

分散固相萃取净化-气相色谱-质谱联用法测定 茶叶中7种杀螨杀虫类农药残留

李 玮¹, 贾彦博¹, 林伟杰¹, 王秀丽¹, 金崇崇¹, 马慧丽¹, 洪春来^{2*}

(1. 杭州市食品药品检验研究院, 杭州 310014; 2. 浙江省农业科学院, 杭州 310021)

摘 要: **目的** 建立茶叶中7种农药残留的快速检测方法。**方法** 采用分散固相萃取净化, 气相色谱-质谱法(gas chromatography-mass spectrometry, GC-MS)测定茶叶中噻螨酮、噻嗪酮、哒螨灵、啶螨醚、苯醚甲环唑、联苯菊酯和氟氰戊菊酯7种农药的残留。**结果** 7种农药在0.05~5.00 mg/kg范围有良好的线性关系, 相关系数均大于或等于0.9995。3个浓度的平均加标回收率为70%~115%, 相对标准偏差为5.0%~13.2%; 方法检出限(limit of detection, LOD)为0.005~0.05 mg/kg, 定量限(limit of quantitation, LOQ)为0.015~0.15 mg/kg。采用此方法抽检了我国不同地区市场上的110批次的茶叶样品, 其中有15批次样品检出联苯菊酯, 含量在24~1640 µg/kg之间; 有4批次样品中检出噻嗪酮, 含量在35~150 µg/kg之间; 3批次样品检出哒螨灵, 含量在70~200 µg/kg之间。**结论** 本方法符合农药残留分析标准的要求, 可用于茶叶中7种农药残留的快速检测和确证分析。**关键词:** 分散固相萃取; 气相色谱-质谱法; 茶叶; 噻螨酮; 噻嗪酮; 哒螨灵; 啶螨醚; 苯醚甲环唑; 联苯菊酯; 氟氰戊菊酯

Determination of 7 pesticides residues in tea by gas chromatography-mass spectrometry combined with dispersive solid phase extraction

LI Wei¹, JIA Yan-Bo¹, LIN Wei-Jie¹, WANG Xiu-Li¹, JIN Chong-Chong¹, MA Hui-Li¹, HONG Chun-Lai^{2*}

(1. Hangzhou Institute for Food and Drug Control, Hangzhou 310014, China; 2. Zhejiang Academy of Agricultural Sciences, Hangzhou 310021, China)

ABSTRACT: Objective To establish a rapid detection method for 7 pesticide residues in tea. **Methods** The residues of hexythiazox, buprofezin, pyridaben, fenazaquin, difenoconazole, bifenthrin and flucythrinate in tea were detected by dispersion solid phase extraction purification combined with gas chromatography-mass spectrometry (GC-MS). **Results** The 7 pesticides had good linear relationships in the range of 0.05~5.00 mg/kg, and the correlation coefficients were larger than or equal to 0.9995. The recoveries of 7 pesticides of 3 different spiked levels were 70%~115%, with the relative standard deviations of 5.0%~13.2%. The limits of detection for 7 pesticides were 0.005~0.05 mg/kg, and limits of quantitation, were 0.015~0.15 mg/kg. The results of application of the established method in the detection of 110 batches of tea samples in different regions of China showed that, flucythrinate was detected in 15 batches of samples, and the content was 24~1640 µg/kg, buprofezin was detected in 4 batches of

基金项目: 浙江省食药监管系统科技计划资助项目(SP201709)

Fund: Supported by Zhejiang Province Food Drug Regulatory System Science and Technology Project Funded Project (SP201709)

*通讯作者: 洪春来, 副研究员, 主要研究方向为固体废弃物资源化利用与环境修复。E-mail: 82004897@qq.com

*Corresponding author: HONG Chun-Lai, Associate Researcher, Zhejiang Academy of Agricultural Sciences, Hangzhou 310021, China
E-mail: 82004897@qq.com

samples, and the content was 35~150 $\mu\text{g/kg}$, and pyridaben was detected in 3 batches of samples, and the content was 70~200 $\mu\text{g/kg}$. **Conclusion** The established method meets the requirements of pesticide residue analysis standard, which is suitable for the rapid detection and corroboration analysis of 7 pesticide residues in tea.

KEY WORDS: dispersive solid phase extraction; gas chromatography-mass spectrometry; tea; hexythiazox; buprofezin; pyridaben; fenazaquin; difenoconazole; bifenthrin; flucythrinate

1 引言

哒螨灵、噻螨酮、啮螨醚、噻嗪酮、联苯菊酯、氟氰戊菊酯和苯醚甲环唑为广谱杀螨剂及杀虫剂,可用于防治多种植物性害螨。目前,7种农药为我国茶园、果园、蔬菜上常用农药,用于防治螨类害虫。杀螨剂类农药可破坏昆虫的新生表皮形成,干扰昆虫的正常生长发育,引起害虫死亡;具触杀和渗透性、胃毒作用强,具有高活性、高选择性和长残效期的特点。农田杀虫剂大面积的喷洒,容易造成土壤的直接污染,并会对水体造成一定的污染,长期使用会造成农药在作物上的残留。目前我国规定茶叶中哒螨灵、噻螨酮、啮螨醚、噻嗪酮、联苯菊酯、氟氰戊菊酯和苯醚甲环唑的最高限量值分别为 5、15、15、10、5、20 和 10 mg/kg ,而欧盟规定茶叶中哒螨灵、噻嗪酮、噻螨酮和苯醚甲环唑残留的最高限量值均为 0.05 mg/kg ,啮螨醚残留的最高限量值为 0.01 mg/kg ,联苯菊酯残留的最高限量值为 5 mg/kg ,氟氰戊菊酯残留的最高限量值为 0.1 mg/kg ^[1],高严格要求使得 7 种农药残留成为影响我国茶叶出口的绿色壁垒。

近年来对 7 种农药残留的检测多用液相色谱法、气相色谱法、液相色谱-质谱联用法和气相色谱-质谱法^[2-10],已有的多农残检测方法中^[11-15],前处理往往采用液液萃取或固相萃取柱净化的方式,步骤多、处理繁琐、前处理设备成本昂贵,近年来,分散固相萃取净化技术因其具有简便、快速、成本低的特点,广泛应用于农残检测中^[16],但是在茶叶中的应用较少。本研究利用分散固相萃取净化结合气相色谱-质谱法(gas chromatography-mass spectrometry, GC-MS),建立茶叶中 7 种农药残留同时分析方法,本方法高效、简便、快速、灵敏度高、重现性好,定量限、回收率与精密度均满足残留分析和残留限量要求,同时对其他食品中 7 种农药残留的检测具有参考意义。

2 材料与方法

2.1 仪器及试剂

仪器: Agilent7890B-5977AGC-MS (安捷伦科技有限公司); Neofuge 15R 离心机(上海力申科学仪器有限公司); 旋转蒸发仪(俄罗斯 IKA 公司)。

试剂: 乙腈(色谱纯),本方法所用水均为蒸馏水,所

用试剂均购自杭州华东医药股份有限公司。

哒螨灵、啮螨醚、噻嗪酮、噻螨酮、苯醚甲环唑、联苯菊酯、氟氰戊菊酯 7 种农药标准物的质量浓度均为 100 mg/L (纯度均在 99%以上,使用时用正己烷稀释配成标准工作液,所有标准品均购自美国 Accu Standard Inc 公司)。

2.2 实验步骤

取绿茶样品约 200 g,分别放入粉碎机中磨碎成供分析样品。称取粉碎后的试样 2.00 g 至 50 mL 塑料离心管中,加入 10 mL 含 0.1%乙酸的乙腈、6.0 g 无水硫酸镁、1.5 g 无水乙酸钠,于高速分散均质器高速均质 2 min, 6000 r/min 离心 5 min,移取 2 mL 上层清液于盛有 50 mg PSA 吸附剂、230 mg 无水硫酸镁、50 mg C_{18} 和 20 mg 活性炭的小离心管中,1500 r/min 涡混 2 min, 6000 r/min 离心 1 min,取上清液转入样品瓶直接进样 GC-MS 检测。

2.3 实验条件

2.3.1 气相色谱条件

色谱柱: VF-5 ms (30 $\text{m} \times 0.25 \text{ mm}$, 0.25 μm); 进样口温度: 250 $^{\circ}\text{C}$, 初始温度 60 $^{\circ}\text{C}$, 保持 1 min, 以 30 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 的速度升至 130 $^{\circ}\text{C}$, 10 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 升至 300 $^{\circ}\text{C}$, 保持 5 min; 载气: 氦气, 流速: 1.0 mL/min , 进样量: 1 μL 。

2.3.2 质谱条件

电子轰击源(electron impact, EI); 传输线温度: 280 $^{\circ}\text{C}$, 离子源温度: 230 $^{\circ}\text{C}$, 不同种农药的扫描离子参数见表 1。

表 1 7 种农药的选择离子参数
Table 1 The SIM parameters of 7 pesticides

农药	监测离子 (m/z)	反应时间 (min)
噻嗪酮(hexythiazox)	84, 156, 227	14.045
噻嗪酮(buprofezin)	105, 172, 249	14.978
联苯菊酯(bifenthrin)	181, 165, 166	17.151
啮螨醚(fenazaquin)	117, 145, 160	17.416
哒螨灵(pyridaben)	117, 132, 147	19.010
氟氰戊菊酯(flucythrinate)	157, 181, 199	19.955
氟氰戊菊酯(flucythrinate)	157, 181, 199	20.141
苯醚甲环唑(difenoconazole)	265, 323	21.107
苯醚甲环唑(difenoconazole)	265, 323	21.192

3 结果与分析

3.1 提取剂的选择

本实验以茶叶样品的加标回收率为指标, 考察了正己烷、乙酸乙酯、二氯甲烷、乙腈(含 0.1%乙酸)、正己烷与丙酮(1:1, V/V)对茶叶样品中 7 种农药残留的提取效率。实验结果表明: 除以正己烷、乙酸乙酯为提取剂时提取效率低, 对大部分农药基本上没有回收外, 其他几种提取剂的提取效率都较好。用正己烷-丙酮(1:1, V/V)、二氯甲烷或乙腈(含 0.1%乙酸)为提取剂时, 7 种农药都有较好的加标回收率。考虑到正己烷-丙酮(1:1, V/V)和二氯甲烷的脂溶性较大, 使得提取物中的杂质较多, 增加了净化的困难。通过实验发现采用乙腈(含 0.1%乙酸)作为提取液, 以无水乙酸钠代替氯化钠作为盐析剂, 可以使如哒螨灵、啶螨醚等农药的回收率得到明显提高。该部分农药属于对碱敏感农药, 借助乙酸/乙酸钠缓冲系统控制了水相和有机相的酸碱度, 改善了其对碱的敏感性, 从而使得回收率得以提高。因此最终选择 0.1%乙酸的乙腈做提取剂。

考虑到干物质成茶的特性, 单纯有机溶剂渗透难, 提取困难, 通常加入一定量的水浸润后, 再加入有机溶剂提取。本研究取 2 g 绿茶添加样, 考察其加入不同量的水浸润 30 min 后, 再加入 0.1%乙酸的乙腈提取的 7 种农药回收率效果。实验结果表明, 随着加水量的变化, 回收率先降低后升高, 2 次平行的偏差亦有此趋势, 表明在水中溶解度小的这 7 种农药, 通过加入水浸泡茶叶提取, 并不能改善提取效果, 反而会增加咖啡碱等水溶性杂质的浸出而加大后续净化难度。因此最终选择 0.1%乙酸的乙腈做提取剂, 既能减少杂质共提物, 同时在提取茶鲜叶时能更利于与水分层。

3.2 吸附剂的选择

本研究首先考察了 N-丙基乙二胺(primary secondary

amine, PSA)、C₁₈、石墨化碳黑(graphitized carbon black, GCB)、弗罗里硅土对 4 种农药的吸附情况。分别在 1 mL 100 µg/L 标准溶液(乙腈溶剂)中, 各加入 0.300 g 的 PSA、C₁₈、石墨碳黑(GCB)、弗罗里硅土, 涡旋混匀 1 min 后离心, 过滤后测定溶液中各农药的残留量。实验表明, 在乙腈溶液中, GCB 对各种农药的吸附率最高, 对噻螨酮、噻嗪酮、啶螨醚和哒螨灵的吸附率分别为 25%、18%、15%和 28%; PSA 和 C₁₈ 基本无吸附, 弗罗里硅土不仅无吸附, 还会引起基质效应。

本研究还考察了各类填料的除杂效果, 对采用不同填料净化后的茶叶样品溶液进行 EI-MS/MS 分析发现, PSA 和弗罗里硅土去除有机酸等极性杂质方面效果较好, 二者净化效果差别不大, C₁₈ 可有效去除非极性杂质的干扰, 但是 PSA、C₁₈ 搭配可使二者净化效果加强。GCB 对色素等杂质的净化效果较好, 所以实验最终选择 PSA、C₁₈ 和 GCB 搭配使用。另外, 吸附剂粉末的用量是影响前处理净化效果和回收率的重要因素。如果使用量小净化效果不明显, 如果使用量大净化效果明显但回收率低, 不能满足检测要求。通过以上实验最终确定吸附剂粉末的用量为: PSA 吸附剂 50 mg、无水硫酸镁 230 mg、C₁₈ 粉 50 mg 和活性炭 20 mg。

3.3 色谱-质谱条件的优化

本研究发现, 增加气相色谱进样口温度和色谱柱初始温度, 提高升温速率, 有助于噻螨酮流出, 能够提高响应并降低基质效应。

本方法质谱条件的确定采用浓度为 5.0 µg/mL 混合标准溶液进行全扫描分析, 先获得这 7 种化合物的一级质谱图。选择丰度高的 2~3 个碎片离子定为选择离子。然后进行选择离子扫描。7 种农药残留的色谱图见图 1。

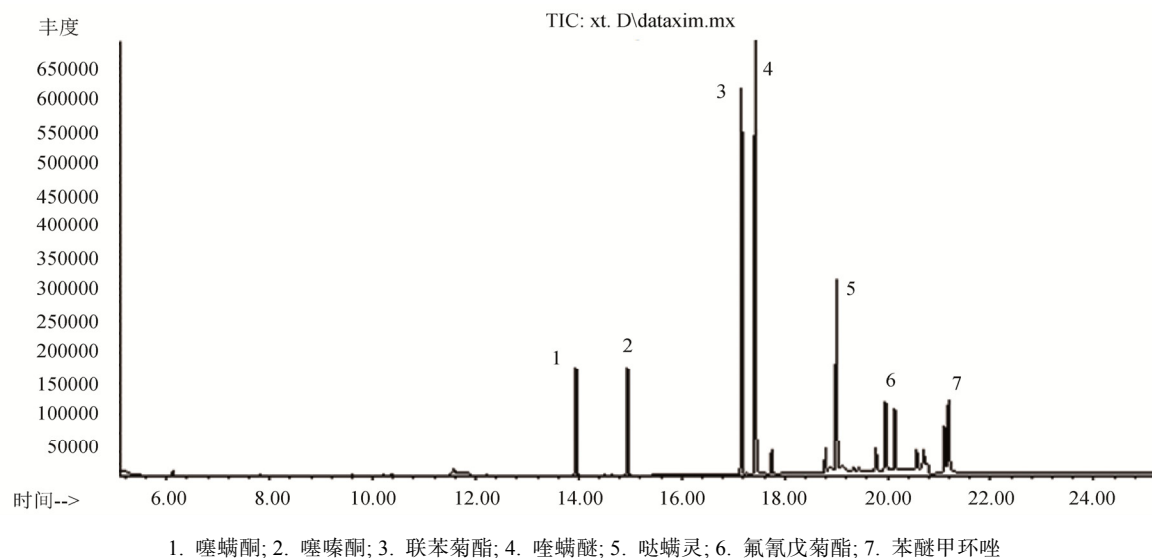


图 1 7 种农药标准品色谱图

Fig. 1 Total ion chromatogram of 7 pesticides

3.4 线性方程与基质效应

在 2.3 节条件下,对 7 种农残的乙腈混合标准溶液进行测定;按照 2.2 处理茶叶样本,获得空白基质溶液,用空白基质溶液配制相应系列的基质标准溶液进样测定;以进样溶液浓度(mg/L)为横坐标,定量离子的色谱峰面积为纵坐标,绘制标准曲线。研究发现,GC-MS 分析时,7 种农药残留在茶叶中表现出一定的基质增强效应(见表 2),因此,在实际检测时,为保证结果准确,应采用基质标准进行定量分析。7 种农残的线性范围、相关系数见表 3。

3.5 回收率、精密度、检出限及定量限

称取空白茶叶样品,分别添加高、中、低浓度水平的混合标准溶液,涡旋混匀后,静置过夜,按照 2.2 节进行提取净化,每个添加浓度水平重复 6 次;同时取相当量 7 种

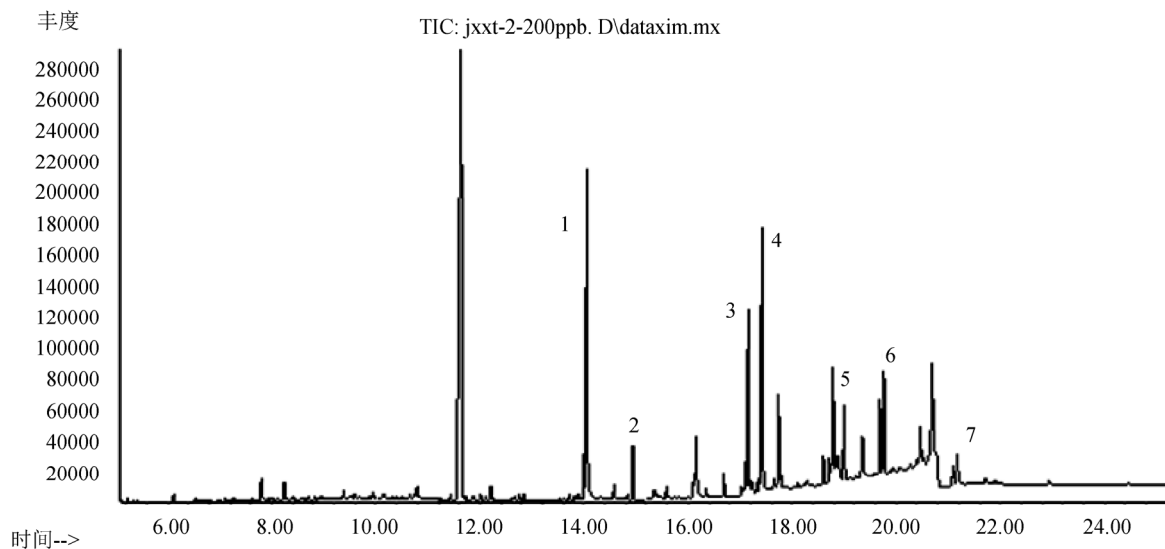
农药残留的混合标准溶液至进样瓶中,加入按照 2.2 节处理后的空白茶叶样品溶液,定容,作为基质标准,计算添加回收率、相对标准偏差、方法检出限及定量限。7 种农残的添加回收率、相对标准偏差、方法检出限(limit of detection, LOD)及定量限(limit of quantitation, LOQ)见表 3,7 种农药在 0.05~5.00 mg/kg 范围有良好的线性关系,相关系数均大于或等于 0.9995。3 个浓度的平均加标回收率为 70%~115%,相对标准偏差为 5.0%~13.2%;方法检出限为 0.005~0.05 mg/kg,定量限为 0.015~0.15 mg/kg。7 种农药在 200 µg/kg 浓度水平下的添加回收色谱图见图 2。由图可见,7 种农药除噻螨酮和噻嗪酮受基质干扰略微小之外,其余 5 种农药受茶叶基质的影响比较大,基线升高,且杂质干扰较多,因此在实际检测时,应采用基质标准进行定量分析。

表 2 7 种农药在不同标准溶液浓度下的基质效应
Table 2 Matrix effect of 7 pesticides at different concentrations

农药	响应比值					
	0.05 mg/L	0.20 mg/L	0.40 mg/L	0.80 mg/L	1.50 mg/L	3.00 mg/L
噻螨酮(hexythiazox)	2.01	2.10	1.97	1.83	1.80	1.68
噻嗪酮(buprofezin)	1.24	1.16	1.20	1.23	1.18	1.19
联苯菊酯(bifenthrin)	1.11	1.14	1.15	1.12	1.18	1.20
啶螨醚(fenazaquin)	1.34	1.40	1.45	1.37	1.42	1.34
哒螨灵(pyridaben)	1.42	1.40	1.48	1.39	1.48	1.50
氟氰戊菊酯(flucythrinate)	1.62	1.61	1.68	1.60	1.60	1.57
苯醚甲环唑(difenoconazole)	1.84	1.76	1.87	1.71	1.81	1.67

表 3 7 种农药的线性范围、相关系数、检出限、定量限及回收率结果(n=6)
Table 3 The linear ranges, correlation coefficients, LODs, LOQs and recoveries of 7 pesticides(n=6)

农药	检出限 (mg/kg)	定量限 (mg/kg)	线性范围 (mg/kg)	r	0.15 mg/kg		1.5 mg/kg		3.0 mg/kg	
					平均回收 率 (%)	RSD (%)	平均回收 率 (%)	RSD (%)	平均回收率 (%)	RSD (%)
噻螨酮(hexythiazox)	0.050	0.15	0.15~5.00	0.9995	81.4	7.5	106.4	11.5	92.2	7.7
噻嗪酮(buprofezin)	0.010	0.05	0.05~3.00	0.9996	114.1	9.6	111.8	9.7	104.3	10.0
联苯菊酯(bifenthrin)	0.005	0.015	0.015~3.00	0.9995	100.5	7.0	75.1	7.5	87.5	5.0
啶螨醚(fenazaquin)	0.018	0.06	0.06~3.00	0.9997	81.5	8.1	111.9	5.1	91.1	10.4
哒螨灵(pyridaben)	0.050	0.15	0.15~5.00	0.9998	70.9	9.9	115.0	10.0	111.9	7.1
氟氰戊菊酯(flucythrinate)	0.050	0.15	0.15~5.00	0.9996	82.6	10.5	92.0	13.2	91.8	12.1
苯醚甲环唑(difenoconazole)	0.050	0.15	0.15~5.00	0.9995	87.3	8.7	87.7	7.4	104.1	7.6



1. 噻嗪酮; 2. 噻嗪酮; 3. 联苯菊酯; 4. 噻嗪酮; 5. 哒螨灵; 6. 氟氰戊菊酯; 7. 苯醚甲环唑

图2 茶叶中 7 种农药在 200 µg/kg 浓度水平下的添加回收色谱图

Fig. 2 Chromatogram of the spiked recovery of 7 pesticides in tea at 200 µg/kg

4 结 论

按照建立的方法测定了 110 批次的茶叶样品中 7 种农药的含量, 其中有 15 批次样品检出联苯菊酯, 含量在 24~1640 µg/kg 之间; 4 批次样品中检出噻嗪酮, 含量为在 35~150 µg/kg 之间; 3 批次样品检出哒螨灵, 含量在 70~200 µg/kg 之间。结果表明, 本方法符合农药残留分析标准^[17]的要求, 能够满足茶叶中 7 种农药残留的快速检测和确证分析。

参考文献

- [1] Mueller L, Ward MR, Davis DL, *et al.* Tobacco, production, chemistry and technology [M]. London: Black well, 1999.
- [2] 陈亦慧, 孟信刚, 潘思竹, 等. 气相色谱法(GC-ECD)检测水稻中的哒螨灵[J]. 辽宁化工, 2017, 4: 414-416.
Chen YH, Meng XG, Pan SZ, *et al.* Determination of pyridaben residues in rice by gas chromatography [J]. Liaoning Chem Ind, 2017, 4: 414-416.
- [3] 张桂云, 杨伟强, 林常青, 等. 分散固相萃取-超高效液相色谱串联质谱法测定茶叶中的 7 种农药残留[J]. 福州大学学报(自然科学版), 2016, 44(6): 896-900.
Zhang GY, Yang WQ, Lin CQ, *et al.* Determination of seven pesticide residues in tea by dispersive solid-phase extraction and ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. J Fuzhou Univ (Nat Sci Ed), 2016, 44(6): 896-900.
- [4] 吴燕, 刘丹, 孙静, 等. 气相色谱法测定人参提取物中 3 种农药残留[J]. 食品研究与开发, 2017, 8: 115-117.
Wu Y, Liu D, Sun J, *et al.* Determination of 3 kinds of pesticide residues in Ginseng extract by gas chromatography [J]. Food Res Dev, 2017, 8: 115-117.
- [5] 胡贝贞, 宋伟华, 谢丽萍, 等. 气相色谱-负化学离子源质谱法测定含硫蔬菜中残留的 14 种农药[J]. 色谱, 2008, 26(5): 608-612.
Hu BZ, Song WH, Xie LP, *et al.* Determination of 14 residual pesticides in vegetables containing sulfur by gas chromatography negative chemical ionization mass spectrometry [J]. Chin J Chromatogr, 2008, 26(5): 608-612.
- [6] 楼正云, 陈宗懋, 罗逢健, 等. 固相萃取-气相色谱法测定茶叶中残留的 92 种农药[J]. 色谱, 2008, 26(5): 568-576.
Lou ZY, Chen ZM, Lou FJ, *et al.* Determination of 92 residual pesticides in tea by gas chromatography with solid-phase extraction [J]. Chin J Chromatogr, 2008, 26(5): 568-576.
- [7] 周春梅, 李青. 水果中噻嗪酮残留量的检测研究[J]. 农业与技术, 2001, 21(5): 36-39.
Zhou CM, Li Q. Study on the residues of thiacarone in fruit [J]. Agric Technol, 2001, 21(5): 36-39.
- [8] 朱良天. 农药[M]. 北京: 化学工业出版社, 2004.
Zhu LT. Pesticide [M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2004.
- [9] 陈海东, 鲜啟鸣, 邹惠仙, 等. 超声萃取气相色谱法测定植物样中邻苯二甲酸酯[J]. 环境化学, 2006, 25(2): 228-231.
Chen HD, Xian QM, Zou HX, *et al.* Determination of phthalic acid esters in plant samples using ultrasonic solvent extraction and gas chromatography quantification [J]. Environ Chem, 2006, 25(2): 228-231.
- [10] 朱晓兰, 蔡继宝, 杨俊, 等. 加速溶剂萃取-气相色谱法测定土壤中的有机磷农药残留[J]. 分析化学, 2005, 33(6): 821-824.
Zhu XL, Cai JB, Yang J, *et al.* Determination of organophosphate pesticide residues in soil by accelerated solvent extraction-gas chromatography [J]. Anal Chem, 2005, 33(6): 821-824.
- [11] GB/T 19648-2006 水果和蔬菜中 500 种农药及相关化学品残留的测定 气相色谱-质谱法[S].
GB/T 19648-2006 Determination of 500 pesticides and related chemicals residues in fruits and vegetables-GC-MS method [S].

- [12] GB/T 20769-2008 水果和蔬菜中 450 种农药及相关化学品残留量的测定-液相色谱串联质谱法[S].

GB/T 20769-2008 Determination of 450 pesticides and related chemicals residues in fruits and vegetables - LC-MS/MS method [S].

- [13] GB/T 23204-2008 茶叶中 519 种农药及相关化学品残留量的测定 气相色谱-质谱法[S].

GB/T 23204-2008 Determination of 519 pesticides and related chemicals residues in tea-GC-MS method [S].

- [14] GB/T 23205-2008 茶叶中 448 种农药及相关化学品残留量的测定 液相色谱-串联质谱法[S].

GB/T 23205-2008 Determination of 448 pesticides and related chemicals residues in tea-LC-MS/MS method [S].

- [15] Modular multiple analytical method for the determination of pesticide residues in foodstuffs [S].

- [16] 周蓉, 曹赵云, 赵肖华, 等. 分散固相萃取-分散液液微萃取/气相色谱-串联质谱法测定蔬菜中 19 种有机磷农药残留[J]. 分析测试学报, 2017, 1: 67-72.

Zhou R, Cao ZY, Zhao XH, *et al.* Determination of 19 organophosphorus pesticides in vegetables by gas chromatography- tandem mass spectrometry combined with dispersive solid-phase extraction and

dispersive liquid-liquid micro-extraction [J]. J Instrum Anal, 2017, 1: 67-72.

- [17] 中华人民共和国质量监督检验检疫总局 残留分析质量控制指南[Z].

Inspection and Quarantine of the People's Republic of China Residues analysis quality control guide [Z].

(责任编辑: 武英华)

作者简介



李 玮, 高级工程师, 主要研究方向为食品安全分析。

E-mail: 78459032@qq.com



洪春来, 副研究员, 主要研究方向为固体废弃物资源化利用与环境修复。

E-mail: 82004897@qq.com