

• 研究论文 •

草甘膦铵盐在苎麻田的残留及消解动态

王彦辉, 李欣, 周小毛*, 柏连阳, 蔡海林

(湖南农业大学 农药研究所, 长沙 410128)

摘要:建立了简单、灵敏的土壤及苎麻中草甘膦残留量的气相色谱检测方法。土壤样品用 0.01 mol/L 的氢氧化钠水溶液提取, 其他样品用水和丙酮提取, 经阴离子交换柱 (AG 1-X 8) 净化, 与原乙酸三甲酯 (TMOA) 和冰醋酸反应, 用气相色谱带火焰光度检测器 (FPD) 检测, 外标法定量。结果表明: 当草甘膦在麻苑和土壤中的添加水平在 0.05~1 mg/kg 时, 添加回收率分别为 73.6%~102.6% 和 85.9%~105.1%, 相对标准偏差分别为 2.3%~8.1% 和 5.4%~13.0%。草甘膦的最小检出量 (LOD) 为 0.5×10^{-10} g 在麻苑中的最低检测浓度 (LOQ) 为 0.05 mg/kg。2 年 3 地的残留试验结果表明: 草甘膦铵盐在湖南省、广西壮族自治区及福建省土壤中的半衰期分别为 1.6~2.6 d、1.0~1.8 d 和 1.1~1.5 d。无论是在高浓度处理区 [有效成分 3375 g/hm²] 还是在低浓度处理区 [有效成分 2250 g/hm²], 苎麻收获时 (距施药 60 d), 土壤和麻苑样品中均未检出草甘膦铵盐。

关键词: 草甘膦; 草甘膦铵盐; 苎麻; 残留分析; 消解动态

DOI 10.3969/j.issn.1008-7303.2010.02.15

中图分类号: O657.7; TQ450.263

文献标志码: A

文章编号: 1008-7303(2010)02-0201-06

Residue and field decline study of glyphosate-ammonium in ramie field

WANG Yan-hui, LI X in, ZHOU Xiao-mao*, BA I Lian-yang, CA I H ai-lin

(Institute of Pesticide Science, Hunan Agricultural University, Changsha 410128, China)

Abstract A simple sensitive and selective method using gas chromatography equipped with flame photometric detector (GC-FPD) was developed to determine residues of glyphosate-ammonium in soil and ramie root. Soil samples were extracted with 0.01 mol/L sodium hydroxide and other samples were extracted with water and acetone. Glyphosate was previously derived with trimethylorthoacetate (TMOA) in the presence of acetic acid. Combination of AG 1-X 8 anion exchange chromatography with Florisil cartridge cleanup process was favorable for the GC-FPD analysis. The recovery ranged from 73.6% to 102.6% and 85.9% to 105.1% with the relative standard deviations of 2.3% to 8.1% and 5.4% to 13.0%, respectively. The limit of detection (LOD) of the method was 0.5×10^{-10} g. The limit of quantification (LOQ) was 0.05 mg/kg. The half-life of glyphosate-ammonium was 1.6–2.6 d, 1.0–1.8 d and 1.1–1.5 d in soil of Hunan, Guangxi and Fujian Province at two years.

收稿日期: 2010-03-04 修回日期: 2010-04-27

作者简介: 王彦辉 (1984), 男, 河南开封人, 在读博士, 主要从事农药残留分析与环境行为研究, E-mail: wangyh1984@163.com; * 通讯作者 (Author for correspondence): 周小毛 (1972), 男, 湖南郴州人, 副教授, 主要从事农药残留分析研究, 电话: 0731-84635056 E-mail: zhouxm1972@126.com

基金项目: 国家现代麻类产业体系专项 (nycyk-19-E09); 国家自然科学基金资助项目 (30971936).

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

respectively. No glyphosate-ammonium residues were detected in ramie and soil samples at treatments of 2 250– 3 375 g(a. i.)/ha at harvest season (60 days after the treatment).

Key words glyphosate; glyphosate-ammonium; ramie; residue; decline

苧麻是重要的纺织纤维作物,以分蘖繁殖为主。苧麻败蔸是指正处在高产期的壮龄麻园出现代谢衰退,地下根茎干枯及腐烂,新芽少而细弱,地上部表现为有效株少且普遍矮小、黄瘦等症状。近些年来由于出现苧麻败蔸而造成苧麻产量下降的现象多有发生。据笔者调查发现,苧麻败蔸的出现与草甘膦的使用有关。为了弄清草甘膦残留量与苧麻败蔸之间的关系,笔者在湖南长沙、广西南宁和福建莆田进行了草甘膦铵盐在苧麻田中的残留研究。

草甘膦(glyphosate, CAS No. 1071-83-6)化学名称为N-膦酰基甲基甘氨酸,属高效广谱除草剂,已在果园、桑园、茶园、麻园及轮作地块得到广泛应用。由于草甘膦不溶于一般的有机溶剂,加之其与土壤中矿物质和有机物的结合能力很强,以及受植物中的糖类和色素干扰及衍生化等因素的影响^[1-2],使草甘膦的残留分析难度较大。目前报道的草甘膦分析方法主要有:离子色谱-电导检测器、高压液相色谱(HPLC)、气相色谱-质谱(GC-MS)、HPLC-MS、离子色谱-光栅检测器,以及酶联免疫吸附测定(ELISA)、毛细管电泳(CE)、薄层层析(TLC)等^[3-10]检测方法,但这些方法均存在操作繁琐、重现性不好、费用高等缺点。本实验室在文献[11-12]的基础上,摸索出了简便易行的土壤和苧麻中草甘膦残留量的气相色谱(GC)分析方法,现将有关结果报道如下。

1 材料与方法

1.1 主要仪器及药剂

2010型岛津气相色谱仪,带火焰光度检测器(GC-FPD),DB-1701毛细管柱(30 m × 0.53 mm × 1 μm)及色谱工作站;N-1100型旋转蒸发器(东京理化器械株式会社);SHZ-B型调速多用振荡器(上海博讯实业医疗设备厂);KA T25匀浆机(德国

KA公司);LD5-2A型离心机(北京京立离心机有限公司);RS-1型涡旋器(北京昊诺斯科技有限公司);SY-600-40F型超声波清洗机(上海苏豫电子有限公司);KL512型氮吹仪(北京康林科技有限责任公司)。

99%草甘膦(glyphosate)标准品和75%草甘膦铵盐(glyphosate-ammonium)可溶性粉剂,均由四川省川东农药化工有限公司提供;原乙酸三甲酯(TMOA),纯度≥99%,Sigma公司产品;AG1-X8阴离子交换柱(BIO-RAD公司);乙酸乙酯为色谱纯,其他试剂为分析纯。

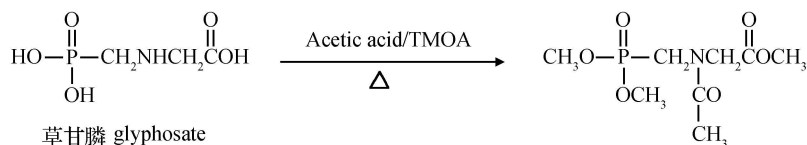
1.2 分析方法

1.2.1 样品前处理

1.2.1.1 土壤样品 称取5 g土壤用25 mL 0.01 mol/L的氢氧化钠振荡提取30 min,于3 500 r/min下离心20 min,取上清液用1 mol/L的盐酸调pH到中性,用F1 whatman滤纸过滤到250 mL玻璃瓶中。重复提取1次。取AG1-X8小柱用10 mL去离子水活化,加入土壤样品提取液30 mL(相当于30 g土壤),用15 mL丙酮洗脱,弃去洗脱液的前40%,再用0.5 mol/L的盐酸30 mL洗脱,在低于55 °C的条件下减压蒸干,待衍生化反应。

1.2.1.2 麻蔸样品 称取5 g粉碎的麻蔸于离心管中,加25 mL去离子水振荡10 min,静止1 min,加入15 mL丙酮,于3 500 r/min下离心提取15 min,取上清液。AG1-X8小柱净化步骤同土壤。

1.2.1.3 衍生化反应 取蒸干的样品用0.7 mL冰醋酸和1.5 mL TMOA在混合器中混合,超声5 min后,用聚丙烯移液管转移到5 mL具有聚四氟乙烯内衬的螺旋盖反应瓶中,70 °C下热处理60 min(反应式如Scheme 1)。用自来水冷却,用氮气吹干反应液后,将其溶解于1.0 mL乙酸乙酯中,待净化。



Scheme 1

1.2.1.4 净化 取 Fbrisil固相萃取小柱 (500 mg 6 mL), 先用 5 mL 乙酸乙酯淋洗, 再加入衍生化产物, 用 10 mL 乙酸乙酯淋洗并弃去洗脱液, 改用 15 mL 丙酮-甲醇 (体积比 1:1) 洗脱, 洗脱液经旋转蒸发仪蒸干, 用 1 mL 乙酸乙酯定容, 待检测。

1.2.2 GC分析条件 进样口温度 250 ℃; 检测器温度 280 ℃; 载气为 5.0 mL/min 的高纯氮气; 程序升温: 初始温度 80 ℃, 保留 1 min, 30 ℃/min 升温到 170 ℃, 保持 1 min, 10 ℃/min 升温到 250 ℃, 保持 3 min 进样量 1 μL。草甘膦衍生物在此条件下的保留时间为 13.2 min 左右。

1.2.3 标准曲线制作 配制质量浓度分别为 0.1, 0.2, 0.5, 1.0, 2.0 和 5.0 mg/L 的草甘膦标准溶液, 各取 1 mL 进行衍生化处理, 用乙酸乙酯定容至 1 mL。进样分析, 以进样量为横坐标, 峰面积为纵坐标, 制作标准曲线。

1.2.4 添加回收率试验 准确添加草甘膦标准溶液于空白土壤和粉碎的麻兜样品中 (添加水平分别为 0.05, 0.1, 1 mg/kg), 室温下振荡 15 min。土壤样品于 4 ℃冰箱中静置 24 h 以便于草甘膦样品与土壤之间进行充分的作用。按上述前处理及分析方法操作, 测定回收率, 每个浓度设 3 次重复。

1.3 草甘膦铵盐在土壤中的消解动态和最终残留

1.3.1 消解动态试验 选取 30 m² 的试验区, 于 3 月中旬 (苎麻发芽前), 用 75% 的草甘膦铵盐可溶性粉剂以有效成分 3.375 g/hm² 的施药量均匀喷湿土壤, 分别于药后 2 h 和 1, 3, 5, 7, 10, 14, 21, 30, 45 d 采用专用取土工具, 多点采集土样 2.0 kg 取土深度为 0~10 cm, 风干后过筛 (孔径 1 mm), 混匀, 分取 300 g 装入塑料袋中, 置于 -20 ℃冰柜中贮存待测。

1.3.2 最终残留试验 选取有代表性的地块设为 5 个处理, 每处理设 3 个重复小区。5 个处理分别为: 用 75% 的草甘膦铵盐可溶性粉剂 (有效成分 3.375 g/hm²) 施药 2 次、1 次, 75% 草甘膦铵盐可

溶性粉剂 (有效成分 2.250 g/hm²) 施药 2 次、1 次和空白对照。5 个处理顺序排列, 区间设保护行。对供试土壤进行均匀喷雾, 对照区不施药。分别于最后一次施药后 7, 14, 21 d 采集土壤样品和麻兜样品。土壤样品的采集方法同 1.3.1 节, 采样深度 0~15 cm; 麻兜样品采用随机方法多点取样, 取生长正常、无病害、成熟的麻兜 2.0 kg 用四分法取 250 g 装入聚乙烯塑料密封袋中, 于 -20 ℃冰柜中贮存待测。

2 结果与分析

2.1 线性关系

草甘膦的标准曲线见图 1。其线性方程为 $y = 1414.7x - 38.831$, 相关系数 $R^2 = 0.991$ 。草甘膦在质量浓度为 0.1~5 mg/L 范围内线性关系良好。

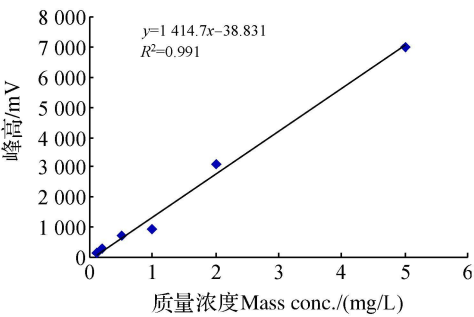


图 1 草甘膦的标准曲线

Fig 1 Standard curve for quantification of glyphosate

2.2 方法的准确度、灵敏度和精密度

在土壤和麻兜中添加水平为 0.05~1 mg/kg 的草甘膦, 平均回收率在 80.7%~98.6% (见表 1), 其典型色谱图见图 2。在本实验条件下, 土壤中最小检出量 ($S/N = 3$) 为 9×10^{-12} g, 最低检测浓度 ($S/N = 10$) 为 0.05 mg/kg。相关系数在 7.46%~11.8% 之间, 达到农药残留分析对灵敏度的要求。

表 1 草甘膦在土壤和麻兜中的添加回收率

Table 1 Recovery of glyphosate in soil and ramie root fortified with glyphosate

样品 Sample	添加水平 Fortified level/(mg/kg)	回收率 Recovery (%)					平均回收率 Average recovery (%)	相对标准偏差 RSD (%)
		1	2	3	4	5		
土壤 Soil	0.05	87.7	89.4	87.3	75.5	89.8	85.9	5.97
	0.1	83.0	86.4	81.4	112.6	84.3	89.5	13.15
	0.5	96.5	110.9	106.2	107.6	104.5	105.1	5.41
麻兜 Ramie root	0.05	70.8	76.3	72.0	73.7	75.4	73.6	2.32
	0.5	100.1	97.0	99.7	116.9	99.5	102.6	8.10
	1	84.1	89.5	95.3	97.4	80.1	89.3	7.31

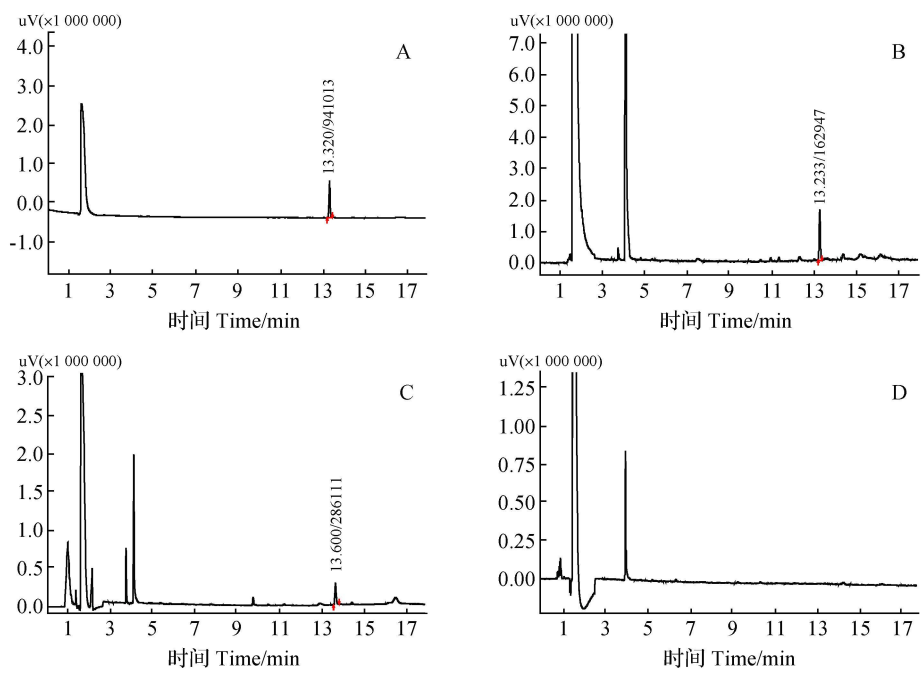


图 2 草甘膦衍生化产物的气相色谱图

Fig 2 GC chromatogram of glyphosate-derivatives

A—草甘膦标样; B—土壤添加 0.5 mg/kg C—麻菀添加 1mg /kg D—空白。

A—Chromatogram of standard; B—Fortified at 0.5 mg/kg in soil; C—Fortified at 1mg/kg in ramie root; D—Control

2 3 样品前处理

2 3 1 提取剂的选择 由于草甘膦与土壤的结合能力强^[13-15],用水提取的回收率未能达到农药残留分析的要求;有人曾采用氢氧化钠、氢氧化钾、磷酸二氢钾等水溶液^[16]提取,但由于所用提取液的浓度过大,提取出草甘膦的同时还会引入大量杂质,导致固相萃取柱净化和衍生化过程失败。本试验在文献的基础上采用 0.01 mol/L 的氢氧化钠提取,回收率在 80.7%~98.6% 之间,达到农药残留分析的

要求。

2 3 2 衍生化 由于衍生化试剂受湿度的影响较大,所以反应应尽量在湿度较小的条件下进行。在文献的基础上对反应温度和时间进行优化的结果为 70℃反应 60 min 效果最好。

2 4 土壤中草甘膦铵盐的消解动态和最终残留 测定结果见表 2 和表 3。草甘膦铵盐在 3 地土壤中的残留消解半衰期分别为:湖南长沙 2~3 d 福建莆田 1~2 d 广西南宁 1~2 d 属于降解较快的药剂。

表 2 草甘膦铵盐在土壤中消解动态试验结果

Table 2 The residue decline of glyphosate-ammonium in soils in three areas

采样时间 Sampling time/d	残留量 (2008) Residue in soil/(mg/kg)			残留量 (2009) Residue in soil/(mg/kg)		
	长沙 Changsha	南宁 Nanning	莆田 Putian	长沙 Changsha	南宁 Nanning	莆田 Putian
0	5.00	8.40	3.90	2.84	8.94	3.12
1	2.51	6.30	1.43	1.23	4.26	2.02
2	1.50	2.60	0.37	0.63	1.36	0.84
3	0.96	1.10	0.28	0.43	0.73	0.34
5	0.51	0.17	0.13	0.31	0.26	0.31
7	0.33	0.13	0.038	ND*	0.10	ND
14	0.10	ND	ND	ND	0.04	ND

ND*: 未检出 (Not detected)。

表 3 草甘膦铵盐在土壤中的消解动态方程、相关系数及半衰期
Table 3 Decline dynamic equations, correlation coefficient and half-life
of glyphosate-ammonium in soils

地点 Area	年份 Year	消解动态方程 $c_t = c_0 e^{-kt}$	相关系数 (R^2) Correlation coefficient	半衰期 /d Half-life
长沙 Changsha	2008	$c_t = 2.816 e^{-0.2637t}$	0.922 0	2.6
	2009	$c_t = 2.028 e^{-0.4329t}$	0.886 4	1.6
南宁 Nanning	2008	$c_t = 10.674 e^{-0.5370t}$	0.958 2	1.0
	2009	$c_t = 4.786 e^{-0.3237t}$	0.900 4	1.8
莆田 Putian	2008	$c_t = 2.395 e^{-0.6166t}$	0.941 9	1.1
	2009	$c_t = 2.523 e^{-0.4553t}$	0.923 6	1.5

75.7%草甘膦铵盐可溶性粉剂在湖南、福建、广西土壤中以有效成分含量 $2\,250\text{ g/hm}^2$ 的剂量施药 1~2 次,药后 7~21 d 其在土壤中的最终残留量低于 0.05 mg/kg 以推荐剂量的两倍 (有效成分 $3\,375\text{ g/hm}^2$) 施药 1~2 次,药后 21 d 的残留量 $\leq 0.05\text{ mg/kg}$ (表 4)。不论高剂量还是低剂量处理,苾麻收获时在供试 3 地的麻苑中均未检出草甘膦最终残留。

表 4 土壤中草甘膦铵盐的最终残留量
Table 4 The final residues of glyphosate-ammonium in soils

地点 Area	施药剂量 Dose(a.i.) / (g/hm^2)	施药次数 Application frequency	2008			2009		
			间隔 Interval /d			间隔 Interval /d		
			7	14	21	7	14	21
长沙 Changsha	2 250	1	0.25	0.06	ND*	0.07	ND	ND
		2	0.18	ND	ND	0.1	ND	ND
	3 375	1	0.43	0.04	ND	0.27	0.08	ND
		2	1.67	0.53	0.05	1.30	0.82	0.05
南宁 Nanning	2 250	1	0.11	ND	ND	0.06	ND	ND
		2	0.61	0.08	ND	ND	ND	ND
	3 375	1	1.35	0.26	ND	1.22	0.61	0.1
		2	0.84	0.33	ND	0.25	ND	ND
莆田 Putian	2 250	1	0.45	0.07	ND	1.07	ND	ND
		2	0.14	ND	ND	1.30	0.09	ND
	3 375	1	0.37	ND	ND	2.18	1.04	ND
		2	0.21	ND	ND	1.07	0.37	ND

ND*: 未检出 (Not detected)。

3 结果与讨论

草甘膦极性很强,挥发性低,结构中缺少发光或荧光基团,因而其很难用 HPLD-紫外检测器 (HPLC-UV)、HPLC-荧光检测器 (FLD) 和 GC 直接分析,通过与衍生化试剂反应可降低其极性,增强挥发性。HPLC 法主要用于分析能被紫外-可见检测器或荧光检测器检测的物质,主要缺点是易受带荧光或具有紫外吸收基团的杂质影响,同时,产生的副产物也可干扰对草甘膦的测定。很多研究采用 GC 法^[16-19]检测草甘膦,但由于受到衍生化试剂的影响而限制了其发展。

苑中的残留分析方法。土壤样品用 0.01 mol/L 的氢氧化钠提取,其他样品用水和丙酮提取,经 AG 1-X8 小柱净化,与 TMOA 衍生化反应,经 Fbrisil (硅藻土) 固相萃取小柱净化,采用 GC-FPD 分析。当草甘膦在麻苑、土壤中的添加水平在 $0.05\sim 1\text{ mg/kg}$ 时,添加回收率分别为 $85.9\%\sim 105.1\%$ 和 $78.4\%\sim 100.0\%$,RSD 分别为 $5.4\%\sim 13.0\%$ 和 $2.3\%\sim 8.1\%$ 。其中的衍生化反应为一步反应,操作方便,重现性好,符合农药残留的要求。

试验结果表明:草甘膦铵盐在供试 3 地土壤中的降解速率均较快,其残留量大与败苑之间应该没有直接的关系。但考虑到草甘膦铵盐的用量较大,使用历史较长,可能对土壤的理化性质产生了影

响,进而改变了苧麻的生长环境,使苧麻的败菟量增多^[20]。有关草甘膦与苧麻败菟之间的具体关系还有待进一步研究。

参考文献:

- [1] ABDULLAHM P, DAUD J HONG K S, et al. Improved method for the determination of glyphosate in water [J]. J Chromatogr A, 1995 697 (122): 363–369.
- [2] G M SINGAL, BORGGARDO K, BANG M. Influence of soil composition on adsorption of glyphosate and phosphate by contrasting Danish surface soils [J]. Euro J Soil Sci, 2004 55 (1): 183–191.
- [3] CHEN Z L, HE W X, BEER M, et al. Speciation of glyphosate, phosphate and anionomethylphosphonic acid in soil extracts by ion chromatography with inductively coupled plasma mass spectrometry with an octopole reaction system [J]. Talanta, 2009 (78) 852–856.
- [4] PATSIAS J, PAPADOPOULOU A, PAPADOPOULOU-MOURKIDOU E. Automated trace level determination of glyphosate and anionomethylphosphonic acid in water by on-line anion-exchange solid-phase extraction followed by cation-exchange liquid chromatography and post-column derivatization [J]. J Chromatogr A, 2001, 932 83–90.
- [5] CHU H Y, LIN Z Y, TU H L, et al. Analysis of glyphosate and anionomethylphosphonic acid by capillary electrophoresis with electrochromiluminescence detection [J]. J Chromatogr A, 2008, 1177 195–198.
- [6] HOGENDOORN E A, OSSENDER J V E R F M, DIJKMAN E, et al. Rapid determination of glyphosate in cereal samples by means of pre-column derivatization with 9-fluorenylmethyl chloroformate and coupled-column liquid chromatography with fluorescence detection [J]. J Chromatogr A, 1999, 833 67–73.
- [7] NEDELKOSKA T V, LOW G K C. High-performance liquid chromatographic determination of glyphosate in water and plant material after pre-column derivatization with 9-fluorenylmethyl chloroformate [J]. Analytica Chimica Acta, 2004, 511 145–153.
- [8] GARCIADELLASERA M P, GOMEZ-ALMARAZ L, VERAVALA L E. Matrix solid-phase dispersion extraction and determination by high-performance liquid chromatography with fluorescence detection of residues of glyphosate and anionomethylphosphonic acid in tomato fruit [J]. J Chromatogr A, 2005 1093: 139–146.
- [9] FREUZE I, JADAS-HECART A, ALAN R, et al. Influence of complexation phenomena with multivalent cations on the analysis of glyphosate and anionomethylphosphonic acid in water [J]. J Chromatogr A, 2007 1175: 197–206.
- [10] MALLAT E, BARCELO D. Analysis and degradation study of glyphosate and of anionomethylphosphonic acid in natural waters by means of polymeric and ion-exchange solid-phase extraction columns followed by ion chromatography-post-column derivatization with fluorescence detection [J]. J Chromatogr A, 1998 823 129–136.
- [11] THURBIDE K B, COOKE B W, AUE W A. Novel flame photometric detector for gas chromatography based on counter-current gas flows [J]. J Chromatogr A, 2004 1029 193–203.
- [12] TSENG S H, LO Y W, CHIU P, et al. Simultaneous quantification of glyphosate, glufosinate, and their major metabolites in rice and soybean sprouts by gas chromatography with pulsed flame photometric detector [J]. J Agric Food Chem, 2004 52(13), 4057–4063.
- [13] MCCONNELL J S, HOSSNER L R. pH-dependent adsorption isotherms of glyphosate [J]. J Agric Food Chem, 1985, 33(6): 1075–1078.
- [14] HANCER J. Adsorption of glyphosate by soils [J]. Pestic Sci, 1976 7 363–366.
- [15] DIBYENDU N Y, SAMIR K. Development of an analytical method for the determination of glyphosate and (anionomethyl) phosphonic acid residues in soils by nitrogen-selective gas chromatography [J]. J Agric Food Chem, 1989, 37: 441–443.
- [16] STALKA S C D, PLIDIS G A. Development of a method for the simultaneous determination of phosphoric and amino acid group containing pesticides by gas chromatography with mass-selective detection optimization of the derivatization procedure using an experimental design approach [J]. J Chromatogr A, 2000, 872 215–225.
- [17] KATAOKA H, RYU S, SAKIYAMA N, et al. Simple and rapid determination of the herbicides glyphosate and glufosinate in river water, soil and carrot samples by gas chromatography with flame photometric detection [J]. J Chromatogr A, 1996, 726 253–258.
- [18] TSUJIM, AKIYAMA Y, Yano M. Simultaneous determination of glufosinate and its metabolite and glyphosate in crops [J]. Anal Sci 1997 13, 283–285.
- [19] HU Ji-yue(胡继业), ZHAO Dian-ying(赵殿英), NING Jun(宁君), et al. 气相色谱-氮磷检测器测定草甘膦在土壤和苹果中的残留量 [J]. Chin J Pestic Sci (农药学学报), 2007 9(3): 285–290.
- [20] LIN Da-shun(林大舜), ZHANG Jian-hua(张建怀), CUI Jian-ping(崔剑平), et al. 沅江苧麻败菟原因分析及防治措施探讨 [J]. Plant Fiber Prod (中国麻业), 2005, 27(3): 154–156.

(责任编辑: 金淑惠)