氟喹诺酮、四环素、链霉素和林可霉素测定浓度平均值分别为 19.11、20.15、21.22 和 18.82  $\mu\text{g/L}$ ,回收率平均值分别为 95.53%、94.94%、106.8%和 94.11%。根据我国国家标准(GB/T 27404—2008)<sup>[24]</sup>,这些数值都符合 ELISA 方法中限定的回收值范围,说明该试剂盒测定结果可信。

表3 四种兽药残留的检测结果( $n=24$ )Table 3 Test results of four types of veterinary drug residues ( $n=24$ )

加标兽药 Veterinary drug	加标终浓度/ $(\mu\text{g/L})$ Final concentration	测定浓度/ $(\mu\text{g/L})$ Determined concentration	回收率/% Recovery	相对标准偏差/% Relative standard deviation
氟喹诺酮 Quinolones	20.00	19.11	95.53	9.29
四环素 Tetracyclines	20.00	20.15	94.94	12.29
链霉素 Streptomycin	20.00	21.22	106.80	12.22
林可霉素 Lincomycin	20.00	18.82	94.11	4.89

### 2.2 我国市场上 UHT 灭菌乳和巴氏杀菌乳中四种兽药残留

我国农业农村部颁布的《全国奶业发展规划》将奶业产区划分为东北内蒙古产区(黑龙江、吉林、辽宁和内蒙古)、华北产区(河北、河南、山东和山西)、西部产区(陕西、甘肃、青海、宁夏、新疆和西藏)、南方产区(湖北、湖南、江苏、浙江、福建、安徽、江西、广东、广西、海南、云南、贵州和四川)和大城市周边产区(北京、天津、上海和重庆)等 5 个区域<sup>[25]</sup>。根据奶业产区划分特点,对从我国市场上收集的 150 份 UHT 灭菌乳和 50 份巴氏杀菌乳样品进行兽药残留分析。

兽药残留分析表明:收集的 150 份 UHT 灭菌乳样品中氟喹诺酮、四环素、链霉素和林可霉素的检出率分别为 0%、0%、3.3%和 0%,其中链霉素检出值为 12.49  $\mu\text{g/L}$ ;我国生产的 100 份 UHT 灭菌乳

样品中氟喹诺酮、四环素、链霉素和林可霉素的检出率分别为 0%、0%、2.0%和 0%,其中链霉素检出值为 12.49  $\mu\text{g/L}$ ,检出链霉素的牛奶样品均来源于南方产区(2 份);进口的 50 份 UHT 灭菌乳样品中氟喹诺酮、四环素、链霉素和林可霉素的检出率分别为 0%、0%、6.0%和 0%,其中链霉素检出值为 12.09  $\mu\text{g/L}$ ,检出链霉素的牛奶样品分别来源于德国、法国和澳大利亚(表 4)。收集的 50 份巴氏杀菌乳样品中氟喹诺酮、四环素、链霉素和林可霉素的检出率分别为 0%、0%、8.0%和 2.0%,其中链霉素和林可霉素检出值分别为 21.16 和 16.48  $\mu\text{g/L}$ ;兽药检出样品均来自国产巴氏杀菌奶,其中检出链霉素的牛奶样品分别来源于华北产区(2 份)、西部产区(1 份)和南方产区(1 份),检出林可霉素的牛奶样品来源于南方产区(1 份);进口巴氏杀菌奶中未检出兽药残留(表 5)。

表 4 我国市场上 UHT 灭菌乳中氟喹诺酮、四环素、链霉素和林可霉素残留分析

Table 4 Analysis of quinolones, tetracycline, streptomycin and lincomycin residues in UHT milk on Chinese market

奶源 Milk source	测定浓度/( $\mu\text{g/L}$ )															
	检出样品数 <sup>①</sup> /总样品数 No. of samples detected <sup>①</sup> / Total sample				最大 Maximum				中间 Median				平均值 Mean			
	氟喹 诺酮 Quino- lones	四环素 Tetracy- clines	链霉素 Strepto mycin	林可 霉素 Linco mycin	氟喹 诺酮 Quino lones	四环素 Tetracy clines	链霉素 Strepto mycin	林可 霉素 Linco mycin	氟喹 诺酮 Quino lones	四环素 Tetracy clines	链霉素 Strepto mycin	林可 霉素 Linco mycin	氟喹 诺酮 Quino lones	四环素 Tetracy clines	链霉素 Strepto mycin	林可 霉素 Linco mycin
东北内蒙古产区 Northeast Inner mongolia	0/15	0/15	0/15	0/15	<5	<10	<10	<10	<5	<10	<10	<10	<5	<10	<10	<10
华北产区 North China	0/18	0/18	0/18	0/18	<5	<10	<10	<10	<5	<10	<10	<10	<5	<10	<10	<10
西部产区 West China	0/25	0/25	0/25	0/25	<5	<10	<10	<10	<5	<10	<10	<10	<5	<10	<10	<10
南方产区 South China	0/33	0/33	2/33	0/33	<5	<10	12.49	<10	<5	<10	<10	<10	<5	<10	<10	<10
大城市周边产区 Surrounding areas of large cities	0/9	0/9	0/9	0/9	<5	<10	<10.00	<10	<5	<10	<10	<10	<5	<10	<10	<10
进口奶 Imported milk	0/50	0/50	3/50	0/50	<5	<10	12.09	<10	<5	<10	<10	<10	<5	<10	<10	<10
汇总 Summary	0/150	0/150	5/150	0/150	<5	<10	12.49	<10	<5	<10	<10	<10	<5	<10	<10	<10

注：①，检测样品中的兽药残留水平超过 LOD。下同。

Note: ①, the level of veterinary drug residue in the test sample exceeds the LOD. The same below.

表5 我国市场上巴氏杀菌乳样品中氟喹诺酮、四环素、链霉素和林可霉素残留分析  
Table 5 Analysis of quinolones, tetracycline, streptomycin and lincomycin residues in pasteurized milk samples on Chinese market

奶源 Milk source	检出样品数 <sup>①</sup> /总样品数 Sample detected <sup>①</sup> /Total sample				测定浓度/( $\mu\text{g/L}$ )				平均值 Mean				
	氟喹诺酮 Quino- lones	四环素 Tetracy- clines	链霉素 Strepto- mycin	林可霉素 Linco- mycin	氟喹诺酮 Quino- lones	四环素 Tetracy- clines	链霉素 Strepto- mycin	林可霉素 Linco- mycin		最大 Maximum	中间 Median		
东北内蒙古产区 Northeast inner mongolia	0/3	0/3	0/3	0/3	<5	<10	<10.00	<10	<5	<10	<10	<10	<10
华北产区 North China	0/7	0/7	2/7	0/7	<5	<10	19.13	<10	<5	<10	<10	<10	<10
西部产区 West China	0/6	0/6	1/6	0/6	<5	<10	11.97	<10	<5	<10	<10	<10	<10
南方产区 South China	0/17	0/17	1/17	1/17	<5	<10	21.16	<10	<5	<10	<10	<10	<10
大城市周边产区 Surrounding areas in large cities	0/14	0/14	0/14	0/14	<5	<10	<10.00	<10	<5	<10	<10	<10	<10
进口奶 Imported milk	0/3	0/3	0/3	0/3	<5	<10	<10.00	<10	<5	<10	<10	<10	<10
汇总 Summary	0/50	0/50	4/50	1/50	<5	<10	21.16	<10	<5	<10	<10	<10	<10

### 3 讨论

本试验牛奶样品中,氟喹诺酮、四环素、链霉素和林可霉素的检出率分别为0%、0%、4.5%和0.5%,其中:链霉素残留在华北产区、西部产区和南方产区检出率分别为8.0%、3.2%和6.0%;林可霉素残留在南方产区检出率为2%,其他产区检出率均为0%;检测氟喹诺酮和四环素残留量最高浓度均低于检测限,检测样品均来源于UHT灭菌乳样品;链霉素残留量最高浓度为21.16  $\mu\text{g/L}$ ,林可霉素残留量为16.48  $\mu\text{g/L}$ ,均来源于巴氏杀菌乳样品。4种兽药残留量最高浓度均低于欧盟、食品法典委员会和我国标准中规定的最大残留限量。已有研究相继报道了我国市场上牛奶样品中氟喹诺酮和四环素残留的情况:崔海辉<sup>[26]</sup>从浙江省内收集的140份巴氏杀菌乳样品中四环素检出率为2.8%;张养东等<sup>[22]</sup>2010年9月从我国市场上收集的94份UHT灭菌乳样品和26份巴氏杀菌乳样品,UHT灭菌乳样品中氟喹诺酮和四环素检出率为95.7%和0%,巴氏杀菌乳样品中氟喹诺酮和四环素检出率为61.5%和7.7%,所有液态奶样品中氟喹诺酮和四环素残留量最高浓度为20.49和47.7  $\mu\text{g/L}$ ;Han等<sup>[23]</sup>2011年6月从我国市场上收集的180份UHT灭菌乳样品中氟喹诺酮和四环素的检出率为100%和0%,其中氟喹诺酮和四环素残留量最高浓度为58.8  $\mu\text{g/L}$ 和<1.5。上述结果表明,液态奶中兽药残留量检出率因检测方法和检测限不同而存在差异,但仍可明显看出氟喹诺酮和四环素残留在液态奶中经常被检出。我国市场上也发现牛奶中一些其他兽药残留物,例如磺胺类和磺胺二甲嘧啶<sup>[12-13]</sup>。因此,有必要严格实施有效的监管措施,从生产源头上控制原料奶中兽药残留,严格执行牛奶质量安全监测体系,坚决贯彻落实食品安全有关部门的决策部署,从根本上保障牛奶的质量安全<sup>[27-28]</sup>。

### 4 结论

本研究发现2016年下半年和2017年上半年我国市场上UHT灭菌乳和巴氏杀菌乳样品中氟喹诺酮、四环素、链霉素和林可霉素残留情况污染的发生率较低,且均未超过欧盟、食品法典委员会和我国标准中规定的最大残留限量。但是,由于牛奶中某些兽药残留仍有检出,需要严格执行有效的监管和控制措施,残留物控制在安全水平以内,确保牛奶产品安全。

### 参考文献 References

- [1] Karamiosboo R, Miri R, Javidnia K, Kobarfard F. Simultaneous chloramphenicol and florfenicol determination by a validated DLLME-HPLC-UV method in pasteurized milk [J]. *Iranian Journal of Pharmaceutical Research*, 2016, 15 (3): 361-368
- [2] Laven R, Chambers P, Stafford K. Using non-steroidal anti-inflammatory drugs around calving: Maximizing comfort, productivity and fertility [J]. *Veterinary Journal*, 2012, 192 (1): 8-12
- [3] 刘丽娜. 浅谈动物产品兽药残留的危害及对策 [J]. 中国畜牧兽医文摘, 2018, 1(34): 24  
Liu L N. Talked about the harm and countermeasures of veterinary drug residues in animal products [J]. *Chinese Animal Husbandry and Veterinary Abstracts*, 2018, 1(34): 24 (in Chinese)
- [4] Zhou J, Nie W, Chen Y, Yang C J, Gong L, Zhang C, Chen Q, He L D, Feng X Y. Quadruplex gold immunochromatographic assay for four families of antibiotic residues in milk [J]. *Food Chemistry*, 2018(256): 304-310
- [5] Wang J, Leung D, Chow W, Chang J, Wong J W. Target screening of 105 veterinary drug residues in milk using UHPLC/ESI-Q-Orbitrap multiplexing data independent acquisition [J]. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 2018 (410): 5373-5389
- [6] Li J, Ren X L, Diao Y Y, Chen Y, Wang Q L, Jin W T, Zhou P, Fan Q Q, Zhang Y B, Liu H M. Multiclass analysis of 25 veterinary drugs in milk by ultra-high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. *Food Chemistry*, 2018(257): 259-264
- [7] Vliswanathan S, Rani C, Vijay A, Ho J A. Disposable electrochemical immunosensor for carcinoembryonic antigen using ferrocene liposomes and MWCNT screen-printed electrode [J]. *Biosensors & Bioelectronics*, 2009, 24(7): 1984-1989
- [8] Li F L, Guo Y M, Wang X Y, Sun X. Multiplexed aptasensor based on metal ions labels for simultaneous detection of multiple antibiotic residues in milk [J]. *Biosensors & Bioelectronics*, 2018, 115: 7-13
- [9] Roca M, Castillo M, Marti P, Althaus R L, Molina M P. Effect of heating on the stability of quinolones in milk [J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2010, 58(9): 5427-5431
- [10] Roca M, Villegas L, Kortabitarte M L, Althaus R L, Molina M P. Effect of heat treatments on stability of beta-lactams in milk [J]. *Journal of Dairy Science*, 2011, 94(3): 1155-1164
- [11] Fisher N R, Purnell C B, Kang J. Comment on effect of heating on the stability of quinolones in milk [J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2010, 58(24): 13020-13021
- [12] European Commission. Council Regulation (EU) No. 372010

- on pharmacologically active substances and their classification regarding maximum residue limits in foodstuffs of animal origin [J]. *Official Journal of the European Communities*, 2010; 1-72
- [13] CAC/MRL02—2011. Codex Alimentarius Commission. Maximum residue limits for veterinary drugs in foods, updated as at the 34<sup>th</sup> session of the Codex Alimentarius Commission [S]. Rome: Codex Alimentarius Commission, 2011
- [14] 中华人民共和国农业部. 农业部 235 号公告《动物性食品中兽药最高残留限量》[Z]. 北京: 农业部, 2002
- The Ministry of Agriculture, China. Announcement No. 235 of the Ministry of Agriculture; *Maximum Residue Limits of Veterinary Drugs in Animal Foods* [Z]. Beijing: Ministry of Agriculture, 2002 (in Chinese)
- [15] Unusan, Nurhan. Occurrence of chloramphenicol, streptomycin and tetracycline residues in ultra-heat-treatment milk marketed in Turkey [J]. *International Journal of Food Sciences and Nutrition*, 2009, 60(5): 359-364
- [16] 刘晓茂, 张进杰, 张守军, 曹亚平, 杨志伟. 双柱固相萃取净化-液相色谱-串联质谱法测定牛奶和奶粉中链霉素和双氢链霉素残留量[J]. 分析试验室, 2010, 29(10): 40-44
- Liu X M, Zhang J J, Zhang S J, Cao Y P, Yang Z Y. Determination of streptomycin and dihydrostreptomycin residues in milk and milk powder using dualsolid phase extraction clean up-liquid chromatography-tandem massspectrometry[J]. *Analytical Laboratory*, 2010, 29(10): 40-44 (in Chinese)
- [17] 奚茜, 张明洲, 李沐洁, 龚云飞, 王旻子, 陈宗伦, 王唯芬. 链霉素残留检测直接竞争 ELISA 法的建立[J]. 中国食品学报, 2013, 13(11): 124-131
- Xi Xi, Zhang M Z, Li M J, Gong Y F, Wang Y Z, Chen Z L, Wang W F. Development of dcELISA method for rapid detection of streptomycin residue in milk and honey [J]. *Chinese Journal of Food Science*, 2013, 13(11): 124-131 (in Chinese)
- [18] 杜兵耀, 文芳, 臧长江, 邵伟, 李昊, 张养东, 杨开伦, 余雄, 姜金都, 巩军. 氯霉素 ELISA 可视化微阵列芯片检测试剂盒评价研究[J]. 中国乳品工业, 2017, 45(5): 47-50
- Du B Y, Wen F, Zang C J, Shao W, Li H, Zhang Y D, Yang K L, Yu X, Jiang J D, Gong J. Evaluation techniques of detecting chloramphenicol by ELISA-based visualization microarray chip [J]. *Chinese Dairy Industry*, 2017, 45(5): 47-50(in Chinese)
- [19] Omahony J, Moloney M, Mcconnell R I, Benchikh E O, Lowry P, Furey A, Danaher M. Simultaneous detection of four nitrofurans metabolites in honey using a multiplexing biochip screening assay [J]. *Biosensors & Bioelectronics*, 2011, 26(10): 4076-4081
- [20] Li Z, Wen F, Li Z H, Zheng N, Jiang J D, Xu D K. Simultaneous detection of  $\alpha$ -lactalbumin,  $\beta$ -lactoglobulin and lactoferrin in milk by visualized microarray [J]. *BMC Biotechnology*, 2017, 17(1): 72
- [21] Li Z H, Li Z M, Jiang J D, Xu D K. Simultaneous detection of various contaminants in milk based on visualized microarray [J]. *Food Control*, 2017, 73: 994-1001
- [22] Zhang Y D, Zheng N, Han R W, Zheng B Q, Yu Z N, Li S L, Zheng S S, Wang J Q. Occurrence of tetracyclines, sulfonamides, sulfamethazine and quinolones in pasteurized milk and UHT milk in China's market [J]. *Food Control*, 2014, 36(1): 238-242
- [23] Han R W, Zheng N, Wang J Q, Zhen Y P, Li S L, Yu Q L. Survey of tetracyclines, sulfonamides, sulfamethazine, and quinolones in UHT milk in China market [J]. *Journal of Integrative Agriculture*, 2013, 12(7): 1300-1305
- [24] GB/T 27404—2008. 实验室质量控制规范食品理化检测[S]. 北京: 中国标准出版社, 2008
- GB/T 27404—2008. Laboratory quality control standard food physical and chemical testing [S]. Beijing: China Standard Press, 2008 (in Chinese)
- [25] 国家农业部. 关于印发《全国奶业发展规划(2016—2010年)》的通知[EB/OL]. (2017-01-11). <http://www.miit.gov.cn/n1146290/n4388791/c5458461/content.html>
- Ministry of Agriculture. Notice on printing and distributing *The National Dairy Development Plan 2016 — 2010* [EB/OL]. (2017-01-11). <http://www.miit.gov.cn/n1146290/n4388791/c5458461/content.html>(in Chinese)
- [26] 崔海辉. 浙江省部分地区鲜牛奶与消毒牛奶中氯霉素、四环素类抗生素残留的调查及检测分析[J]. 轻工科技, 2011, 27(6): 3-4
- Cui H H. Investigation and detection of chloramphenicol and tetracycline antibiotic residues in fresh milk and disinfected milk in some areas of Zhejiang Province [J]. *Light Industry Technology*, 2011, 27(6): 3-4 (in Chinese)
- [27] 国家农业部. 关于印发《全国遏制动物源细菌耐药行动计划(2017—2020年)》的通知[EB/OL]. (2017-06-23). [http://www.moa.gov.cn/govpublic/SYJ/201706/t20170623\\_5726086.htm](http://www.moa.gov.cn/govpublic/SYJ/201706/t20170623_5726086.htm)
- Ministry of Agriculture. Notice on printing and distributing *The National Action Plan for Combating Brady-Resistant Bacterial Resistance (2017 — 2020)* [EB/OL]. (2017-06-23). [http://www.moa.gov.cn/govpublic/SYJ/201706/t20170623\\_5726086.htm](http://www.moa.gov.cn/govpublic/SYJ/201706/t20170623_5726086.htm)(in Chinese)
- [28] 中国日报社. 农业部:我国兽药残留超标问题综合治理取得积极成效[EB/OL]. (2018-01-17) <https://baijiahao.baidu.com/s?id=15898048444788609212&wfr=spider&for=pc>
- China Daily. Ministry of Agriculture: The comprehensive management of veterinary drug residues in China has achieved positive results [EB/OL]. (2018-01-17). <https://baijiahao.baidu.com/s?id=15898048444788609212&wfr=spider&for=pc>(in Chinese)