

注干用 10% 甲氨基阿维菌素苯甲酸盐可溶粒剂的研制及对松材线虫病的防治效果

张欣伟¹, 韩群琦¹, 汪天娜², 吴利平³, 陈安良^{*1}

(1. 浙江农林大学 生物农药高效制备技术国家地方联合工程实验室, 浙江 临安 311300; 2. 临安区农业农村局, 浙江 临安 311300; 3. 建德市林业局, 浙江 建德 311600)

摘要: 为有效防治松材线虫病, 研制了注干用 10% 甲氨基阿维菌素苯甲酸盐 (以下简称甲维盐) 可溶粒剂, 并通过在马尾松树干基部钻孔施药, 考察了其对于松材线虫病的防治效果。以苯甲酸钠、单水乳糖、可溶性淀粉和羧甲基纤维素为水溶性载体, 采用混料均匀试验设计及偏最小二乘回归分析法对水溶性载体的配方进行了优化。将水溶性载体与溶于正丁醇和乳化剂 OP-10 的甲维盐 (油相) 在不同时间下混合并造粒, 通过对其性能指标的追踪检测得出粒剂最佳配比和混合时间。结果表明: 10% 甲维盐可溶粒剂的最佳配比 (质量分数) 为: 甲维盐 10.0% (折纯), 乳化剂 OP-10 6.7%, 正丁醇 12.0%, 苯甲酸钠 39.0%, 单水乳糖 20.5%, 水溶性淀粉 3.0% 和羧甲基纤维素 4.5%; 机械混合时间为 10 min, 粒剂外观为乳白色圆柱体, 各项性能指标合格。注干施药结果表明: 在浙江临安东湖村松材线虫病疫区, 注干 110 棵马尾松, 1 a 后马尾松死亡率为 0, 对照区为 6.1%; 在福建泉州仙公山疫区, 注干 230 棵马尾松, 1 a 后马尾松死亡率为 1.7%, 对照区 10.8%。结果表明, 所研制的 10% 甲维盐可溶粒剂可在松脂分泌旺盛的松树上注干施药, 制剂造粒工艺简单, 无包装物污染, 对松材线虫病防治效果显著。

关键词: 注干施药; 甲氨基阿维菌素苯甲酸盐; 可溶粒剂; 松材线虫病; 传导性; 防治效果

中图分类号: TQ450.6; S482.3 文献标志码: A 文章编号: 1008-7303(2019)04-0538-07

Preparation of 10% emamectin benzoate soluble granule for trunk injection and its control efficacy on pine wilt disease

ZHANG Xinwei¹, HAN Qunqi¹, WANG Tianna², WU Liping³, CHEN Anliang^{*1}

(1. Local and National Joint Engineering Laboratory of Biopesticide High-efficient Preparation Technology, Zhejiang A & F University, Lin'an 311300, Zhejiang Province, China; 2. Lin'an Municipal Bureau of Agricultural and Rural Affairs, Lin'an 311300, Zhejiang Province, China; 3. Forestry Bureau of Jiande, Jiande 311600, Zhejiang Province, China)

Abstract: In order to prevent and control pine wilt disease, 10% emamectin benzoate soluble granule was prepared for trunk injection. Its control efficacy against pine wood nematode disease was evaluated after trunk injection. Sodium benzoate, lactose monohydrate, soluble starch and CMC were tested as the water-soluble carrier. The formulation of the water-soluble carrier was optimized using the uniform design of experiments with mixtures and partial least squares regression. The emamectin benzoate (oil

收稿日期: 2019-03-11; 录用日期: 2019-04-26.

基金项目: 国家林业局 948 项目 (2015-4-40).

作者简介: 张欣伟, 男, 硕士, 研究方向为生物农药, E-mail: 253893754@qq.com; *陈安良, 通信作者 (Author for correspondence), 男, 博士, 研究员, 主要从事生物农药研究, E-mail: anlchen@126.com

phase) was dissolved in *n*-butanol and emulsifier OP-10, and mixed with water-soluble carrier with different mixing time. And then the optimal formulation and mixing time was obtained by tracking and detecting of the indicators. The optimum formulation of emamectin benzoate 10% soluble granule was composed of emamectin benzoate 14.3% (pure 10.0%), OP-10 5.7%, *n*-butanol 12%, sodium benzoate 39.0%, lactose monohydrate 20.5%, water-solubility starch 3.0% and CMC 4.5%. After 10 min mechanical kneading, the appearance of the granule was the cylinder in milk white. And all the indicators were up to the standard. The field experiments showed that the granule could completely dissolve in water and effectively conduct in *P. massoniana* after the trunk injection. In the pine wood nematode disease area in Donghu Village, 110 pines were injected. The mortality of *P. massoniana* was 0 after 1 year. And the mortality of *P. massoniana* in the control group was 6.1%. In the Xian' gong Mountain, 230 pines were injected. The mortality of *P. massoniana* was 1.7%, and the mortality of *P. massoniana* in the control group was 10.8%. The soluble granule can be used during the whole pine resin secretion period. And it features simple and safe production procedur, no packaging pollution and significant control effect.

Keywords: trunk injection; emamectin benzoate; soluble granule; pine wilt disease; conduction; control effect

松材线虫病, 是中国目前最为严重的森林病害之一。该病是由松材线虫、寄主植物、媒介昆虫、伴生真菌和细菌、经济物流活动及环境因子等多种因素交织作用而形成的复杂病害系统, 防治困难^[1]。目前, 松材线虫病的防治主要采用检疫、清理死树、营林改造、生物防治及化学防治等方法^[2], 其中注干施药是化学防治中最有效的手段, 能直接杀死树体内松材线虫, 保护松树。

注干施药是一种绿色的林木有害生物防治技术, 其药剂直接进入树体内, 不与周围环境接触, 可以降低对环境的污染及对人畜的伤害^[3]。其原理是内吸性药物及矿物质等通过自流式或高压注入树体会随着树体水分运动而发生纵向或横向运动, 使药剂分布在树体各个部位, 从而实现对病虫害的防治^[4]。

甲氨基阿维菌素苯甲酸盐 (emamectin benzoate, 以下简称甲维盐), 具有高效、低毒、低残留、无公害等特点^[5-7]。Takai 等^[8-10]报道了甲维盐可作为防治松材线虫病的有效药物, 通过施用注干液剂——甲维盐乳油, 可显著降低松材线虫病的发生率; 潘伟华等^[11]采用 2% 甲维盐微乳剂为注干液剂防治松材线虫病, 效果显著, 持效期可达 3a 以上。然而, 在中国华南地区, 如福建、广东等地, 由于常年平均气温偏高, 马尾松松脂分泌旺盛, 因而会导致在使用甲维盐乳油作注干液

剂时, 注药器的注入孔会被松脂堵塞而使液体无法注入树体内的现象发生, 因此有必要研制甲维盐新剂型, 以解决这一难题。鉴于此, 笔者选取苯甲酸钠、单水乳糖、可溶性淀粉及羧甲基纤维素为水溶性载体, 通过混合载体及甲维盐油相, 螺杆挤压造粒的方法研制了注干用 10% 甲维盐可溶粒剂, 对其相关性能指标及其在树体内的溶解性、传导性和防治效果等进行了研究。

1 材料与方法

1.1 仪器与药剂

Waters 600 高效液相色谱仪 (美国 Waters 公司); IKA RV10 基本型立式旋转蒸发仪 (广州仪科实验室技术有限公司); 超声波清洗仪 (昆山市超声仪器有限公司); 摇摆式万能高速粉碎机 (温岭市林大机械有限公司); ZGH 高速混合机和 SET-100 单螺杆挤压制粒机 (常州市苏力干燥设备有限公司)。

95.6% 甲氨基阿维菌素苯甲酸盐 (emamectin benzoate) 标准品 (佳木斯兴宇生物技术有限公司); 70% 甲氨基阿维菌素苯甲酸盐原药及辛基酚聚氧乙烯醚 (OP-10) (浙江世佳科技有限公司); ODS 填料 (日本大曹株式会社); 甲醇和乙腈, 色谱纯以及正丁醇、苯甲酸钠、单水乳糖、羧甲基纤维素和可溶性淀粉, 分析纯 (均为国药集团试剂有限公司)。

1.2 水溶性载体配方的优化

1.2.1 甲维盐油相配制 将甲维盐原药溶于正丁醇, 加热搅拌至完全溶解后加入 OP-10, 40 °C 下搅拌 30 min, 记为甲维盐油相。

1.2.2 均匀试验设计方案及载体吸油率测定 以

苯甲酸钠、可溶性淀粉、单水乳糖和羧甲基纤维素为水溶性载体, 采用魏方林等混料均匀试验设计方案^[12], 利用 DPS 数据处理系统生成 U_{11} (11^4) 表 (见表 1)。

表 1 U_{11} (11^4) 混料均匀试验设计方案

Table 1 U_{11} (11^4) uniform design of experiments with mixtures

序号 No.	水溶性载体 Water-soluble carriers			
	羧甲基纤维素 CMC (X_2)/%	苯甲酸钠 Sodium benzoate (X_3)/%	水溶性淀粉 Water-soluble starch (X_4)/%	单水乳糖 Lactose monohydrate (X_5)/%
C1	50.07	31.36	4.54	14.03
C2	21.81	43.75	4.34	30.10
C3	12.33	43.50	37.56	6.61
C4	30.66	13.38	42.90	13.07
C5	14.62	4.03	27.35	54.00
C6	35.82	11.45	7.30	45.43
C7	10.80	58.08	10.09	21.03
C8	12.14	21.10	63.48	3.28
C9	28.01	5.66	36.52	29.82
C10	7.14	27.43	26.40	39.03
C11	41.98	13.85	15.42	28.75

注: % 表示物料质量分数。

Note: % represents the mass fraction of the material.

根据表 1 数据, 称取各水溶性载体, 记初始总质量 M_0 , 加入过量的甲维盐油相, 充分搅拌后于 30 °C 水浴锅中静置 10 min, 布氏漏斗抽滤至泛白, 称重, 记为 M_1 。重复 3 次, 取平均值。按 (1) 式计算载体吸油率 (Y : g/100 g 载体)。根据载体吸油率测定结果, 确定各载体的配比。

$$Y = \frac{M_1 - M_0}{M_0} \times 100 \quad (1)$$

1.3 甲维盐可溶粒剂的加工及性能测定

1.3.1 可溶粒剂造粒工艺

1.3.1.1 小试工艺 准确称取优化后的复配载体 20 g 于 500 mL 烧杯中, 连续搅拌下将其缓慢倒入 10 g 甲维盐油相中, 使油相被载体充分吸收; 利用注射器挤压造粒; 检测粒剂各项性能, 确定粒剂配方。

1.3.1.2 中试工艺 按照小试工艺确定的粒剂配方造粒。利用 ZGH 高速混合机将各水溶性载体混合均匀后用喷雾器均匀喷施入甲维盐油相, 继续混合一定时间。机器混合物料 (载体与油相) 的时间分别设定为 5、10 及 15 min, 混合后随机挑取混合机中不同部位的物料检测甲维盐含量, 以检验

混合是否均匀, 确定最佳混合时间。最后采用 SET-100 单螺杆挤压制粒机造粒。

1.3.2 性能测定

1.3.2.1 有效成分含量测定 利用高效液相色谱 (HPLC) 法检测制剂中甲维盐的含量^[11]。

1.3.2.2 乳液稳定性测定 参照文献 [13] 方法进行。将 0.5 g 甲维盐可溶粒剂加入至 100 mL 已预热至 30 °C 的硬水中, 搅拌, 得到甲维盐乳液, 于 30 °C 水浴锅内静置 1 h。观察乳液的稳定性, 若乳液均一则为合格。

1.3.2.3 pH 值测定 参照文献 [14] 方法进行。用经校准的 pH 计重复测试 3 次, 取平均值。

1.3.2.4 热贮稳定性测定 参照文献 [15] 方法进行。取 4 粒共计 20 g 甲维盐可溶粒剂于锥形瓶中, 密封, 置于 (54 ± 2) °C 培养箱中, 14 d 后取出, 测定其有效含量及乳液稳定性。

1.4 甲维盐可溶粒剂在马尾松内的溶解及传导性测定

1.4.1 粒剂溶解及传导性测定 注干试验于浙江省杭州市临安区东湖村马尾松林及福建省泉州市仙公山进行。

注药剂量以马尾松胸径大小为基准: 胸径小于 10 cm, 施用 10 g 粒剂; 胸径为 10~20 cm 的施用 15 g 粒剂; 胸径大于 20 cm 的施用 20 g 粒剂; 当胸径超过 30 cm 时, 每增加 5 cm 胸径需增加 5 g 粒剂。注药时用 $\Phi 10$ mm 钻头在树的基部, 向下倾斜 45° 钻深为 5 cm 的孔, 将粒剂塞入孔中, 用黏土封口。每天打开封口用玻璃棒探查注孔内药剂溶解情况。若无药剂残留说明已全部溶解, 统计完全溶解时间。每次观察结束后重新封口。

分别于注药 60 d 和 180 d 时用高枝剪取马尾松枝条 (从树冠向下, 分上层、中层、下层 3 段剪取松枝, 记为 3、2、1, 随机取样 20 株), 自然阴干, 高效液相色谱法 (HPLC) 检测各样本中甲维盐含量, 取平均值。以未注药马尾松为对照。

1.4.2 样品前处理

1.4.2.1 样品提取 使用粉碎机将马尾松枝条粉碎过筛孔径为 75 μm 的筛网。准确称取 10.0 g 样品于 250 mL 三角瓶中, 加入 50 mL $V(\text{甲醇}):V(\text{水}) = 95:5$ 混合溶剂, 超声振荡提取 1 h, 抽滤, 用 30 mL 甲醇淋洗残渣, 重复 3 次。合并滤液及甲醇淋洗相, 减压浓缩至干, 用甲醇溶解并定容至 2 mL, 0.45 μm 滤膜过滤, 待净化。

1.4.2.2 样品净化 参考朱昶等^[16]方法制备净化小柱。选用 5 mL 无菌注射器 (不带针头), 在底部放置脱脂棉, 真空抽气, 依次加入 1 mL 无水硫酸镁和 3 mL ODS 填料, 备用。

依次用 5 mL $V(\text{甲醇}):V(\text{水}) = 95:5$ 混合溶剂和甲醇活化平衡净化小柱, 将提取液转入柱中。用 5 mL $V(\text{甲醇}):V(\text{水}) = 95:5$ 分数次淋洗, 最后用 10 mL 甲醇洗脱, 收集洗脱液至 10 mL 容量瓶, 供 HPLC 检测。上样和淋洗、洗脱过程中流速均不超过 1 mL/min。

1.4.2.3 HPLC 检测条件 Waters XBridge C₁₈ 色谱柱 (4.6 mm \times 250 mm, 5 μm); 检测波长 244 nm;

$$Y = 40.7486111 + 0.295135X_1 - 19.354342X_2 + 11.533811X_3 - 10.577839X_4 + 8.498215X_5 + 0.047069X_1^2 + 67.497774X_2^2 - 4.680967X_3^2 - 1.369677X_4^2 - 10.424209X_5^2 - 2.629590X_1X_2 + 8.832560X_1X_3 - 1.694075X_1X_4 - 5.807226X_1X_5 - 56.974893X_2X_3 - 13.403980X_2X_4 + 2.978263X_2X_5 + 24.643572X_3X_4 + 19.950343X_3X_5 - 4.741645X_4X_5$$

该回归方程 $R^2 = 0.9895$, 残差 = 2.3978, 说明该模型拟合较好, 可用于优化, 得到其最佳组合为: 吸油率 $Y = 51.18$ g/100 g 载体, 其中各载体

流动相为 $V(\text{乙腈}):V(\text{甲醇}):V[\text{水}(\text{含}0.1\% \text{三乙胺})] = 50:42:8$; 流速 1 mL/min; 进样量 20 μL ; 柱温 25 $^{\circ}\text{C}$ 。

1.4.2.4 标准曲线及添加回收试验 用甲醇配制 1 000 mg/L 的甲维盐标准品母液, 稀释成 0.5、1、5、10 和 20.0 mg/L 的标准溶液。以甲维盐的质量浓度为横坐标, 高效液相色谱测定响应值为纵坐标建立标准曲线。

在马尾松枝条中, 分别添加甲维盐标准品, 添加水平分别为 0.1、0.5、2.0、5.0 和 10.0 mg/kg, 进行回收率试验。

1.5 林间防治试验

选取福建省泉州市仙公山及浙江省杭州市临安区东湖村马尾松林, 两地皆为松材线虫病疫区。东湖村马尾松平均胸径 20.6 cm, 密度约为 1 508 株/hm², 平均株高 18.05 m; 仙公山马尾松平均胸径 18.5 cm, 密度约为 6 054 株/hm², 平均株高 11.05 m, 松脂常年分泌旺盛。在两个林区分别选取 2 块马尾松死亡率高的林地作为标准样地, 其中 1 块作为施药区, 另 1 块作为空白对照区。分别于 2018 年 1 月 4 日和 3 月 6 日进行注干施药东湖村共计施药 110 株, 仙公山共计施药 230 株。

注干施药后采用喷漆及号码牌标记, 记录每棵松树的编号、胸径及施药量。注药当日观察记录马尾松枯死树数量, 并于 2018 年 12 月统计两地试验林地马尾松枯死树数量。

2 结果与分析

2.1 复配水溶性载体配方的优化

选取苯甲酸钠、单水乳糖、羧甲基纤维素和可溶性淀粉为水溶性载体, 采用均匀试验设计方案 $U_{11}(11^4)$, 计算得到的吸油率结果见表 2。

对吸油率结果采用偏最小二乘回归分析, 得到其回归方程:

的质量分数为: 苯甲酸钠 58.08%、羧甲基纤维素 7.14%、单水乳糖 30.44%、水溶性淀粉 4.34%。按照该配比称取各载体, 混合后再测定其吸油率, 重

表 2 吸油率检测结果

Table 2 Test results of oil absorption

序号 No.	吸油率/(g/100 g 载体) Oil absorption, Y/(g/100 g carrier)
C1	43.80
C2	42.92
C3	40.60
C4	36.20
C5	33.89
C6	41.75
C7	48.76
C8	36.05
C9	33.86
C10	43.20
C11	42.96

复测量 3 次, 计算其吸油率平均值为 50.65 g/100 g 载体。该复配载体可用于造粒。

本研究中用于小试工艺造粒的 20 g 复配载体的配方为: 苯甲酸钠 11.6 g、单水乳糖 6.1 g、羧甲基纤维素(黏合剂) 1.4 g 和可溶性淀粉 0.9 g。

表 3 不同混合时间的效果

Table 3 The effect of mixing time

混合时间 Mixing time/min	单样本甲维盐有效含量 One-sample available content of emamectin benzoate/%					平均甲维盐有效含量 Average available content of emamectin benzoate/%
	1	2	3	5	6	
5	9.50	10.50	8.80	9.50	8.60	9.38 ± 0.75 a
10	10.38	10.56	10.27	10.33	10.49	10.40 ± 0.12 b
15	10.20	10.11	10.55	10.34	10.39	10.38 ± 0.18 b

注: 同列不同小写字母表示差异显著 ($P < 0.05$)。

Note: Values in the same column followed by different lowercase letters were significantly different at 0.05 level.

2.3 粒剂在树体内的溶解及传导性

2.3.1 粒剂在树体内溶解性 注药后于不同时间观察注孔内粒剂的溶解情况。结果见表 4。

表 4 可溶粒剂在马尾松树体内溶解性

Table 4 The solubility of soluble granule in *P. massoniana*

试验地 Test location	冬季平均溶解时间 Average dissolution time in winter/d	春季平均溶解时间 Average dissolution time in spring/d
东湖村 Donghu Village	7.0	3.9
仙公山 Xian' gong Mountain	13.0	7.0

2.3.2 甲维盐标准曲线及添加回收率 结果表明, 在 0.5~20 mg/L 范围内, 甲维盐的响应值与其质量浓度呈良好的线性关系, 回归方程为 $y = 10\ 076x - 1\ 316.9$, 相关系数为 0.996 6, 满足定量分析的需要^[7]。添加回收试验结果(表 5)表明: 在

2.2 中试造粒工艺及相关性能指标检测结果

称取优化后的水溶性载体 10 kg 与甲维盐油相 5 kg 于高速混合机中混合, 分别在物料混合 5、10 及 15 min 后检测混合机中各部位甲维盐的含量。结果表明, 混合 10 min 和 15 min 物料的均匀程度无显著差异(表 3)。结合机器耗能及生产效率, 选定 10 min 为生产混合时间。

根据小试工艺试验配方及最佳混合时间, 选用 SET-100 单螺杆挤压制粒机造粒, 获得中试产品甲维盐可溶粒剂, 为乳白色圆柱状固体粒剂($\Phi 10\text{ mm} \times 5\text{ cm}$), 粒剂性能指标测定结果显示, 甲维盐有效成分质量分数为 10.12%, 热贮稳定性及乳液稳定性合格, 粒剂乳液 pH 值 6.4 ± 0.3 。根据中试结果确定粒剂物料最佳配比为甲维盐 10% (折纯), OP-10 6.7%, 正丁醇 12.0%, 苯甲酸钠 39.0%, 单水乳糖 20.5%, 可溶性淀粉 3.0%, 羧甲基纤维素 4.5%。

0.1~10 mg/kg 5 个添加水平下, 甲维盐的回收率在 82%~88% 之间, 相对标准偏差在 1.5%~4.4% 之间。以最低添加水平确定定量限 (LOQ), 文中甲维盐的 LOQ 为 0.1 mg/kg, 该方法可用于甲维盐在树体内含量测定。

表 5 甲维盐在马尾松枝条中的添加回收率

Table 5 Recovery of emamectin benzoate in the branches of

<i>P. massoniana</i>		
添加水平 Fortified level/(mg/kg)	平均回收率 Average recovery/%	相对标准偏差 RSD/%
0.1	82	3.3
0.5	83	3.7
2	82	4.4
5	86	1.5
10	88	1.6

2.3.3 甲维盐在树体内的残留消解动态 对临东湖村及泉州仙公山马尾松注药后, 分别于 60 d

和 180 d 取枝条检测甲维盐的残留量, 结果见表 6。可以看出: 注干施药后, 仙公山松树中甲维盐的残留量小于东湖村的, 说明松脂分泌对药剂的吸收与传导会产生一定影响。粒剂完全溶解需要

一定时间, 先溶解的药剂被树体组织吸收传导。随粒剂的溶解, 甲维盐不断向上传导运输, 所以松树各部位甲维盐含量随着时间的延长而逐渐增加。

表 6 甲维盐在马尾松树体内传导分布动态

Table 6 The property of distribution and tranlocation of emamectin benzoate in *P. massoniana*

试验地 Test location	注药后检测时间/d Days after trunk injection	甲维盐残留量* Residue of emamectin*/(mg/kg)			平均残留量 Average residue/(mg/kg)
		1	2	3	
仙公山 Xian'gong Mountain	60	0.84 ± 0.11	0.95 ± 0.18	1.12 ± 0.11	0.97
	180	1.08 ± 0.11	1.65 ± 0.36	1.95 ± 0.15	1.56
东湖村 Donghu Village	60	1.43 ± 0.02	0.99 ± 0.13	2.47 ± 0.28	1.63
	180	5.53 ± 0.24	3.25 ± 0.10	7.68 ± 0.29	5.48

注: *表中 1、2、3 分别代表 3 个取样位置。1 为主干下部位枝条, 2 为主干中间部位枝条, 3 为主干上部枝条。

Note: *1, 2, 3 represent the sampling locations in the table. 1 represents the branches of the lower part of the trunk, 2 represents the branches the middle part of the trunk and 3 represents the branches the upper part of the trunk.

2.4 林间防治效果

统计两试验地的病死树数量。结果(表 7)表明, 采用 10% 甲维盐可溶粒剂注干施用后, 两地

试验区马尾松的死亡率大幅下降, 表明甲维盐在树体内溶解释放并经树体内传导分布, 可杀死松材线虫, 起到防治作用。

表 7 甲维盐可溶粒剂对林间松材线虫病的防治效果

Table 7 Field tests of controlling with 10% emamectin benzoate soluble granule against the pine wilt disease under field conditions

试验地 Test location	试验棵树 Number of tested trees/株	死亡数 Number of dead trees/株	死亡率 Mortality rate/%
东湖村试验区 Test site of Donghu Village	110	0	0
东湖村对照区 Control plot of Donghu Village	132	8	6.1
仙公山试验区 Test site of Xian'gong Mountain	230	4	1.7
仙公山对照区 Control plot of Xian'gong Mountain	260	28	10.8

3 结论与讨论

本研究选取苯甲酸钠、单水乳糖、羧甲基纤维素和可溶性淀粉为水溶性载体, 采用混料均匀试验设计及偏最小二乘回归分析法对水溶性载体的配方进行了优化, 以溶于正丁醇和 OP-10 的甲维盐为油相, 采用中试机械制粒法, 确定载体的配方。以小试工艺为基础, 初步建立了粒剂的中试生产工艺, 最终研制了注干用 10% 甲维盐可溶粒剂。粒剂外观为乳白色圆柱体, 各项性能指标合格。其中载体苯甲酸钠在具备高吸油率的同时兼具有一定防腐作用, 可以保护注孔周围不被微生物侵染而病变; 单水乳糖及可溶性淀粉吸油后能使粒剂具有一定硬度, 林间施用易塞入注孔; 羧甲基纤维素为黏合剂, 可提高制粒率。

将所研制的 10% 甲维盐可溶粒剂注入马尾松内, 粒剂在试验地马尾松注孔内溶解时间为 3.9~13 d, 注药 60 d 后, 在马尾松枝条中均能检测到

甲维盐, 说明粒剂能有效传导。泉州松枝样本中甲维盐平均残留量为 (60 d) 0.97 mg/L、(180 d) 1.56 mg/L, 说明甲维盐可溶粒剂能在松脂分泌旺盛地区施用。本文仅研究了甲维盐可溶粒剂能否在马尾松树体内溶解传导, 今后需进一步探讨粒剂在树体内的传导效率及其分布影响因子。从整体上看, 10% 甲维盐可溶粒剂注干后能够在树体内吸收传导, 且施药 60 d 后树体内甲维盐残留量大于松材线虫的 LC₉₀ 值 (0.75 mg/L), 为进一步林间施用奠定了基础。

林间防治试验表明, 甲维盐可溶粒剂对松材线虫病有良好的防治效果, 但泉州仙公山防治区仍有马尾松因松材线虫病死亡, 分析可能是该地区松墨天牛羽化时间早所致。据报道, 福建泉州、厦门等闽南地区松墨天牛羽化高峰期在每年 4 月, 天牛数量占全年羽化成虫的 31%^[17-18], 而泉州地区施药时间是 3 月中旬, 在甲维盐还未传导分布于松树各部位时, 松墨天牛已羽化, 其取食

传入松树的松材线虫并在松树内扩增繁殖,对松树的水分输导组织造成了破坏,导致松树水分运输失衡^[19],进而阻碍了甲维盐的传导运输。对该地施药后死亡的松树枝条进行了取样检测,也未检测到甲维盐。结合泉州市松墨天牛发生时期,该地区注干施药最佳时间应在12月至来年2月。

现代农药制剂正朝着颗粒化、水基化发展,固体剂剂具有结构稳定、生产工艺简单、使用安全及环境污染小等优点^[20]。本研究所制备的甲维盐可溶剂剂兼具以上特性,同时造粒工艺简单,可实现机械化大批量生产。在使用时,不易造成对儿童的意外伤害;由于无塑料瓶包装,故也不会造成塑料容器等载体的浪费和环境污染,在森林及城市绿化树病虫害防治中^[21]具有较好的应用前景。

参考文献 (References):

- [1] 理永霞, 张星耀. 松材线虫病致病机理研究进展[J]. 环境昆虫学报, 2018, 40(2): 231-241.
LI Y X, ZHANG X Y. Research advance of pathogenic mechanism of pine wilt disease[J]. J Environ Entomol, 2018, 40(2): 231-241.
- [2] 王曦苗, 曹业凡, 汪来发, 等. 松材线虫病发生及防控现状[J]. 环境昆虫学报, 2018, 40(2): 256-267.
WANG X Z, CAO Y F, WANG L F, et al. Current status of pine wilt disease and its control status[J]. J Environ Entomol, 2018, 40(2): 256-267.
- [3] 唐光辉, 陈安良, 冯俊涛, 等. 树干注药技术研究进展[J]. 西北林学院学报, 2006, 21(4): 117-120.
TANG G H, CHEN A L, FENG J T, et al. Review on trunk injection technique[J]. J Northwest For Univ, 2006, 21(4): 117-120.
- [4] 王慧瑜, 赵玉安, 贾耀军. 树干注射施药技术研究概况[J]. 农药学报, 2005, 7(2): 104-108.
WANG H Y, ZHAO Y A, JIA Y J. Trunk injection techniques with chemicals[J]. Chin J Pestic Sci, 2005, 7(2): 104-108.
- [5] 王龙龙, 刘钰, 崔蕊蕊, 等. 氨基阿维菌素苯甲酸盐研究开发现状与展望[J]. 农药, 2015, 54(6): 394-399.
WANG L L, LIU Y, CUI R R, et al. Research status and prospects of emamectin benzoate[J]. Agrochemicals, 2015, 54(6): 394-399.
- [6] 艾辉建, 刘志明, 黄金玲, 等. 几种杀线剂对南方根结线虫的田间药效试验[J]. 南方农业学报, 2012, 43(7): 961-964.
AI H J, LIU Z M, HUANG J L, et al. Field control efficacy trials of several nematicides on southern root-knot nematode[J]. J South Agric, 2012, 43(7): 961-964.
- [7] 刘奎, 唐良德, 李鹏, 等. 几种杀虫剂对豆大蓟马的毒力测定及复配增效作用[J]. 热带作物学报, 2014, 35(8): 1615-1618.
LIU K, TANG L D, LI P, et al. Toxicity and synergistic effect of the complex formulation of several insecticides to megalurothrips usitatus (bagnall)[J]. Chin J Trop Crop, 2014, 35(8): 1615-1618.
- [8] TAKAI K, SOEJIMA T, SUZUKI T, et al. Emamectin benzoate as a candidate for a trunk-injection agent against the pine wood nematode, *Bursaphelenchus xylophilus*[J]. Pest Manag Sci, 2000, 56(10): 937-941.
- [9] TAKAI K, SOEJIMA T, SUZUKI T, et al. Development of a water-soluble preparation of emamectin benzoate and its preventative effect against the wilting of pot-grown pine trees inoculated with the pine wood nematode, *Bursaphelenchus xylophilus*[J]. Pest Manag Sci, 2001, 57(5): 463-466.
- [10] TAKAI K, SUZUKI T, KAWAZU K. Development and preventative effect against pine wilt disease of a novel liquid formulation of emamectin benzoate[J]. Pest Manag Sci, 2003, 59(3): 365-370.
- [11] 潘伟华, 吴继来, 贾进伟, 等. 甲维盐注干施用对松材线虫病的防治效果分析[J]. 中国森林病虫, 2014, 33(6): 41-44.
PAN W H, WU J L, JIA J W, et al. Control effect of trunk injection of emamectin benzoate against pine wilt disease[J]. Forest Pest and Disease, 2014, 33(6): 41-44.
- [12] 魏方林, 魏晓林, 刘迎, 等. 农药新剂型: 微乳剂配制的可行性研究[J]. 农药学报, 2011, 13(3): 319-326.
WEI F L, WEI X L, LIU Y, et al. Feasibility study on preparing a novel pesticide formulation: micro-emulsifiable granule[J]. Chin J Pestic Sci, 2011, 13(3): 319-326.
- [13] 农药乳液稳定性测定方法: GB/T 1603—2001[S]. 北京: 中国标准出版社, 2002.
Determination method of emulsion stability for pesticides: GB/T1603—2001[S]. Beijing: Standards Press of China, 2002.
- [14] 农药pH值测定方法: GB/T1601—1993[S]. 北京: 中国标准出版社, 1994.
Determination method of pH value for pesticides: GB/T1601—1993[S]. Beijing: Standards Press of China, 1994.
- [15] 农药热贮稳定性测定方法: GB/T19136—2003[S]. 北京: 中国标准出版社, 2003.
Testing method for the storage stability at elevated temperature of pesticides: GB/T 19136—2003[S]. Beijing: Standards Press of China, 2003.
- [16] 朱昶, 韩群琦, 陈安良. 松脂二烯在植物叶片表面的成膜性能[J]. 农药学报, 2018, 20(4): 523-528.
ZHU C, HAN Q Q, CHEN A L. Film-forming properties of pinolene on leaf surface[J]. Chin J Pestic Sci, 2018, 20(4): 523-528.
- [17] 王玲萍. 松墨天牛生物学特性的研究[J]. 福建林业科技, 2004, 31(3): 23-26.
WANG L P. Study on the biological characteristic of *Monochamus alternatus* Hope[J]. J Fujian For Sci Technol, 2004, 31(3): 23-26.
- [18] 黄金水, 汤陈生, 宋惠芬, 等. 厦门市松墨天牛生物学特性. I: 生活史[J]. 华东昆虫学报, 2005, 14(2): 118-121.
HUANG J S, TANG C S, SONG H F, et al. The biological characteristic of *Monochamus alternatus* in Xiamen city. I: life history[J]. Entomol J East China, 2005, 14(2): 118-121.
- [19] KURODA K. Mechanism of cavitation development in the pine wilt disease[J]. Forest Pathol, 1991, 21(2): 82-89.
- [20] 刘红梅, 陈永, 钟国华. 农药固体剂型研究进展[J]. 广东化工, 2009, 36(5): 47-49.
LIU H M, CHEN Y, ZHONG G H. Research progress of pesticide solid formulation[J]. Guangdong Chem Ind, 2009, 36(5): 47-49.
- [21] 应倩雯, 张欣伟, 毛杨军, 等. 20% 烯啶虫胺注干可溶剂剂研制及应用[J]. 农药, 2019, 58(1): 30-32.
YING Q W, ZHANG X W, MAO Y J, et al. The development and application of nitenpyram 20% soluble granule for trunk injection[J]. Agrochemicals, 2019, 58(1): 30-32.

(责任编辑: 金淑惠)