

温度对茶树柿广翅蜡蝉越冬卵发育的影响

金银利¹, 马全朝¹, 郑艳磊¹, 张招阳¹, 乔利¹, 史洪中¹, 封洪强^{2*}

(1. 信阳农林学院, 信阳 464000; 2. 河南省农业科学院植物保护研究所, 郑州 450002)

摘要 为了研究温度对茶树柿广翅蜡蝉越冬卵发育的影响, 设置 13、16、19、22、25℃ 和 28℃ 不同恒温 and 室外自然变温(日均温度波动范围 8.87~26.40℃, 日均温度平均值 16.89℃) 处理茶树柿广翅蜡蝉越冬卵, 监测其发育历期和孵化情况。结果表明, 在上述 6 个不同恒温条件下, 柿广翅蜡蝉越冬卵的发育历期分别为 62.28、28.58、13.51、10.11、10.33 d 和 7.07 d, 随着温度的升高, 越冬卵发育历期逐渐缩短, 温度与柿广翅蜡蝉越冬卵的发育速率关系满足方程: $y = -0.086 + 0.008x$, 得出越冬卵发育起点温度为 10.80℃, 有效积温为 125 d·℃。在自然变温条件下, 发现越冬卵从 4 月 10 日开始孵化, 到 5 月 5 日累计孵化率达到 73.37%, 揭示了茶树柿广翅蜡蝉越冬卵在这段时间范围内陆续孵化出 1 龄若虫。本研究对信阳茶区茶树柿广翅蜡蝉若虫发生期的预测预报及其防控策略的制定具有重要的指导意义。

关键词 柿广翅蜡蝉; 茶树; 温度; 越冬卵; 发育历期

中图分类号: S 433.3 **文献标识码:** A **DOI:** 10.16688/j.zwbh.2022691

Effects of temperature on the development of overwintering eggs of *Ricania sublimbata* Jacobi on the tea plant

JIN Yinli¹, MA Quanchao¹, ZHENG Yanlei¹, ZHANG Zhaoyang¹, QIAO Li¹,
SHI Hongzhong¹, FENG Hongqiang^{2*}

(1. Xinyang Agriculture and Forestry University, Xinyang 464000, China; 2. Institute of Plant Protection, Henan Academy of Agricultural Sciences, Zhengzhou 450002, China)

Abstract In order to clarify the effects of temperature on the development of overwintering eggs of *Ricania sublimbata* Jacobi, the developmental duration and egg hatching rate of this pest were investigated at constant temperatures of 13, 16, 19, 22, 25℃ and 28℃ in the laboratory and under natural temperature outdoors (the daily mean temperature ranged from 8.87℃ to 26.40℃, with a daily average temperature of 16.89℃). The results showed that the developmental durations of the overwintering eggs at constant temperatures were 62.28, 28.58, 13.51, 10.11, 10.33 and 7.07 days, respectively, and the higher the temperature, the shorter the developmental duration of the overwintering eggs. The relationship between temperatures and development rates of *R. sublimbata* overwintering eggs satisfied the equation: $y = -0.086 + 0.008x$. The developmental threshold temperature was 10.80℃ and the effective accumulated temperature was 125 degree-days. The overwintering eggs of *R. sublimbata* begun to hatch on April 10 under natural temperature conditions outdoors, and the cumulative hatching rate reached 73.37% on May 5. The results revealed that the first-generation nymphs hatched from overwintering eggs of *R. sublimbata* during this period in Xinyang tea area. This study laid a theoretical basis for the prediction of occurrence period and the control strategy of this pest in Xinyang tea-producing area.

Key words *Ricania sublimbata*; tea plant; temperature; overwintering eggs; developmental duration

柿广翅蜡蝉 *Ricania sublimbata* Jacobi 属半翅目 Hemiptera 广翅蜡蝉科 Ricaniidae, 主要分布在我国湖南、湖北、黑龙江、山东、河南、浙江、四川、江

西、安徽、福建、广东和广西等省(区)^[1-3]。该虫寄主植物范围十分广泛, 不但为害柑橘、苹果、石榴、柿、李、桃、板栗、椿、女贞、构树、石楠和桂花等果木园林

收稿日期: 2022-11-03

修订日期: 2022-12-11

基金项目: 河南省科技攻关项目(172102110235); 河南省卓越农林人才教育基地建设项目; 信阳农林学院作物绿色防控与品质调控科技创新团队(XNKJTD-007); 信阳农林学院科研促进教学专项(kj-2021023)

* 通信作者 E-mail: feng_hq@163.com

植物,还取食中药材、杂草和茶树等^[4-5]。近年来,随着信阳茶区栽培方式和茶园生态环境的变化,柿广翅蜡蝉的分布逐年扩大,并在茶园间作寄主林木和茶树间转移为害,目前已经成为为害茶树的重要枝梢害虫^[6]。柿广翅蜡蝉在信阳茶区一年发生2代,若虫和成虫均可刺吸为害茶树上部的枝条及嫩梢。柿广翅蜡蝉成虫产卵也可对茶树造成危害,其偏向于在1~2年生的茶树枝条内产卵,产卵刻痕外覆盖一层厚厚的白色棉絮状蜡丝,影响茶树长势,容易形成风折枝,而且会推迟茶树萌芽,造成茶叶减产,严重影响茶叶品质^[6]。

目前,对柿广翅蜡蝉的研究主要集中在其寄主植物范围、为害特点、生物学特性、发生规律与防治方法等方面^[4-9]。刘曙雯等调查发现,柿广翅蜡蝉越冬产卵寄主96种,越冬卵刻痕呈聚集分布,并根据刻痕长度和刻痕内卵量,列出了其寄主抗虫性序列^[4]。俞素琴等报道,柿广翅蜡蝉在婺源茶园以阶梯茶园、有间作植物及近林地茶园的茶树上较易见^[5]。金银利等的研究表明,粗放管理的茶园内茶枝的受害率显著高于精细管理的茶园,柿广翅蜡蝉成虫偏向于在直径为0.20~0.30 cm的茶枝上产卵越冬,产卵刻痕顶端至茶枝芽头的平均距离为7.22 cm,产卵刻痕长度平均值为1.35 cm^[6]。早期研究报道,柿广翅蜡蝉是果树的重要害虫,柑橘是其嗜好寄主,防治措施建议选用抗虫品种,加强果园管理与药剂防治相结合^[7-9]。罗天相等对宜春市橘园柿广翅蜡蝉的发育起点温度和有效积温进行了研究,发现该虫全世代的发育起点温度为 $(12.6 \pm 0.8)^\circ\text{C}$,有效积温为 $(1\ 430.8 \pm 111.8) \text{ d} \cdot ^\circ\text{C}^{[10]}$ 。

温度是影响昆虫发育、种群分布和生物学特性的重要生态因子,对昆虫种群发生期和发生量的变化具有重要的意义^[11-14]。为了进一步明确温度对茶树柿广翅蜡蝉越冬卵发育的影响,本文研究了不同恒温条件和自然变温条件对柿广翅蜡蝉越冬卵发育历期和孵化率的影响,并得出越冬卵的发育起点温度和有效积温,以期对柿广翅蜡蝉越冬种群在茶园发生期的预测预报及有效防控策略的制定提供参考依据。

1 材料与方法

1.1 供试虫源

带有柿广翅蜡蝉越冬卵的茶枝,于2019年3月16

日采自河南省信阳市十三里桥乡小庙村($32^\circ 01' \text{ N}$, $113^\circ 59' \text{ E}$),置于 4°C 冰箱中保存备用。

1.2 不同恒温条件下茶树柿广翅蜡蝉越冬卵发育研究

将带有柿广翅蜡蝉越冬卵的枝条,单枝置于50 mL塑料管内,加入约30 mL水,并用脱脂棉包裹茶枝保湿^[15]。每处理3个重复,每重复3根带卵刻痕茶枝(每处理茶枝的总卵量不少于100粒,具体卵量见表1)。分别置于13、16、19、22、25 $^\circ\text{C}$ 和28 $^\circ\text{C}$,光周期L//D=14 h//10 h,相对湿度RH(75 \pm 5)%的恒温恒湿培养箱(智能人工气候箱RTOP-310Y,浙江托普云农科技股份有限公司)内,每天观察柿广翅蜡蝉越冬卵的孵化情况,记录孵化量和孵化时间。计算每处理3个重复茶枝卵的平均孵化率和每处理茶枝总卵量的累计孵化率。

1.3 自然变温条件下茶树柿广翅蜡蝉越冬卵发育研究

参考上述方法处理保鲜带卵茶枝,之后,将其置于顶盖有洞并覆盖有纱网的塑料盒内(降雨时让雨水进入,降雨停止后及时倒掉盒内雨水),置于室外自然条件。每天观察记录柿广翅蜡蝉越冬卵孵化若虫数量及孵化时间,自然温度以室外处理点悬挂的温湿度记录仪(优利德(UNI-T)UT330B)每小时记录的数据平均值为准。试验从2019年3月19日开始,到5月15日观察结束,并检测茶枝内剩余卵量。

1.4 数据处理与统计分析

采用Microsoft Excel 2010和R软件(R version 3.2.3)进行数据统计分析。不同温度条件下柿广翅蜡蝉越冬卵发育历期差异分析因无法满足ANOVA设计的假设,采用R内置函数kruskal.test完成Kruskal-Wallis检验,利用dunn.test进行各温度处理间差异多重比较。不同恒温条件下柿广翅蜡蝉越冬卵的孵化率经过反正弦平方根转换后采用Duncan氏新复极差法进行不同处理间的差异显著性检验。依据有效积温理论,将不同温度下柿广翅蜡蝉越冬卵发育历期进行加权平均,求出各处理越冬卵的平均发育历期 D ,再将其换算成相应温度下的平均发育速率 $v(v=1/D)$,使用一元线性回归法建立不同温度下越冬卵的发育速率的预测模型($v=a+bT$, a 、 b 为模型参数, v 为越冬卵的发育速率, T 为温度),通过 F 检验确定线性模型的拟

合效果^[16],即线性($y=a+bx$)拟合温度(x)与茶树柿广翅蜡蝉越冬卵发育速率(y)之间的关系,从而得出柿广翅蜡蝉越冬卵的发育起点温度($C=-a/b$)和有效积温($K=1/b$)。

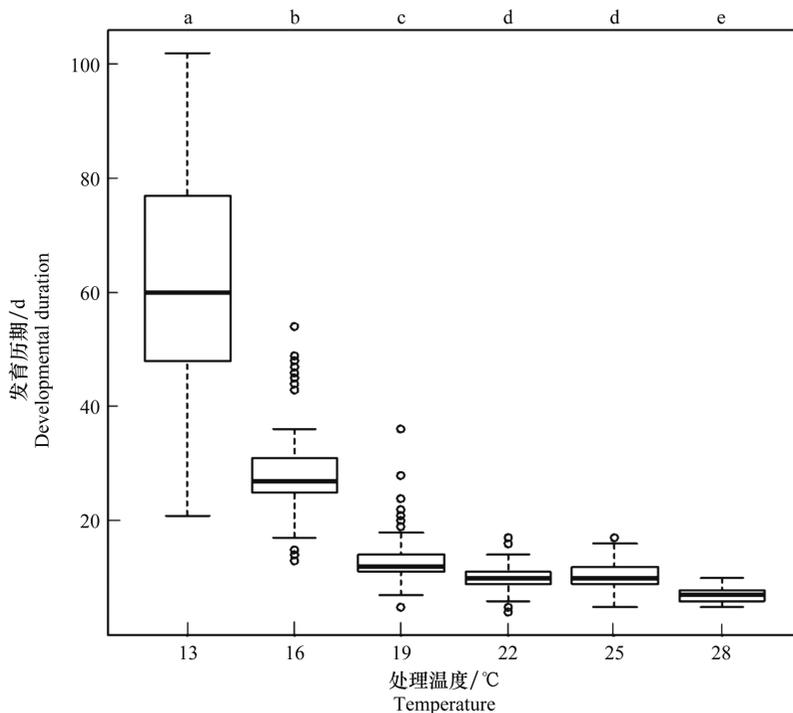
2 结果与分析

2.1 不同恒温条件下茶树柿广翅蜡蝉越冬卵发育

2.1.1 不同恒温条件下茶树柿广翅蜡蝉越冬卵的发育历期

从图 1 可以看出,随着温度的升高,柿广翅蜡蝉

越冬卵的发育历期逐渐缩短。在 13、16、19、22、25℃和 28℃不同恒温条件下,柿广翅蜡蝉越冬卵的发育历期分别为 62.28、28.58、13.51、10.11、10.33 d 和 7.07 d;其中,13℃低温条件处理的越冬卵的发育历期显著长于其他温度处理($P<0.05$),22℃与 25℃下柿广翅蜡蝉越冬卵的发育历期间无显著差异($P>0.05$),但均与其他温度下越冬卵的发育历期差异显著($P<0.05$),13、16、19℃和 28℃下柿广翅蜡蝉越冬卵的发育历期均有显著差异($P<0.05$) (图 1)。



图中标注的不同小写字母表示在0.05水平上差异显著。
Values indicated by different lowercase letters are significantly different at 0.05 level.

图 1 不同恒温处理下柿广翅蜡蝉越冬卵的发育历期

Fig. 1 The developmental durations of overwintering eggs of *Ricania sublimbata* under different constant temperatures

2.1.2 不同恒温条件下茶树柿广翅蜡蝉越冬卵的孵化率

在 19、22、25℃和 28℃恒温条件下,柿广翅蜡蝉越冬卵均在处理的第 5 天开始孵化,其中,28℃恒温处理的越冬卵在处理第 10 天累计孵化率达到 90.27%,22℃和 25℃恒温处理的越冬卵在处理的第 17 天累计孵化率分别达到 91.22%和 88.84%,而 19℃恒温处理的越冬卵在处理的第 36 天累计孵化率才达到 58.74%。13℃和 16℃恒温条件下,柿广翅蜡蝉越冬卵分别在处理的第 21 天和第 13 天开始孵化,其中,16℃恒温处理的越冬卵在处理的第

54 天的累计孵化率达到 82.08%,而 13℃恒温处理的越冬卵在处理的第 102 天累计孵化率达到 96.92%(图 2)。

13、16、19、22、25℃和 28℃不同恒温条件下柿广翅蜡蝉越冬卵的平均孵化率分别为 97.04%、85.86%、56.56%、79.03%、76.20%和 92.52%。经过差异显著性分析发现,13℃恒温处理的越冬卵平均孵化率显著高于 19℃恒温处理($P<0.05$),但与其他温度处理间无显著差异($P>0.05$),22、25℃和 28℃恒温处理间越冬卵的平均孵化率没有显著差异($P>0.05$)(表 1)。

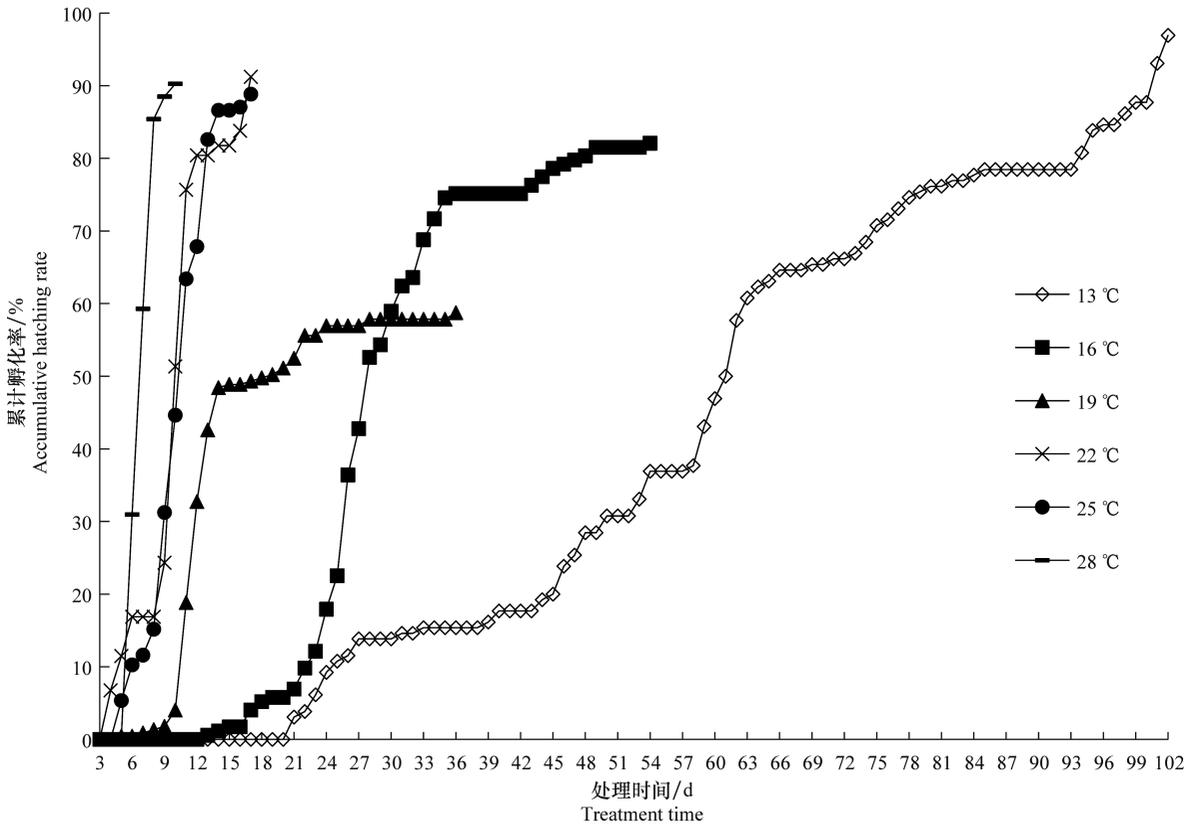


图 2 柿广翅蜡蝉越冬卵在不同恒温条件的累计孵化率

Fig. 2 The accumulative hatching rates of overwintering eggs of *Ricania sublimbata* under different constant temperatures

表 1 柿广翅蜡蝉越冬卵在不同恒温条件下的平均孵化率¹⁾

Table 1 The average hatching rates of overwintering eggs of *Ricania sublimbata* under different constant temperatures

温度/℃ Temperature	总卵量/粒 Total number of eggs	孵化量/粒 Number of hatching eggs	平均孵化率/% Average hatching rates
13	130	126	(97.04±1.22)a
16	173	142	(85.86±8.08)a
19	223	131	(56.56±10.64)b
22	148	135	(79.03±10.27)ab
25	224	199	(76.20±11.50)ab
28	226	204	(92.52±4.49)a

1) 表中数据为平均值±标准误。同列具有相同小写字母者表示在 0.05 水平上差异不显著。

Data in the table are mean±SE. Values followed by the same lowercase letters in the same column are not significantly different at 0.05 level.

2.1.3 茶树柿广翅蜡蝉越冬卵的发育起点温度和有效积温

利用线性模型($y=a+bx$)模拟温度(x)与茶树柿广翅蜡蝉越冬卵发育速率(y)之间的关系,满足方程: $y=-0.086+0.008x$ ($R^2=0.953$; $F=80.36$; $df=1,4$; $P=0.00086$),从而可以得出,2019年3月16日采自河南省信阳市十三里桥乡小庙村的茶树柿广翅蜡蝉越冬卵的发育起点温度($C=-a/b$)和有效积温($K=1/b$)分别为 10.80℃和 125 d·℃

(图 3)。

2.2 自然变温条件下茶树柿广翅蜡蝉越冬卵发育规律

从图 4 可以看出,观察记录试验期间,日平均温度的波动范围为 8.87~26.40℃,日平均温度的平均值为 16.89℃。2019年3月16日采自河南省信阳市十三里桥乡小庙村的茶树柿广翅蜡蝉越冬卵,3月19日处理后置于室外自然变温条件下,逐日观察发现卵于4月10日开始孵化,始见1龄若虫,到5

月 5 日累计孵化率达到 73.37%, 历时 26 d, 之后到 5 月 15 日观察结束未见若虫孵化。说明了茶树柿

广翅蜡蝉越冬卵在这段时间范围内陆续孵化出 1 龄若虫。

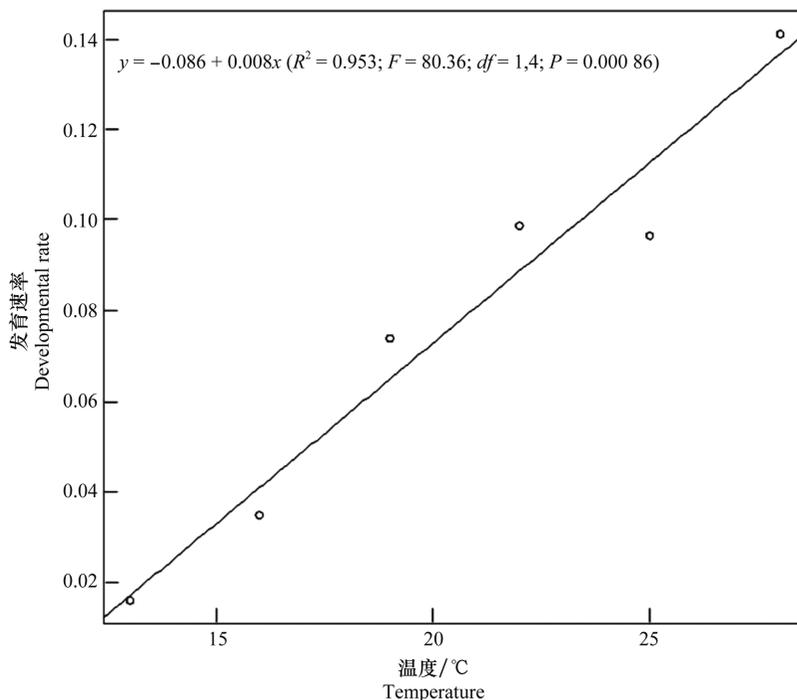


图 3 温度(x)与柿广翅蜡蝉越冬卵发育速率(y)的关系

Fig. 3 The relationship between temperature (x) and the developmental rate (y) of overwintering eggs of *Ricania sublimbata*

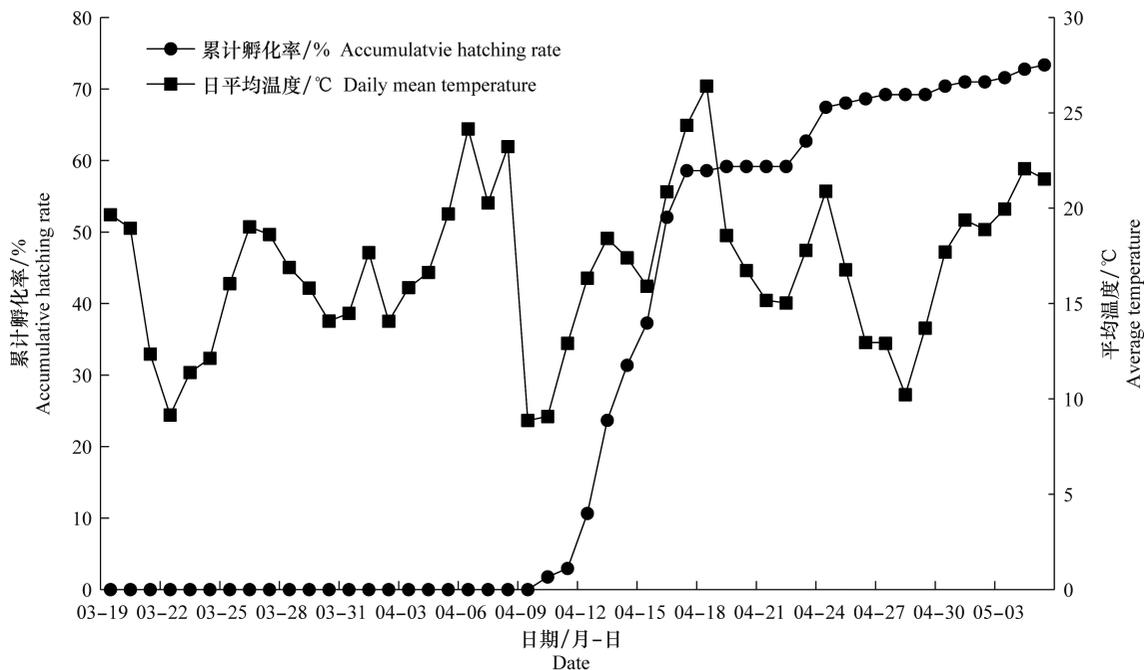


图 4 2019 年柿广翅蜡蝉越冬卵在自然变温条件下的累计孵化率

Fig. 4 The accumulative hatching rates of overwintering eggs of *Ricania sublimbata* under different natural temperatures in 2019

3 结论与讨论

昆虫作为变温动物,对温度的变化十分敏感。

因此,研究温度变化对昆虫发育速率的影响具有重要的理论和实践意义。研究报道,在最适宜的温度范围内,昆虫的发育速率随着温度的升高呈现线性

增加,所以使用直线拟合来描述温度对昆虫发育速率的影响,便于得出昆虫的发育起点温度和有效积温^[11-14]。本文通过不同恒温处理,研究了温度对茶树柿广翅蜡蝉越冬卵发育的影响,结果表明随着温度的升高,柿广翅蜡蝉越冬卵的发育历期逐渐缩短,发育速率也随着温度的升高而加快。其中,13℃较低温度条件处理的越冬卵的发育历期显著长于其他温度处理,且在处理的第21天开始孵化,第102天的累计孵化率达到96.92%,孵化率最高;28℃较高温度条件处理的越冬卵的发育历期显著短于其他温度处理,且在处理的第5天开始孵化,第10天的累计孵化率就达到了90.27%。利用线性模型模拟温度与茶树柿广翅蜡蝉越冬卵发育速率之间的关系,得出茶树柿广翅蜡蝉越冬卵(2019年3月16日采自河南省信阳市十三里桥乡小庙村)的发育起点温度和有效积温分别为10.80℃和125 d·℃,同时,也说明了本研究处理温度在茶树柿广翅蜡蝉越冬卵发育的适宜温度范围内。

变温条件不仅能够扩大昆虫发育的温度范围,还能够使其在一定程度上忍耐较低的温度^[17]。本研究发现,在室外自然变温条件(日均温度波动范围:8.87~26.40℃,日均温度平均值为16.89℃)下,茶树柿广翅蜡蝉越冬卵在4月10日开始孵化出若虫,到5月5日累计孵化率达到73.37%,历时26 d,揭示了信阳毛尖茶区茶树柿广翅蜡蝉第1代若虫会在这段时间范围内陆续孵化。本研究表明了自然变温条件下柿广翅蜡蝉越冬卵的孵化时间与罗天相^[10]研究结果基本一致。本研究监测发现,柿广翅蜡蝉第1代若虫的发生期正处于信阳毛尖春茶的采摘期(通常3月底—5月中旬),初孵的若虫聚集在茶树的嫩芽叶背面和嫩枝梢上刺吸取食汁液,导致新梢生长发育不良、叶芽发黄脱落,若虫体背和腹末分泌白色蜡质,污染叶片和枝梢,严重影响茶树的产量和品质^[6]。所以,确定茶树柿广翅蜡蝉第1代若虫的防治适期并制定相应的防控策略尤为重要。

本文不仅通过恒温对茶树柿广翅蜡蝉越冬卵发育的影响,计算出了柿广翅蜡蝉越冬卵的发育起点温度和有效积温,还通过监测自然变温对越冬卵孵化的影响,得出了茶树柿广翅蜡蝉第1代

若虫的孵化时间,从而有利于确定该虫的防治适期。本研究可为信阳毛尖茶区茶树柿广翅蜡蝉的监测预警和防控策略的制定提供一定的参考依据。

参考文献

- [1] 张汉鹄. 我国茶树蜡蝉区系及其主要种类[J]. 茶叶科学, 2004, 24(4): 240-242.
- [2] 徐德良. 茶树蜡蝉种群生态及控制技术[D]. 苏州: 苏州大学, 2009.
- [3] 林江. 柿广翅蜡蝉生物学及其与相近种类的形态学比较研究[D]. 杨凌: 西北农林科技大学, 2011.
- [4] 刘曙雯, 嵇保中, 张凯, 等. 柿广翅蜡蝉越冬卵刻痕的分布与危害特点[J]. 南京林业大学学报(自然科学版), 2007, 31(3): 57-62.
- [5] 俞素琴, 徐爱珍, 汪荣灶. 柿广翅蜡蝉寄主植物的初步研究[J]. 安徽农学通报, 2018, 24(23): 55-56.
- [6] 金银利, 马全朝, 张方梅, 等. 信阳茶区柿广翅蜡蝉越冬种群的发生与为害规律[J]. 茶叶科学, 2019, 39(5): 595-601.
- [7] 罗晓明, 罗天相, 刘莎. 柿广翅蜡蝉的发生与防治[J]. 河南农业科学, 2004(3): 41-42.
- [8] 刘永生, 张清良. 柿广翅蜡蝉生物学特性及防治初报[J]. 亚热带植物科学, 2001, 30(2): 39-41.
- [9] 徐冠军, 钟仕田. 柿广翅蜡蝉生物学与防治的初步研究[J]. 昆虫知识, 1988(2): 93-95.
- [10] 罗天相. 柿广翅蜡蝉发育起点温度和有效积温研究[J]. 湖北农业科学, 2003(15): 76-77.
- [11] 时培建, 池本孝哉, 戈峰. 温度与昆虫生长发育关系模型的发展与应用[J]. 应用昆虫学报, 2011, 48(5): 1149-1160.
- [12] 朱莹, 顾辉杰, 杨益众. 玉米田三种昆虫发育速率与温度曲线拟合[J]. 山东农业大学学报(自然科学版), 2019, 50(1): 124-127.
- [13] DAVIDSON J. On the relationship between temperature and rate of development of insects at constant temperatures [J]. Journal of Animal Ecology, 1944, 13(1): 26-38.
- [14] WU T H, SHIAO S F, OKUYAMA T. Development of insects under fluctuating temperature: a review and case study [J]. Journal of Applied Entomology, 2015, 139(8): 592-599.
- [15] 金银利, 马全朝, 张绍杰, 等. 圆纹广翅蜡蝉产卵规律及温度对越冬卵发育的影响[J]. 茶叶科学, 2020, 40(6): 807-816.
- [16] 张胜男, 李国平, 田彩红, 等. 桃蛀螟卵巢发育过程及其与温度的关系[J]. 植物保护, 2021, 47(5): 134-138.
- [17] 潘飞, 陈锦才, 肖彤斌, 等. 变温对昆虫生长发育和繁殖影响的研究进展[J]. 环境昆虫学报, 2014, 36(2): 240-246.

(责任编辑: 田 喆)

氟氟醚菌唑在黄瓜上的残留及膳食风险评估

刘荣荣^{1,2}, 郭庆², 刘慧君^{1*}, 吴小虎^{2*}, 徐军²,
潘兴鲁², 董丰收², 郑永权²

(1. 北京农学院, 北京 102206; 2. 中国农业科学院植物保护研究所, 植物病虫害综合治理全国重点实验室, 北京 100193)

摘要 为评价氟氟醚菌唑在黄瓜中残留产生的膳食摄入风险,于2017年—2018年进行了2年12地规范残留试验,建立了黄瓜中氟氟醚菌唑的超高效液相色谱-串联质谱(UPLC-MS/MS)分析检测方法,并对我国一般人群进行了膳食摄入风险评估。样品经乙腈提取,C18净化,UPLC-MS/MS检测,外标法定量。结果表明:在0.01~1 mg/kg添加水平下,氟氟醚菌唑的平均回收率为90%~108%,相对标准偏差(relative standard deviation, RSD)为3%~12%,定量限(limit of quantification, LOQ)为0.01 mg/kg。400 g/L氟氟醚菌唑悬浮剂按有效成分150 g/hm²施药3次,于末次施药后1、3、5 d采样测定,黄瓜中氟氟醚菌唑残留量为<0.01~0.64 mg/kg。膳食摄入风险评估结果显示:我国一般人群的氟氟醚菌唑国家估计每日摄入量(national estimates of daily intake, NEDI)为0.217 0 mg,风险商(risk quotient, RQ)为6.9%,表明氟氟醚菌唑在黄瓜中残留不会对一般人群健康造成不可接受的风险。

关键词 氟氟醚菌唑; 黄瓜; 超高效液相色谱-串联质谱; 残留; 风险评估

中图分类号: S 481.8 **文献标识码:** A **DOI:** 10.16688/j.zwbh.2022682

Residue and dietary risk assessment of mefentrifluconazole in cucumber

LIU Rongrong^{1,2}, GUO Qing², LIU Huijun^{1*}, WU Xiaohu^{2*}, XU Jun²,
PAN Xinglu², DONG Fengshou², ZHENG Yongquan²

(1. Beijing University of Agriculture, Beijing 102206, China; 2. State Key Laboratory for Biology of Plant Disease and Insect Pests, Institute of Plant Protection, Chinese Academy of Agricultural Sciences, Beijing 100193, China)

Abstract In order to evaluate dietary intake risk of mefentrifluconazole residues in cucumber, the residual trial of mefentrifluconazole in cucumber were carried out in 12 places for two years in 2017 and 2018, respectively. An analytical method for residue determination of mefentrifluconazole in cucumber was developed by ultra performance liquid chromatography tandem mass spectrometry (UPLC-MS/MS). The dietary intake risk assessment to general population was investigated. The samples were extracted by acetonitrile, purified by C18, detected by UPLC-MS/MS, and quantified by external standard method. The results showed that the average recoveries of mefentrifluconazole ranged from 90% to 108% with relative standard deviations (RSD) of 3% to 12%, and the limit of quantification (LOQ) in cucumber was 0.01 mg/kg at 0.01–1 mg/kg spiked level. Mefentrifluconazole suspension of 400 g/L was applied three times with active ingredient 150 g/hm². The residue of mefentrifluconazole in cucumber was <0.01–0.64 mg/kg 1, 3 and 5 days after the last application. Dietary intake risk assessment showed that the national estimated daily intake (NEDI) of mefentrifluconazole was 0.217 0 mg for the general population, and the risk quotient (RQ) was 6.9%, which demonstrated that the terminal residue of mefentrifluconazole in cucumber would not cause unacceptable risk to the health of the general population.

Key words mefentrifluconazole; cucumber; UPLC-MS/MS; residue; risk assessment

氟氟醚菌唑(mefentrifluconazole), (2RS)-2-[4-(4-氯苯氧基)- α,α,α -三氟-邻甲苯基]-1-(1H-1,2,4-三唑-1-基)-丙-2-醇,是巴斯夫股份公司研发的新型三唑类杀菌剂,其作用机理是阻止麦角甾醇的生物

合成,抑制病菌细胞生长^[1-2]。因其具有良好的内吸传导性,广谱、高效^[3],被用于防治大田作物、蔬菜、果树等作物上的锈病、纹枯病、白粉病以及炭疽病等多种真菌病害^[1]。目前,我国已批准氟氟醚菌唑在

收稿日期: 2022-11-01 修订日期: 2022-12-03

基金项目: 国家农产品质量安全风险评估计划(GJFP20210201)

* 通信作者 E-mail:刘慧君 huijunliu78@163.com;吴小虎 xhwu@ippcaas.cn

黄瓜、苹果、芒果、马铃薯、柑橘、葡萄、番茄和香蕉等作物上登记使用^[4],主要用于防治靶斑病、白粉病、褐斑病、炭疽病、早疫病等病害。但我国尚未制定氯氟醚菌唑在相关作物上的最大残留限量(maximum residue limits, MRL)值,亟须开展氯氟醚菌唑在相关作物上的规范残留试验,为制定氯氟醚菌唑的最大残留限量标准,保障农产品安全和进出口贸易提供基础数据。

目前,对于氯氟醚菌唑的研究主要集中于药效以及检测方法。郭成瑾等^[5]通过田间药效试验发现氯氟醚菌唑在小麦上施药1次后(40%氯氟醚菌唑悬浮剂,300 mL/hm²),对小麦白粉病的防效达71.25%。氯氟醚菌唑对香蕉叶斑病、桃树褐腐病、花生叶斑病、薏苡叶斑病、乌拉草锈病也具有较好的防效^[6-10]。仅有少量关于氯氟醚菌唑在粮食作物、果蔬样品中残留检测方法的研究报道^[11-16]。Liu等^[12]通过乙腈提取,多壁碳纳米管净化结合RPLC-MS/MS检测了对映体水平上西瓜中氯氟醚菌唑的残留。Park等^[13]采用乙腈提取,分散固相萃取结合LC-MS/MS,构建了糙米、马铃薯、大豆、柑橘、青椒等基质中氯氟醚菌唑、灭菌唑的残留检测方法。Zhang等^[14]通过乙腈/乙腈:水(10:5)提取,多壁碳纳米管净化结合UPLC-MS/MS构建了多种动物源和植物源基质中氯氟醚菌唑的检测方法。Jiang等^[15]通过液-液微萃取结合高效液相色谱二极管阵列测定了水、果汁、发酵液中手性杀菌剂氯氟醚菌唑。Wang等^[16]采用乙腈提取,PSA+GCB净化结合HPLC检测芒果中氯氟醚菌唑的残留。这表明,QuEChERS可用于多种基质中农药残留检测。然而,Delnat等、陈小龙等和赵慧星等的研究表明,农药的降解速率与光照、温度、湿度、降水量等气候条件有关^[17-19]。因此,研究中国不同地区气候条件下的氯氟醚菌唑消解,更能准确地反映其膳食风险性。

本研究建立了氯氟醚菌唑在黄瓜上的超高效液相色谱-串联质谱(UPLC-MS/MS)的检测方法,通过田间规范残留试验,研究了氯氟醚菌唑在黄瓜上的消解动态,根据最终残留结果进行了膳食风险评估,评价了氯氟醚菌唑在黄瓜上的慢性膳食暴露风险,以期制定我国黄瓜中氯氟醚菌唑的合理使用准则及其MRL标准提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 仪器与试剂

TQD超高效液相色谱-三重四极杆串联质谱仪

和Acquity UPLC HSS T3色谱柱(100 mm × 2.1 mm, 1.8 μm)(美国Waters公司);CK2000高通量组织研磨仪(北京托摩根生物科技有限公司);KH-500超声波清洗器(昆山市超声仪器有限公司);FZ102微型组织粉碎机(天津泰斯特);1-16型离心机(德国Sigma公司);HERAEUS MEGAFUGE 8型离心机(美国Thermo Scientific公司);PL601-L电子天平(精确到0.1 g)(梅特勒);BSA224S-CW电子分析天平(精确到0.1 mg)和BT25S电子分析天平(精确到0.01 mg)(德国Sartorius公司);G560E涡旋仪(美国Scientific industries公司)。

氯氟醚菌唑标准品(纯度99.7%)和400 g/L氯氟醚菌唑悬浮剂均由巴斯夫(中国)有限公司提供;十八烷基键合硅胶(C18)、0.22 μm滤膜购自天津博纳艾杰尔科技有限公司;分析纯乙腈购自北京北化精细化学品有限公司;色谱纯乙腈(中国Fisher);超纯水由Milli-Q system系统(Bedford, MA, USA)制备;分析纯无水MgSO₄、NaCl购自国药集团化学试剂有限公司。

1.2 田间试验

试验分别于2017年6月—9月在北京市顺义区木林镇荣各庄村、河南省济源市轵城镇西滩新村(大棚)、浙江省杭州市余杭区仓前镇羊郭村及2018年3月—10月在吉林省长春市吉林农业大学农业科学试验站(大棚)、辽宁省朝阳市建平县万寿街道(大棚)、北京市通州区潮庄镇侯黄庄村(大棚)、山东省潍坊市昌乐县朱刘街道任疃村(大棚)、河南省济源市轵城镇西轵城村、浙江省杭州市临安区青山湖街道康春农园(大棚)、湖南省长沙县春华镇龙王庙村、贵州省贵阳市花溪区久安乡打通村、广东省湛江市麻章区麻章镇湛江市农科院12地开展400 g/L氯氟醚菌唑悬浮剂在黄瓜中的残留试验。施药剂量为25 mL/667 m²(有效成分150 g/hm²),施药3次,施药间隔期7 d,叶面喷雾。每个试验点设置试验小区1个,空白对照区1个,每个小区面积至少50 m²,小区间设保护带。于黄瓜收获前15 d第1次施药,收获前8 d第2次施药,收获前1 d第3次施药,最终残留试验于最后一次施药后1、3、5 d采集黄瓜样品。残留消解试验于最后一次施药后2 h,6 h,1 d,3 d,5 d,7 d采集黄瓜样品。采用随机法采样,每个样品从不少于12株植株上的不同部位至少采集12个黄瓜果实,不少于2 kg,果实充分混匀并经匀浆机处理后,留样500~800 g于样品袋中,贴好标签并

于 -20°C 低温保存。

1.3 分析方法

1.3.1 仪器检测条件

色谱条件: Acquity UPLC HSS T3 色谱柱 (100 mm \times 2.1 mm, 1.8 μm , Waters 公司); 柱温箱 45°C ; 进样量 5 μL , 流速 0.3 mL/min, 流动相 A 为乙腈, B 为 0.2% 甲酸水, 梯度洗脱程序: 0 min $V(A):V(B)=10:90$; 1 min $V(A):V(B)=90:10$; 1.5 min $V(A):V(B)=90:10$; 2 min $V(A):$

$V(B)=10:90$; 5 min $V(A):V(B)=10:90$ 。

质谱条件: 多反应监测 (multiple response monitoring, MRM) 模式, 电喷雾正离子源 (ESI⁺), 离子源温度 150°C ; 离子喷雾电压 3.0 kV; 干燥气为氮气, 流速 650 L/h, 温度 350°C ; 雾化气为氮气, 流速 50 L/h, 去溶剂温度 350°C ; 碰撞气为氩气, 流速 0.19 mL/min。氯氟醚菌唑质谱测定参数见表 1。在此条件下, 氯氟醚菌唑保留时间为 1.82 min。0.01 mg/L 氯氟醚菌唑标准溶液的色谱图见图 1d。

表 1 氯氟醚菌唑质谱测定参数¹⁾

Table 1 MS parameters for detection of mefentrifluconazole

化合物 Compound	母离子 Parent ion	子离子 Daughter ion	锥孔电压/V Cone voltage	碰撞能量/eV Collision energy
氯氟醚菌唑 mefentrifluconazole	398.2	70.05 182.20*	36	32 42

1) * 表示定量离子对。

* represent quantitative ion pair.

1.3.2 样品前处理

准确称取 10.0 g 黄瓜处理样品于 50 mL 离心管中, 加入 10 mL 乙腈, 1 400 次/min 振荡 5 min, 加入 1.5 g NaCl 和 4.0 g 无水 MgSO_4 , 1 400 次/min 振荡 5 min, 4 000 r/min 离心 5 min, 取 1.5 mL 上清液加入含有 50 mg C18 和 150 mg MgSO_4 的 2 mL 离心管中, 涡旋 2 min 后以 5 000 r/min 离心 5 min, 取上清液过 0.22 μm 的滤膜待测。

1.3.3 标准溶液配制及基质标准曲线绘制

用电子天平准确称取氯氟醚菌唑标准品 0.010 03 g, 溶于乙腈, 配制 100 mg/L 储备溶液 100 mL, 置于 -18°C 冰柜保存。用黄瓜空白提取溶液稀释氯氟醚菌唑储备溶液, 配制成 1、0.5、0.1、0.05、0.01 mg/L 基质标准工作溶液, 按 1.3.1 条件测定, 以进样质量浓度 (x) 为横坐标, 相应的峰面积 (y) 为纵坐标, 绘制标准曲线。利用外标法, 测定黄瓜样品中氯氟醚菌唑浓度。

1.3.4 添加回收试验

准确称取 10.0 g 空白黄瓜样品, 分别进行 0.01、0.1 mg/kg 和 1 mg/kg 的 3 个水平氯氟醚菌唑的添加回收试验, 每个水平重复 5 次。添加标准溶液后, 静置至少 30 min 后, 按 1.3.2 进行前处理以及 UPLC-MS/MS 测定, 计算回收率 (%) 和相对标准偏差 (RSD)。

1.4 慢性膳食暴露风险评估

根据规范残留试验中值 (STMR/STMR-Pi),

按 (1) 式计算农药的国家估算每日摄入量 (NEDI), 按 (2) 式计算风险商 (RQ)

$$\text{NEDI} = \frac{\sum [\text{STMR}_i (\text{STMR} - P_i) \times F_i]}{\text{bw}} \quad (1)$$

$$\text{RQ} = \frac{\text{NEDI}}{\text{ADI}} \quad (2)$$

式中, STMR_i 为农药在某种食品中的规范残留试验中值; $\text{STMR} - P_i$ 为采用加工因子校正后的规范残留试验中值; F_i 为一般人群对该种食品的消费量。ADI 为每日允许摄入量 (单位 mg/kg bw), bw 为体重 (单位 kg), RQ 为风险商。参照《食品中农药残留风险评估指南》^[20], 在计算 NEDI 时, 如果没有合适的 STMR 值或 $\text{STMR} - P_i$ 值, 可直接采用相应的 MRL 值代替。当 $\text{RQ} \leq 100\%$ 时, 认为该农药残留对一般人群健康的影响在可接受的风险水平, 比值越小, 风险越低。

2 结果与分析

2.1 方法有效性评价

在 0.01~1 mg/L 范围内, 黄瓜基质中氯氟醚菌唑浓度 (x) 与峰面积 (y) 具有良好的线性关系, R^2 均大于 0.99。由表 2 可知, 添加水平为 0.01、0.1 mg/kg 和 1 mg/kg, 氯氟醚菌唑的平均回收率在 90%~108% 之间, 相对标准偏在 3%~12% 之间。方法的定量限 (LOQ) 为 0.01 mg/kg。符合《农

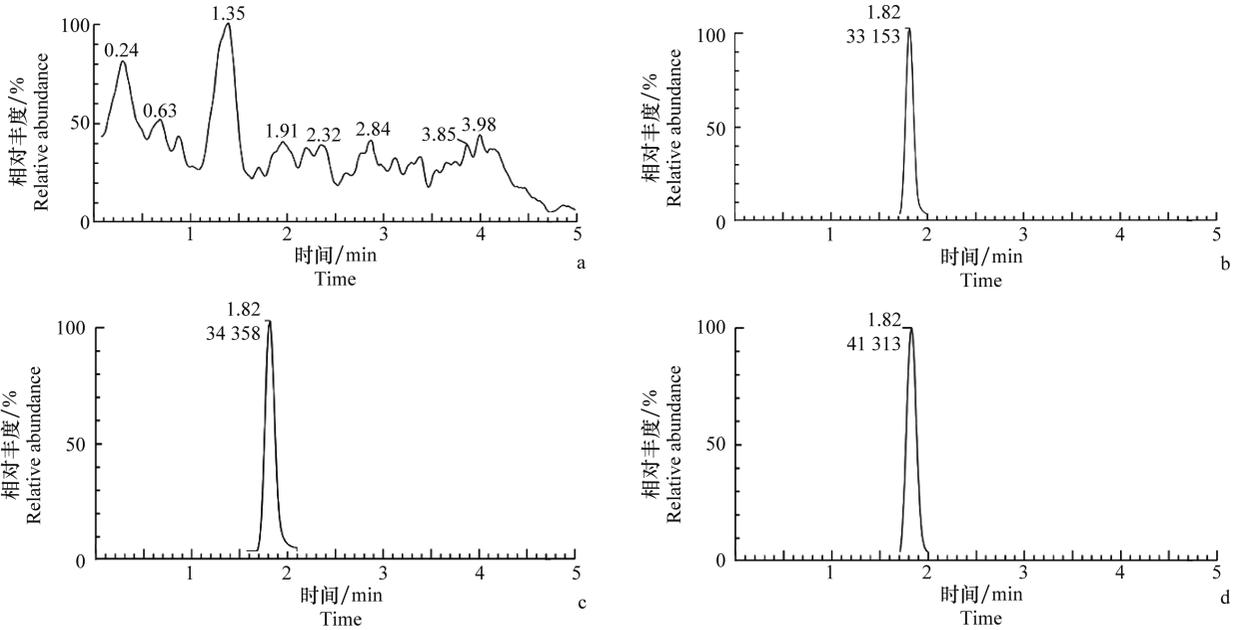
作物中农药残留试验准则》(NY/T 788-2018)^[21] 的要求,可用于黄瓜样品中氯氟醚菌唑的检测。典型

色谱图与质谱图见图 1。黄瓜基质中 0.01 mg/L 氯氟醚菌唑添加回收色谱图见图 1b。

表 2 氯氟醚菌唑在黄瓜中的平均添加回收率及相对标准偏差 (n=5)

Table 2 The recovery rate and RSD of mefentrifluconazole in cucumber at different levels (n=5)

添加水平/(mg/kg) Spiked level	回收率/% Recovery rate					相对标准偏差/% RSD	
	1	2	3	4	5	平均值 Mean	
0.01	91	90	102	94	73	90	12
0.1	104	114	114	102	104	108	5
1	97	92	95	98	91	95	3



a: 黄瓜空白; b: 黄瓜添加 0.01 mg/kg 氯氟醚菌唑; c: 0.01 mg/L 氯氟醚菌唑黄瓜基质标; d: 0.01 mg/L 氯氟醚菌唑标准品。
a: Blank of cucumber; b: Cucumber spiked with 0.01 mg/kg mefentrifluconazole; c: 0.01 mg/L cucumber matrix of mefentrifluconazole; d: 0.01 mg/L standard of mefentrifluconazole.

图 1 氯氟醚菌唑标准品和样品色谱图

Fig. 1 Chromatogram of standard and sample of mefentrifluconazole

2.2 田间试验结果

2.2.1 氯氟醚菌唑在黄瓜上的消解动态

由图 2 可知,400 g/L 氯氟醚菌唑悬浮剂有效成分 150 g/hm² 施药 3 次,在吉林、北京、湖南、贵州 4 地试验点,施药后 2 h 平均原始沉积量分别为 0.066、0.13、0.076 mg/kg 和 0.30 mg/kg,之后呈现下降趋势。第 7 天时,除贵州外,其他 3 地残留量均 < 0.01 mg/kg。

2.2.2 氯氟醚菌唑在黄瓜上的最终残留量

400 g/L 氯氟醚菌唑悬浮剂按有效成分 150 g/hm² 施药 3 次,采收间隔期分别为 1、3 d 和 5 d,氯氟醚菌唑在黄瓜中的最高残留值(HR)分别为 0.640、0.480、0.590 mg/kg,规范残留试验中值(STMR)分别为 0.120、0.054、0.015 mg/kg(表 3)。结果显示,氯氟醚菌唑在黄瓜中的残留量基本随时间的推移而

降低,与消解动态结果一致。

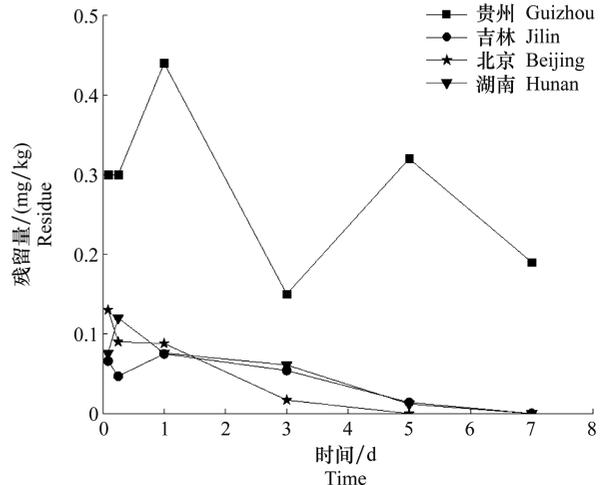


图 2 氯氟醚菌唑在黄瓜上的残留消解

Fig. 2 Residue digestion of mefentrifluconazole in cucumber

2.3 氯氟醚菌唑的膳食摄入风险评估

根据巴斯夫公司推荐氯氟醚菌唑 ADI 为 0.05 mg/kg, 氯氟醚菌唑在中国的登记使用情况^[4]以及居民人均膳食结构调查数据^[22], 结合本研究距最后一次施药后 1 d 得到的残留试验中值进行风险评估(表 4), 除了黄瓜上参考限量为试验残留中值外, 其他登记作物均为 MRL 值, 膳食摄入偏保守。

结果显示一般人群氯氟醚菌唑的国家估算每日摄入量(NEDI)为 0.217 0 mg/(kg·d), 膳食摄入风险商为 6.9%, 远小于 100%, 不会对一般人群健康造成不可接受的风险。结果表明, 采用 400 g/L 氯氟醚菌唑悬浮剂按 25 mL/667m²(有效成分 150 g/hm², 为推荐最高剂量), 施药 3 次, 采收间隔期 1 d, 不会对一般人群造成慢性膳食摄入风险。

表 3 氯氟醚菌唑在黄瓜上的最终残留

Table 3 The terminal residues of mefentrifluconazole in cucumber

年份 Year	采收间隔期/d Harvest interval	残留量/(mg/kg) Residue	规范残留试验中值/ (mg/kg) STMR	最高残留值/ (mg/kg) HR
2017-2018	1	<0.010, <0.010, 0.032, 0.069, 0.072, 0.076, 0.077, 0.078, 0.082, 0.085, 0.091, 0.100, 0.110, 0.120, 0.120, 0.150, 0.180, 0.200, 0.210, 0.250, 0.260, 0.310, 0.320, 0.440, 0.450, 0.600, 0.640	0.120	0.640
	3	<0.010, <0.010, 0.015, 0.019, 0.021, 0.021, 0.024, 0.039, 0.050, 0.051, 0.051, 0.053, 0.054, 0.054, 0.058, 0.060, 0.061, 0.062, 0.1000, 0.110, 0.120, 0.150, 0.150, 0.100, 0.210, 0.470, 0.480	0.054	0.480
	5	<0.010, <0.010, <0.010, <0.010, <0.010, <0.010, <0.010, 0.010, 0.010, 0.010, 0.012, 0.013, 0.014, 0.014, 0.015, 0.018, 0.020, 0.021, 0.026, 0.0260, 0.096, 0.096, 0.150, 0.150, 0.310, 0.330, 0.530, 0.590	0.015	0.590

表 4 氯氟醚菌唑膳食风险评估结果

Table 4 Risk assessment results of mefentrifluconazole

登记作物 Registration crop	食物种类 Food classification	膳食量 ^[22] / (kg/d) Dietary intake	参考限量 ^[23] / (mg/kg) Reference MRL/STMR	限量来源 Source of maximum limits	国家估算 每日摄入量/ [mg/(kg·d)] NEDI	日允许摄入量/ [mg/(kg·d)] Daily allowance	风险商/% RQ
小麦 Wheat	面及其制品	0.138 5	0.3	美国	0.041 6	ADI×63	
玉米 Maize	其他谷类	0.023 3	0.01	美国	0.000 2		
花生 Peanut	植物油	0.032 7	0.01	美国	0.000 3		
马铃薯 Potato	薯类	0.049 5	0.04	美国	0.002 0		
黄瓜 Cucumber	浅色蔬菜	0.183 7	0.12	规范残留试验中值	0.022 0		
番茄 Tomato	深色蔬菜	0.091 5	0.9	美国	0.082 4		
苹果 Apple	水果	0.045 7	1.5	美国	0.068 6		
合计 Total		0.564 9			0.217 0	3.15	6.9

3 结论与讨论

本文建立了超高效液相色谱串联质谱(UPLC-MS/MS)快速检测黄瓜中氯氟醚菌唑的残留检测分析方法, 样品采用乙腈提取, C18 净化, 前处理操作简单, 黄瓜在 0.01、0.1、1 mg/kg 的添加水平下, 氯氟醚菌唑的回收率为 90%~108%, 相对标准偏差为 3%~12%, 精密度、准确度等均符合中国《农作物中农药残留试验准则》^[21]要求。此外, QuEChERS 方法已被广泛应用于农药残留分析检测^[24-28], 包括水果、蔬菜、坚果、肉类、谷类、乳制品、水和土壤

等, 涉及新烟碱类、三唑类、拟除虫菊酯类等多种农药。而且, 该方法也逐渐成为许多国家和地区的官方标准方法, 如欧盟 EN 15662^[29], 美国 AOAC2007^[30], 以及我国的一些标准^[31-32]。由此可见, 此前处理方法具有广泛性和可靠性。

农作物可食部分的原始着药量主要受地上部分生物量、可食部分生物量、拦截系数、漂移因子等多因素影响^[33]。而且, 农药降解速度受到温度、光照、降水量等气候因子影响^[17-19, 34-35]。本研究中发现不同地区间氯氟醚菌唑在黄瓜中残留量存在差异。消解动态表明: 吉林、北京、湖南样品中氯氟醚菌唑的消解速

度最快,在采收期为 7 d 时,均低于 0.01 mg/kg,贵州样品为 0.19 mg/kg。12 地最终残留数据表明,采收间隔期为 1 d 时残留量为 <0.01~0.640 mg/kg,3 d 时残留量 <0.01~0.48 mg/kg,5 d 时残留量 <0.01~0.590 mg/kg。其他的研究者也发现过类似现象,如:Liu 等^[12]开展氯氟醚菌唑(剂量为 240 g/hm²,喷施 3 次)在西瓜上的消解试验研究,结果发现采收间隔期为 10 d 时,湖南试验点最终残留量为 59.3 μg/kg,而河南试验点为 2.1 μg/kg;韩帅兵等^[36]开展氟苯虫酰胺在大白菜上残留行为研究,结果显示喷施 100 g/L 氟苯虫酰胺悬浮液 3 次,采收间隔期分别为 3、5、7 d 时,6 地的最终残留量差异显著,分别为 <0.01~6.65 mg/kg、<0.01~8.35 mg/kg、<0.01~5.14 mg/kg。此外,农作物可食部分的农药残留还与农作物种类密切相关。董见南等^[37]在菜薹和芥蓝喷施相同剂量的吡虫啉,结果发现吡虫啉在 2 种蔬菜的原始沉积量差异显著,其中,菜薹中为 0.099 mg/kg,芥蓝中为 1.98 mg/kg。相同施药次数和施药剂量下青花菜和甜椒中吡虫啉的原始沉积量分别为 9.28 mg/kg 和 0.29~0.94 mg/kg^[37-38]。

目前,中国和国际食品法典委员会(Codex Alimentarius Commission,CAC)均尚未制定氯氟醚菌唑在黄瓜中的 MRL 值。按照《食品中农药残留风险评估指南》^[20],基于规范残留试验得到残留量中值,对来源于初级农产品上登记使用的氯氟醚菌唑进行慢性膳食风险评估,结果显示,氯氟醚菌唑的国家估计每日摄入量(NEDI)为 0.217 0 mg,风险商为 6.9%,远小于 100%,说明黄瓜中氯氟醚菌唑残留不会对一般人群健康造成不可接受的风险。

根据田间残留试验结果,采用 400 g/L 氯氟醚菌唑悬浮剂防治黄瓜病害时,建议按照推荐剂量有效成分 150 g/hm² 的剂量施药 3 次,安全采收间隔期为 1 d。本研究建立的氯氟醚菌唑在黄瓜中的检测方法,丰富了氯氟醚菌唑在黄瓜中的消解动态数据、最终残留量数据和膳食风险评估数据,可为氯氟醚菌唑悬浮剂在黄瓜田间的安全规范使用、制定其 MRL 值、加强对氯氟醚菌唑残留的监管提供理论依据和数据支持。

参考文献

[1] 柏亚罗. 杀菌剂氯氟醚菌唑的全球登记和上市进展[J]. 世界农药,2022,44(3):1-8.

- [2] 高士光,蔡旭阳,薛欢,等. 新型异丙醇三唑类杀菌剂氯氟醚菌唑[J]. 世界农药,2021,43(5):29-35.
- [3] 刘鹏飞,兰杰,李志念,等. 氯氟醚菌唑(Mefentrifluconazole)的合成及生物活性[J]. 农药,2020,59(4):256-257.
- [4] 中华人民共和国农业农村部农药检定所. 中国农药信息网[DB/OL]. [2022-11-01]. <http://www.chinapesticide.org.cn/hysj/index.jhtml>.
- [5] 郭成瑾,陈杭,王喜刚,等. 不同杀菌剂对小麦白粉病及其产量的影响[J]. 宁夏农林科技,2020,61(12):48-50.
- [6] 崔一平,彭埃天,宋晓兵,等. 氯氟醚菌唑·吡唑醚菌酯对香蕉叶斑病的田间药效评价[J]. 中国农学通报,2021,37(6):142-146.
- [7] 赵鑫,杨慧,王绍敏,等. 新型药剂氯氟醚菌唑加氟唑菌酰胺对桃树褐腐病防治效果[J]. 山东农业大学学报(自然科学版),2021,52(2):201-204.
- [8] 李凌云,陈敏,栾炳辉,等. 新型杀菌剂氯氟醚菌唑对花生叶斑病的田间防效评价[J]. 农药,2020,59(11):833-834.
- [9] 侯翔宇,黄世勇,姚锦爱,等. 葱蒜叶斑病病原菌生物学特性及防治药剂毒力评估[J]. 福建农业学报,2021,36(12):1464-1470.
- [10] 史春风,王天奕,鞠志新,等. 乌拉草锈病病原菌生物学特性及药剂敏感性[J]. 农药,2021,60(8):606-609.
- [11] 张强,王胜翔,黄伟,等. 240 g/L 氯氟醚菌唑·吡唑醚菌酯乳油高效液相色谱分析方法研究[J]. 农药科学与管理,2018,39(4):29-32.
- [12] LIU Ziqi, CHENG Youpu, YUNA Longfei, et al. Enantiomeric profiling of mefentrifluconazole in watermelon across China: Enantiochemistry, environmental fate, storage stability, and comparative dietary risk assessment [J/OL]. Journal of Hazardous Materials, 2021, 417: 125985. DOI: 10.1016/j.jhazmat.2021.125985.
- [13] PARK J S, HAN S L, SU J L, et al. Development and validation of a simultaneous analytical method for the detection of mefentrifluconazole and triticonazole fungicide in agricultural crops [J]. Korean Journal of Environmental Agriculture, 2020, 39(2): 130-137.
- [14] ZHANG Ying, WU Xiaohu, LI Xianbin, et al. A fast and sensitive ultra-high-performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry method for determining mefentrifluconazole in plant-and animal-derived foods [J]. Food Additives & Contaminants, 2019, 36(9): 1348-1357.
- [15] JIANG Haijuan, HUANG Xin, XUE Haoyue, et al. Switchable deep eutectic solvent-based homogenous liquid-liquid microextraction combined with high-performance liquid chromatography-diode-array detection for the determination of the chiral fungicide mefentrifluconazole in water, fruit juice, and fermented liquor [J]. Chirality, 2022, 34(7): 968-976.
- [16] WANG Siwei, WANG Xiaonan, HE Qiang, et al. Analysis of the fungicidal efficacy, environmental fate, and safety of the application of a mefentrifluconazole and pyraclostrobin mixture

- to control mango anthracnose [J]. *Journal of the Science of Food and Agriculture*, 2023, 103(1): 400 - 410.
- [17] DELNAT V, VERBORGT J, JANSSENS L, et al. Daily temperature variation lowers the lethal and sublethal impact of a pesticide pulse due to a higher degradation rate [J/OL]. *Chemosphere*, 2020, 263: 128114. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2020.128114.
- [18] 陈小龙, 王亚, 程金金, 等. 啉虫脒在桃上的残留消解规律与膳食风险评估[J]. *农药学学报*, 2021, 23(3): 545 - 551.
- [19] 赵慧星, 赵科华, 车军, 等. 实验室条件下几种常见农药降解规律研究[J]. *安徽农业科学*, 2009, 37(6): 2694 - 2695.
- [20] 中华人民共和国农业农村部. 食品中农药残留风险评估指南 [EB/OL]. (2015-10-08) [2022-11-01]. http://www.moa.gov.cn/nybgb/2015/shiqi/201712/t20171219_6103890.htm.
- [21] 中华人民共和国农业农村部. 农作物中农药残留试验准则: NY/T 788—2018 [S]. 北京: 中国农业出版社, 2018.
- [22] 中华人民共和国卫生部, 中华人民共和国科学技术部, 中华人民共和国国家统计局. 中国居民营养与健康现状[J]. *中国心血管病研究杂志*, 2004, 2(12): 919 - 922.
- [23] Electronic Code of Federal Regulations. Tolerances and exemptions for pesticide chemical residues in food; mefenflurconazole [EB/OL]. (2022-05-31) [2022-06-02]. https://www.ecfr.gov/cgi-bin/retrieveECFR?gp=1&SID=0d236cb4fdac42e3cf6840cb0358ad2e&ty=HTML&h=L&mc=true&r=PART&n=pt40.26.180#se40.26.180_1399.
- [24] FERRACANE A, ZOCCALI M, CACCIOLA F, et al. Determination of multi-pesticide residues in vegetable products using a “reduced-scale” Quechers method and flow-modulated comprehensive two-dimensional gas chromatography-triple quadrupole mass spectrometry [J/OL]. *Journal of Chromatography A*, 2021, 1645: 462126. DOI: 10.1016/j.chroma.2021.462126.
- [25] DONG Fengshou, CHEN Xiu, LIU Xingang, et al. Simultaneous determination of five pyrazole fungicides in cereals, vegetables and fruits using liquid chromatography/tandem mass spectrometry [J]. *Journal of Chromatography A*, 2012, 1262: 98 - 106.
- [26] CHEN Xixi, DONG Fengshou, XU Jun, et al. Effective monitoring of fluxapyroxad and its three biologically active metabolites in vegetables, fruits, and cereals by optimized QuEChERS treatment based on UPLC-MS/MS [J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2016, 64(46): 8935 - 8943.
- [27] 张斌斌, 董丰收, 潘兴鲁, 等. 超高效液相色谱-串联质谱同时检测水稻中 3 种农药及 2 种代谢物残留 [J]. *农药学报*, 2022, 24(6): 1508 - 1517.
- [28] 倪杨, 杨军军, 石磊, 等. QuEChERS 超高效液相色谱-串联质谱法同时测定坚果中 20 种真菌毒素 [J]. *食品安全质量检测学报*, 2022, 13(13): 4107 - 4116.
- [29] European Committee for Standardization (CEN). Foods of plant origin determination of pesticide residues using GC-MS and/or LC-MS/MS following acetonitrile extraction/partitioning and clean-up by dispersive SPE QuEChERS-method; BS EN 15662: 2008 [S/OL]. (2008-12-31) [2022-11-01]. <https://www.quechers.com>.
- [30] LEHOTAY S J. Determination of pesticide residues in foods by acetonitrile extraction and partitioning with magnesium sulfate: collaborative study [J]. *Journal of AOAC International*, 2007, 90(2): 485 - 520.
- [31] 中华人民共和国卫生健康委员会, 中华人民共和国农业农村部, 国家市场监督管理总局. 食品安全国家标准植物源性食品中 208 种农药及其代谢物残留量的测定气相色谱-质谱联用法: GB 23200.113-2018 [S]. 北京: 中国农业出版社, 2018.
- [32] 中华人民共和国卫生健康委员会, 中华人民共和国农业农村部, 国家市场监督管理总局. 食品安全国家标准植物源性食品中 331 种农药及其代谢物残留量的测定液相色谱-质谱联用法: GB 23200.121-2021 [S]. 北京: 中国农业出版社, 2021.
- [33] 吴秀明. 噻虫嗪和烯酰吗啉在番茄、黄瓜和菠菜上的安全施药阈值模型构建与验证 [D]. 北京: 中国农业科学院, 2020.
- [34] 孙瑞卿, 王霞, 任鹏程, 等. 虫螨腈及其代谢物溴代吡咯腈在芥菜上的残留行为与膳食风险评估 [J]. *农药学报*, 2022, 24(3): 563 - 571.
- [35] 吴秀明, 董丰收, 吴小虎, 等. 气候变化对农药应用风险的影响 [J]. *植物保护*, 2019, 45(2): 25 - 29.
- [36] 韩帅兵, 张耀中, 于淼, 等. 氟苯甲酰胺在大白菜中的残留、消解动态及长期膳食风险评估 [J]. *农药科学与管理*, 2022, 43(9): 46 - 53.
- [37] 董见南, 吕洋, 刘峰, 等. 吡虫啉在三种芸薹属蔬菜中的残留行为及风险评估 [J]. *农药科学与管理*, 2020, 41(8): 26 - 32.
- [38] 黄玉芬, 黄健祥, 骆冲, 等. 吡虫啉在甜椒中的残留和膳食风险评估 [J]. *农药*, 2020, 59(8): 590 - 594.

(责任编辑: 张雪)

(上接 218 页)

- [25] POTRYKUS M, SLEDZ W, GOLANOWSKA M, et al. Simultaneous detection of major blackleg and soft rot bacterial pathogens in potato by multiplex polymerase chain reaction [J]. *Annals of Applied Biology*, 2015, 165(3): 474 - 487.
- [26] LAURILA J, HANNUKALA A, NYKYRI J, et al. Symptoms and yield reduction caused by *Dickeya* spp. strains isolated from potato and river water in Finland [J]. *European Journal of Plant Pathology*, 2010, 126(2): 249 - 262.
- [27] PRITCHARD L, HUMPHRIS S, SADDLER G S, et al. Detection of phytopathogens of the genus *Dickeya* using a PCR primer prediction pipeline for draft bacterial genome sequences [J]. *Plant Pathology*, 2013, 62(3): 587 - 596.
- [28] 杜婵娟, 杨迪, 付岗, 等. 广西香蕉细菌性软腐病原鉴定及生物学特性研究 [J]. *植物保护*, 2019, 45(5): 148 - 156.

(责任编辑: 田喆)