

聚氯乙烯薄膜对新型土壤熏蒸剂 二甲基二硫阻隔性研究

张 毅¹, 曹 塬程¹, 焦志伟², 郝宝强¹, 唐秀军¹,
方文生¹, 颜冬冬¹, 李 园¹, 王秋霞^{1*}

(1. 中国农业科学院植物保护研究所, 北京 100193; 2. 北京化工大学, 北京 100029)

摘要 为筛选适合的聚氯乙烯(PVC)薄膜替代目前广泛使用的聚乙烯(PE)薄膜配合二甲基二硫(DMDS)进行土壤消毒使用,本研究使用薄膜阻隔性测定装置、气相色谱-质谱联用仪进行阻隔性模拟及 DMDS 浓度测定,开展了7种 PVC 膜对 DMDS 阻隔性能的测定试验,并评价了温度、湿度对其阻隔性的影响。结果表明,供试 PVC 薄膜对 DMDS 的阻隔性均优于 PE 薄膜,但阻隔性随温度升高显著降低,湿度对其阻隔性无显著影响。增塑剂对 PVC 薄膜阻隔性能不产生显著影响,但纳米颗粒添加物对 PVC 薄膜阻隔性能有显著影响,添加糊树脂的高聚合度 PVC 薄膜阻隔性最好。本研究表明 PVC 薄膜对 DMDS 具有很好的阻隔性,在特定环境下可取代 PE 薄膜的应用,但需田间试验进一步确定其控制 DMDS 逸散的效果。

关键词 二甲基二硫; 阻隔性; 聚氯乙烯薄膜; 温度; 湿度

中图分类号: S482.6 **文献标识码:** A **DOI:** 10.16688/j.zwbh.2021095

The barrier property of polyvinyl chloride film to dimethyl disulfide—a new soil fumigant

ZHANG Yi¹, CAO Aocheng¹, JIAO Zhiwei², HAO Baoqiang¹, TANG Xiujun¹,
FANG Wensheng¹, YAN Dongdong¹, LI Yuan¹, WANG Qiuxia^{1*}

(1. *Institute of Plant Protection, Chinese Academy of Agricultural Sciences, Beijing 100193, China;*

2. *Beijing University of Chemical Technology, Beijing 100029, China*)

Abstract In order to screen suitable polyvinyl chloride film (PVC) to replace polyethylene film (PE) with dimethyl disulfide (DMDS) for soil disinfection, a special device and gas chromatography-mass spectrometry were used for film barrier simulation and DMDS concentration detection in this study. The barrier effects of seven kinds of PVC films were test against DMDS, and the impact of temperature and humidity on the barrier property was investigated. The results showed that the barrier properties of the seven kinds of PVC to DMDS were better than that of PE, but its performance decreased significantly with increasing temperature, while humidity had no significant effect on its performance. Plasticizer did not have a significant impact on the barrier performance of PVC film to DMDS, but the different additives of nanoparticles had a significant impact on the barrier performance of PVC film to DMDS; the barrier properties of PVC film with higher degree of polymerization added with paste resin were the best. This study suggested that PVC had a good barrier performance to DMDS and may replace the application of PE film under certain circumstances. However, field experiments are needed to further determine its effect in controlling the emission of DMDS.

Key words dimethyl disulfide; barrier property; polyvinyl chloride film; temperature; humidity

近几年随着农业产业结构的调整,设施作物和 高附加值作物在我国发展迅速,在某些地区已成为

收稿日期: 2021-02-21 修订日期: 2021-04-27

基金项目: 国家自然科学基金(31572035);国家重点研发计划(2017YFD0201600)

* 通信作者 E-mail: wqxasy@163.com

支柱型产业,如云南文山三七、山东安丘生姜等,给种植者带来了可观的经济收益^[1]。但由于种植品种单一且多年重茬种植,病原菌连年积累,导致土传病害发生十分严重^[2-3],这些土传病害具有隐蔽性强、传播迅速、破坏性广的特点,一旦发生常导致减产甚至绝收,给高附加值作物的产量及品质、种植者的经济效益、产业的发展都带来了不容忽视的挑战^[4]。目前解决土传病害最有效的措施就是使用熏蒸剂进行土壤消毒。溴甲烷(MB)是控制土传病害非常有效的土壤熏蒸剂,但因其破坏臭氧层,我国已于2019年禁止在农业上使用。二甲基二硫(DMDS)对土壤有害线虫有高活性,也可兼治土传病原菌和部分杂草^[5-7],在美国、土耳其等国已取得农药登记证^[8]。

DMDS饱和蒸气压高,应用到土壤中后容易逸散,导致防治效果不佳的同时也会造成环境污染^[9-10]。在土壤表面覆盖塑料薄膜可有效控制DMDS散发损失,增加土壤中药剂浓度、降低用量,同时减少对非靶标生物和环境的暴露风险^[9, 11-12]。对聚乙烯(PE)薄膜、聚氯乙烯(PVC)薄膜、聚偏二氯乙烯(PVDC)薄膜和乙烯乙烯醇共聚物(EVOH)

薄膜对DMDS的阻隔性的研究结果表明,PVDC薄膜和EVOH薄膜的阻隔性显著优于PE薄膜及PVC薄膜,但前两者的成本是后两者的3倍;PE薄膜与PVC薄膜对DMDS的阻隔性没有显著差异,实际生产中最常用的薄膜是PE薄膜,但PVC相对PE价格低廉,更耐酸、碱、潮湿和有些化学药品的侵蚀^[13-14]。PVC材料在实际使用中经常加入稳定剂、润滑剂、辅助加工剂、色料、抗冲击剂及其他添加剂,2019年Wang等仅评价了一种PVC薄膜对DMDS的阻隔性^[14]。所以,为了筛选适合DMDS土壤熏蒸后覆膜应用的PVC薄膜,我们以PE薄膜作为对比,进行了7种PVC薄膜对DMDS阻隔性的评价试验及温度、湿度对阻隔性的影响,为实际生产中PVC薄膜的使用提供参考。

1 材料与方法

1.1 试验材料

供试薄膜:试验所用7种PVC薄膜(厚度0.04 mm)由中绿英科(北京)科技有限公司提供,具体生产特性见表1;PE薄膜(厚度0.04 mm)购于山东寿光龙兴农膜有限公司。

表 1 供试 PVC 代号及生产配方¹⁾
Table 1 PVC codes and formulations

PVC 代号	PVC code	PVC 生产配方	Formulations for PVC production
	PVC#1	SG-3*(聚合度 1300)+树脂 400	
	PVC#2	SG-3(聚合度 1300)+SG-7*(聚合度 700)+增塑剂偏苯三酸三异辛酯(TOTM)	
	PVC#3	SG-3(聚合度 1300)+SG-7(聚合度 700)+增塑剂二辛酯(DOP)	
	PVC#4	SG-3(聚合度 1300)+颜料	
	PVC#5	SG-3(聚合度 1300)+二氧化硅	
	PVC#6	P2500*(聚合度 2500)+糊树脂 P440	
	PVC#7	P2500(聚合度 2500)+糊树脂 P440+碳酸钙	

1) * 代表 PVC 生产过程中加入的不同聚合度的树脂型号。
* indicates the resin models with different degrees of polymerization added in the PVC production process.

供试药剂:99%二甲基二硫(DMDS)原药购于成都贝斯特试剂有限公司。

试验仪器:DB-5 色谱柱(30 m×0.5 mm×0.25 mm)、安捷伦 7694E 顶空进样器、安捷伦/惠普 6890 气相色谱-5973 质谱联用仪、5 mL 取气针均来自安捷伦科技有限公司(Agilent Technologies, USA);UT333 型温湿度计购自优利德科技股份有限公司。

1.2 试验方法

1.2.1 薄膜阻隔性测定装置

薄膜阻隔性测定装置参照前人的研究^[14-17]。装

置由两个一侧密封、一侧开口的不锈钢圆筒组成,高6.5 cm,内径15 cm(图1)。将1 mL DMDS原药注入2 mL进样瓶中,通过双面胶将进样瓶紧贴于其中一个圆筒底部中央,将待测PVC或者PE薄膜覆盖在圆筒开口侧后将另外一个圆筒倒扣在薄膜上,用铝箔胶带将装置接缝处封好,形成上下两个独立的密闭气室。将薄膜下面的腔室称为源室,薄膜上部的腔室称为接收室。源室和接收室均设置有取样口,每个取样口均有一个用环氧胶及硅胶垫片固定好的取气针,端口连接二通阀便于取气。之后定期

抽取接收室气体样品并检测其中 DMDS 的浓度,通过分析浓度随时间的变化,比较不同处理薄膜对熏蒸剂阻隔性的优劣。

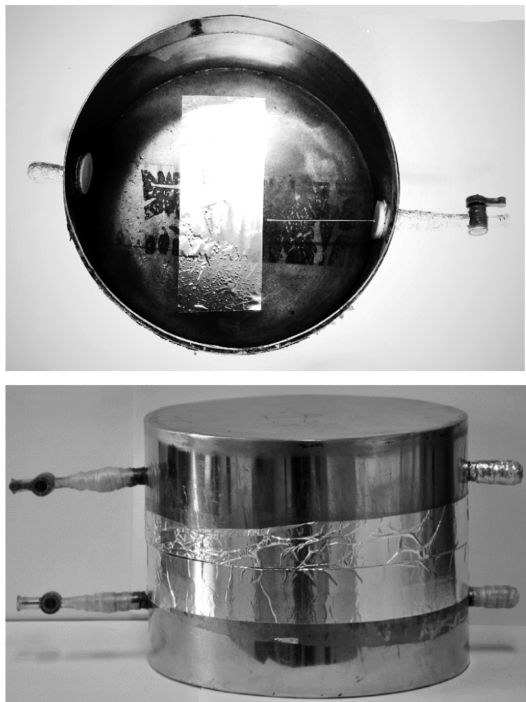


图 1 薄膜阻隔性测定装置

Fig. 1 Devices for measuring film barrier

1.2.2 DMDS 气体样品的收集与检测

在加药后 0.5、1、2、4、6、8、10、14、22、24、28、35、38、48、54、60、70、75、79、89 h 进行取样,分别用取气针从接收室取样口准确抽取 1 mL 气体并立即注入干净的 20 mL 顶空进样瓶中,迅速用装有硅胶垫片的铝盖密封,置于 -80°C 低温冰箱保存,待 GC-MS 检测。

DMDS 气体样品的检测方法参照 Wang 等的研究^[18]。DMDS 样品采用安捷伦 7694E 顶空进样器进行进样,安捷伦/惠普 6890 气相色谱-5973 质谱联用仪进行分析。在单离子检测扫描(SIM)模式下运行。色谱检测条件为:DB-5 毛细管柱($30\text{ m} \times 0.25\text{ mm} \times 0.25\text{ }\mu\text{m}$);柱温 65°C ,保持 4 min;柱流量 1.0 mL/min ;分流比 150:1;进样口温度 180°C ;质谱检测条件:采用 SIM 模式检测 94、79 特征离子,离子源温度 180°C ;接口温度 230°C 。DMDS 在此条件下保留时间为 2.7 min。

1.2.3 不同 PVC 薄膜的阻隔性评价

为探究不同 PVC 薄膜的阻隔性差异,选取

PE 薄膜作为对照,将供试 PVC 薄膜与 PE 薄膜分别按照上述步骤进行加药、密闭、检测,每个处理设置 3 个重复。试验在室温条件下开展($14 \sim 20^{\circ}\text{C}$)。

1.2.4 温度对 PVC 薄膜阻隔性的影响

为探究温度对薄膜阻隔性造成的影响,将 1.2.3 试验筛选出的效果最优的 PVC 薄膜置于 15°C 、 25°C 和 35°C 培养箱中进行加药与取样,加药、密闭、检测步骤如上,每个处理设置 3 个重复。

1.2.5 湿度对 PVC 薄膜阻隔性的影响

为探究湿度对薄膜阻隔性造成的影响,选取 1.2.3 试验筛选出的效果最优的 PVC 薄膜进行试验。预先在薄膜阻隔性测定装置的源室中分别加入 10、20、30、40、50、60 μL 的去离子水、放入便携式湿度计,覆膜并密闭装置后置于 25°C 培养箱中,去离子水在装置中自然蒸发。每隔半小时将装置打开读取湿度计读数并记录,直到装置内湿度维持趋于稳定。监测结果表明向源室中加入 0、50、500 μL 去离子水,试验装置对应相对湿度为 50%、75%、100%。本试验测定这 3 个湿度条件下 PVC 薄膜对 DMDS 的阻隔性,加药、密闭、检测步骤如上,每个处理设置 3 个重复。

1.3 数据分析

试验数据采用 Excel 2016 整理,SPSS 22 进行分析,并用 OriginPro 9.1 进行绘图。

2 结果与分析

2.1 不同 PVC 薄膜对 DMDS 的阻隔性

覆盖不同塑料薄膜的接收室 DMDS 浓度随时间变化趋势见图 2。对不同时间透过不同薄膜的 DMDS 浓度进行邓肯氏多重比较($\alpha=0.05$),结果如表 2 所示。

在所有处理中,接受室中 DMDS 浓度均随时间增加而增大,在加药 60 h 后浓度趋于稳定(图 2)。在整个试验周期内,透过 7 种供试 PVC 薄膜的 DMDS 浓度均低于相同时间透过 PE 薄膜的 DMDS 浓度;其中以 PVC # 6 薄膜的阻隔性能最优,在整个试验周期接收室浓度都维持在最低状态。从表 2 可以看出,加药后 0.5 h,透过 PE 薄膜的 DMDS 浓度就已经显著大于所有供试的 PVC 薄膜;在加药后 14 h,PVC # 6 薄膜处理中接收室

DMDS 浓度已经显著低于其他处理。以上结果表明,供试 PVC 薄膜对 DMDS 的阻隔性显著优于 PE 薄膜,而尤以高聚合度的 PVC # 6 的阻隔性最高,加入碳酸钙后(PVC # 7)反而降低其阻隔性。试验结束时 PVC # 3 处理接收室中 DMDS 浓度显著大于 PVC # 2 处理,表明增塑剂的不同显著影响 PVC 薄膜对 DMDS 的阻隔性,相较于二辛酯(DOP),偏苯三酸三异辛酯(TOTM)的加入显著增加了 PVC 薄膜对 DMDS 的阻隔性能。在加药后 28 h 内,DMDS 透过 PVC # 1 进入接收室的速率大于 PVC # 4 和 PVC # 5,但当 70 h 时接收室中 DMDS 浓度显著低于 PVC # 4 与 PVC # 5 处理,由此得出 PVC 中加入树脂后的最终阻隔性优于添加颜料和二氧化硅。

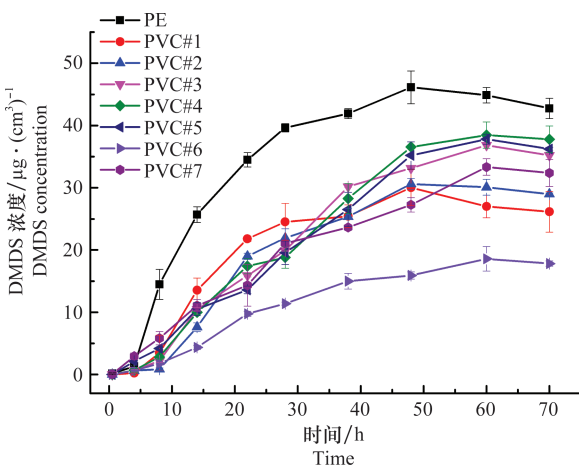


图 2 覆盖不同塑料薄膜条件下接收室不同时间 DMDS 浓度
Fig. 2 DMDS concentration in receiving compartment under different plastic film covering conditions at different time points

表 2 不同时间透过不同薄膜的 DMDS 浓度¹⁾

Table 2 DMDS concentration in receiving compartment penetrating different films at different time points

薄膜编号 Film code	DMDS 浓度/ $\mu\text{g} \cdot (\text{cm}^3)^{-1}$ DMDS concentration			
	0.5 h	14 h	28 h	70 h
PE	(0.18±0.11)a	(25.71±1.27)a	(39.56±0.89)a	(42.75±1.64)a
PVC#1	0b	(13.53±1.97)b	(24.52±2.97)b	(26.15±3.26)d
PVC#2	0b	(7.61±0.70)d	(21.95±1.47)bc	(28.99±0.17)d
PVC#3	0b	(10.48±0.25)c	(19.90±0.10)c	(35.22±0.05)bc
PVC#4	0b	(9.98±0.23)c	(18.79±1.70)c	(37.79±2.15)b
PVC#5	0b	(10.51±1.05)c	(19.56±1.90)c	(36.22±0.29)b
PVC#6	0b	(4.35±0.33)e	(11.39±0.24)d	(17.81±0.42)e
PVC#7	(0.05±0.17)b	(11.08±0.95)c	(21.06±0.57)c	(32.38±2.18)c

1) 同列数据后不同字母表示在 0.05 水平下差异显著($P<0.05$)。
Different letters in the same column indicate significant difference at 0.05 level.

2.2 不同温度下 PVC # 6 对 DMDS 的阻隔性

温度对 PVC # 6 阻隔性的影响如图 3 所示,3 个温度处理下穿透 PVC # 6 的 DMDS 浓度均在加药后 48 h 左右达到平衡。在 15℃ 和 25℃ 条件下,穿透 PVC # 6 的 DMDS 浓度均在加药后 75 h 达到最大,分别为 23.93 $\mu\text{g}/\text{cm}^3$ 和 63.61 $\mu\text{g}/\text{cm}^3$;在 35℃ 条件下,DMDS 穿透浓度在 48 h 达到最大,为 145.70 $\mu\text{g}/\text{cm}^3$ 。当温度由 15℃ 上升至 35℃ 时,接收室中的 DMDS 平衡浓度增长了 5.09 倍。对不同温度下测定的各个时间点的 DMDS 浓度进行邓肯氏多重比较,结果显示在 8 h 后 3 个试验温度下各时间点穿透 PVC # 6 的 DMDS 浓度间均存在显著差异。

2.3 不同湿度下 PVC # 6 对 DMDS 的阻隔性

湿度对 PVC # 6 薄膜阻隔性的影响如图 4 所示,3 个湿度处理下穿透 PVC # 6 的 DMDS 浓度均在 38 h 开始达到平衡。在 50% 环境湿度下,DMDS

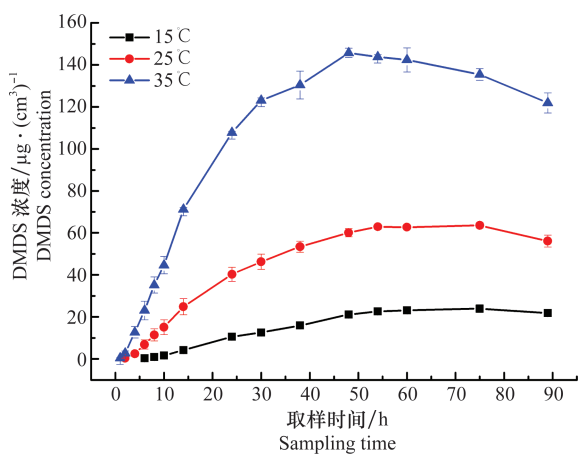


图 3 15、25、35℃ 下透过 PVC # 6 薄膜后接收室中 DMDS 浓度
Fig. 3 DMDS concentration in receiving compartment penetrating PVC # 6 film at 15, 25°C and 35°C

的平衡浓度为 26~28 $\mu\text{g}/\text{cm}^3$;当环境湿度为 75% 时,DMDS 的平衡浓度为 28~31 $\mu\text{g}/\text{cm}^3$;环境湿度

为 100% 时, DMDS 的平衡浓度为 $30 \sim 34 \mu\text{g}/\text{cm}^3$ 。多重比较结果显示, 3 个湿度下各时间点穿透 PVC #6 的 DMDS 浓度间无显著差异。

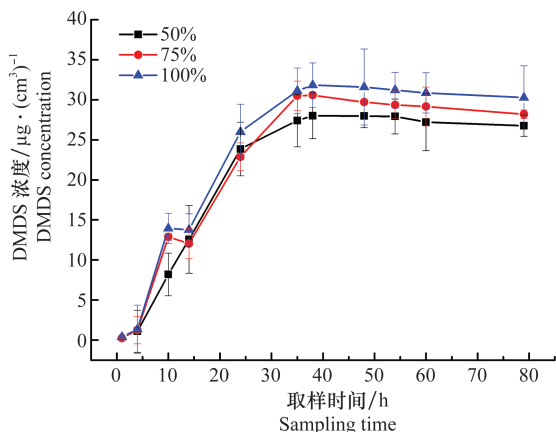


图 4 50%、75%、100%相对湿度下透过 PVC #6 薄膜后接收室中 DMDS 浓度

Fig. 4 DMDS concentration in receiving compartment penetrating PVC #6 at RH 50%, 75% and 100%

3 讨论

本研究进行了 7 种 PVC 膜对 DMDS 阻隔性能的测定试验, 并评价了温度、湿度对其阻隔性的影响, 研究结果表明, 供试 PVC 薄膜对 DMDS 的阻隔

性均优于 PE 薄膜。其中高聚合度的 PVC #6 阻隔性能最优。碳酸钙表面强亲水性的羟基导致其与 PVC 聚合物亲和性较差, 且由于分子间力、静电作用、氢键等会引起碳酸钙粉体的团聚, 在 PVC 薄膜中分布不均^[19], 由此导致 PVC #6 对 DMDS 的阻隔性能最优而 PVC #7 对 DMDS 的阻隔性能有所下降^[20]。PE 的对称性强于 PVC, 内聚能低于 PVC, 气体穿透 PE 薄膜过程中的活化能低于其穿透 PVC 薄膜过程中的活化能, 所以供试的几种 PVC 阻隔性均优于 PE 薄膜^[14, 21]。PVC #2 中含有的增塑剂 TOTM 的热稳定性优于 PVC #3 中含有的 DOP^[22-23], 在相同试验温度下 PVC #2 的稳定性可能优于 PVC #3; 对比 TOTM 和 DOP 结构发现(图 5), TOTM 比 DOP 多的一个 -COOR 官能团使得 DMDS 更易溶于 PVC #2, 故阻隔性优于 PVC #3。树脂的加入有可能使 PVC #1 薄膜聚合度分布不均匀, 故在 30 h 之前, DMDS 透过 PVC #1 进入接收室的速率和总量均大于 PVC #4 和 PVC #5。之后可能由于 DMDS 与聚合物分子之间达到饱和, 而加入树脂 400 的 PVC #1 的聚合度大于加入颜料和二氧化硅的 PVC #4 和 PVC #5 的聚合度, 造成 30 h 之后 DMDS 穿透 PVC #1 的速率和总量下降且显著低于 PVC #4 和 PVC #5^[24-25]。

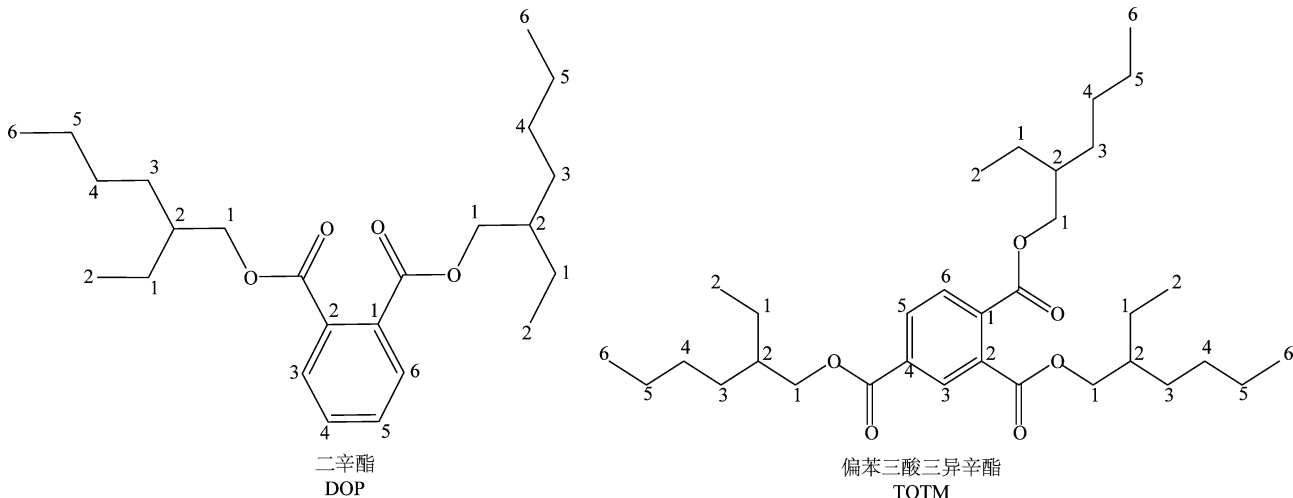


图 5 二辛酯(DOP)和偏苯三酸三异辛酯(TOTM)的化学结构

Fig. 5 Chemical structure of DOP and TOTM

此前王献礼的研究结果表明, 当温度由 15°C 升至 35°C 时, PVC 薄膜对 DMDS 的穿透系数由 $0.79 \text{ cm}/\text{h}$ 升至 $4.42 \text{ cm}/\text{h}$, 增长了 4.59 倍; PE 薄膜对 DMDS 的穿透系数由 $1.12 \text{ cm}/\text{h}$ 升至 $4.29 \text{ cm}/\text{h}$, 增长了 2.83 倍^[12]。温度增加会导致

PE 薄膜和 PVC 薄膜的阻隔性显著下降, 但温度对 PVC 薄膜影响大于 PE 薄膜。根据 Zhang 等的研究, 薄膜聚合物基质吸附 DMDS 的潜在容量, 以及它在薄膜聚合物材料中的扩散能力直接影响 DMDS 在薄膜中的扩散速度^[26]。DMDS 气体分子在穿透

PVC 薄膜的过程中以布朗运动的形式进行。温度的升高会增加气体分子的能量、运动速度,以及相互之间的碰撞几率;另外温度的升高会增加薄膜聚合物材料的自由空间体积,从而增加气体分子溶解和穿透薄膜材料的速度;且高温造成 PVC 薄膜的不对称含氯线性结构极易氧化断裂,导致其自由空间体积增加、薄膜聚合物结构改变,相比之下 PE 薄膜对称的聚合物结构决定其受热稳定性大于 PVC 薄膜,多方面共同作用导致高温下薄膜对 DMDS 的阻隔性下降、PVC 薄膜对 DMDS 的阻隔性受温度影响大于 PE 薄膜^[13-14, 27-28]。

王献礼的试验结果表明,当湿度由 50% 上升为 100% 时,PVC 薄膜对 DMDS 的穿透系数由 2.29 cm/h 变为 2.37 cm/h,二者无显著差异。但 PE 薄膜在 25%、50%、100% 湿度环境下对 DMDS 的穿透系数分别为 2.2、2.54 cm/h 和 3.02 cm/h,在湿度为 25% 和 100% 下的穿透系数有显著差异^[12]。PVC 薄膜特有的氯原子具有强疏水作用^[29],而水对 PE 薄膜的聚乙烯会产生塑化作用^[30],造成高湿条件下 PE 薄膜表面的摩擦、附着力和润滑性能发生改变^[15, 31]。所以 PVC 薄膜对 DMDS 的阻隔性受湿度影响小于 PE 薄膜。

4 结论

研究表明在相同厚度下,不同配方的 PVC 薄膜对 DMDS 的阻隔性整体优于 PE 薄膜;PVC 薄膜中添加碳酸钙会降低其阻隔性;PVC 薄膜中加入增塑剂 TOTM 的阻隔性优于配方中加入增塑剂 DOP;PVC 薄膜中加入树脂的阻隔性优于加入颜料或二氧化硅。PVC 对 DMDS 的阻隔效果随温度增加而降低,但受湿度影响较小。在特定环境下 PVC 薄膜有潜力替代 PE 薄膜的应用,但需要田间试验进一步确定其控制 DMDS 逸散的实际效果。

参考文献

- [1] 李中华,王国占,齐飞,等. 我国设施农业发展现状及发展思路[J]. 中国农机化, 2012(1): 7-10.
- [2] 曹塋程. 溴甲烷及其替代产品[J]. 农药, 2003, 42(6): 1-5.
- [3] 毛连纲,颜冬冬,吴篆芳,等. 土壤化学熏蒸效果的影响因素述评[J]. 农药, 2013, 52(8): 547-551.
- [4] 曹塋程,郭美霞,王秋霞,等. 世界土壤消毒技术进展[J]. 中国蔬菜, 2010(21): 17-22.
- [5] VRIENS B, LENZ M, CHARLET L, et al. Natural wetland emissions of methylated trace elements [J/OL]. Nature Communications, 2014, 5(1):3035. DOI: 10.1038/ncomms4035.
- [6] 宋兆欣,王秋霞,郭美霞,等. 二甲基二硫作为土壤熏蒸剂的效果评价[J]. 农药, 2008(6): 454-456.
- [7] HELLER J J, SUNDER P H, CHARLES P, et al. Dimethyl disulfide, a new alternative to existing fumigants on strawberries in France and Italy [J]. Acta Horticulturae, 2009, 842(1): 953-956.
- [8] GOMEZ-TENORIO M A, TELLO J C, ZANÓN M J, et al. Soil disinfestation with dimethyl disulfide (DMDS) to control *Meloidogyne* and *Fusarium oxysporum* f. sp. *radicis-lycopersici* in a tomato greenhouse [J]. Crop Protection, 2018, 112: 133-140.
- [9] GAO Suduan, HANSON B D, QIN Ruijun, et al. Comparisons of soil surface sealing methods to reduce fumigant emission loss [J]. Journal of Environmental Quality, 2011, 40(5): 1480-1487.
- [10] OU L T, THOMAS J E, ALLEN L H, et al. Effects of application methods and plastic covers on distribution of cis- and trans-1,3-dichloropropene and chloropicrin in root zone [J]. Journal of Nematology, 2005, 37(4): 483-488.
- [11] QIN Ruijun, GAO Suduan, HUSEIN A, et al. Field evaluation of a new plastic film (vapor safe) to reduce fumigant emissions and improve distribution in soil [J]. Journal of Environmental Quality, 2011, 40(4): 1195-1203.
- [12] 王献礼. 二甲基二硫土壤中迁移及大气散发规律与调控研究[D]. 北京: 中国农业科学院, 2019.
- [13] REINECKE H, MIJANGOS C. Synthesis and characterization of poly(vinyl chloride)-containing amino groups [J]. Polymer, 1997, 38(9): 2291-2294.
- [14] WANG Xianli, FANG Wensheng, YAN Dongdong et al. Evaluation of the influence of temperature and relative humidity on the permeability of four films to the fumigant dimethyl disulfide [J]. Journal of Environmental Management, 2019, 236(3): 687-694.
- [15] FANG Wensheng, CAO Aocheng, YAN Dongdong et al. Effect of environmental conditions on the permeability of low density polyethylene film and totally impermeable film to methyl isothiocyanate fumigant [J]. Science of the Total Environment, 2017(599/600): 1-8.
- [16] PAPIERNIK S K, YATES S R, CHELLEMI D O. A standardized approach for estimating the permeability of plastic films to soil fumigants under various field and environmental conditions [J]. Journal of Environmental Quality, 2011, 40(5): 1375-1382.
- [17] PAPIERNIK S K, YATES S R, GAN Jianying. An approach for estimating the permeability of agricultural films [J]. Environmental Science and Technology, 2001, 35(6): 1240-1246.
- [18] WANG Xianli, FANG Wensheng, YAN Dongdong et al.

Effect of films on dimethyl disulfide emissions, vertical distribution in soil and residues remaining after fumigation [J]. *Eco-toxicology and Environmental Safety*, 2018, 163: 76–83.

- [19] 王思. 高阻隔薄膜透气透湿特性的模拟分析[D]. 西安: 西安理工大学, 2017.
- [20] 路平, 谷正, 王宝金, 等. 纳米碳酸钙表面改性及其应用研究进展[J]. *安徽化工*, 2009, 35(5): 4–7.
- [21] RICHARD W N, ALEX H H, FRISCH L, et al. Permeability of polymer films to gases and vapors [J]. *Industrial and Engineering Chemistry*, 1955, 47(12): 2524–2527.
- [22] 谭天命. 常用的 PVC 增塑剂与其塑料的性能之间的关系[J]. *聚氯乙烯*, 1996(5): 47–64.
- [23] 罗文龙, 苑会林. DOP/TOTM 并用对软质 PVC 性能的影响[J]. *聚氯乙烯*, 2016, 44(8): 29–31.
- [24] 陈希, 刘咏梅. 纳米二氧化硅在聚合物中的应用[J]. *中国塑料*, 2012(8): 16–25.
- [25] 李经龙, 焦志伟, 程祥, 等. 聚合度对悬浮法 PVC 树脂性能的影响[J]. *塑料*, 2017(4): 35–37.
- [26] ZHANG Zhongbing, BRITT I J, TUNG M A. Permeation of oxygen and water vapor through EVOH films as influenced by relative humidity [J]. *Journal of Applied Polymer Science*,

2001, 82(8): 1866–1872.

- [27] GAMLIEL A, GRINSTEIN A, BENICHES M, et al. Permeability of plastic films to methyl bromide: A comparative laboratory study [J]. *Pest Management Science*, 1998, 53(2): 141–148.
- [28] SCHERRENBURG R L, REYNAERS H, GONDARD C, et al. Structural aspects of suspension poly(vinyl chloride): The thermal aspects of rigid suspension PVC [J]. *Journal of Polymer Science Part B Polymer Physics*, 1994, 32(1): 111–118.
- [29] KIM D K, LEE S B, DOH K S. Surface properties of fluorosilicone copolymers and their surface modification effects on PVC film [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 1998, 205(2): 417–422.
- [30] JOHANSSON F, LEUFVEN A. Food packaging polymer films as aroma vapor barriers at different relative humidities [J]. *Journal of Food Science*, 1994, 59(6): 1328–1331.
- [31] HOU Yanwen, HIGGINS D A. Single molecule studies of dynamics in polymer thin films and at surfaces: Effect of ambient relative humidity [J]. *The Journal of Physical Chemistry B*, 2002, 106(40): 10306–10315.

(责任编辑: 杨明丽)

(上接 62 页)

- [11] 邵淑霞, 阮楨媛, 杨子祥, 等. 虫瘿—昆虫与植物互作的奇特产物[J]. *环境昆虫学报*, 2012, 34(3): 363–369.
- [12] 刘胜萍, 王正跃. 柑桔花蕾蛆危害与柑桔总落花的相关研究[J]. *植物保护*, 1989, 15(6): 26.
- [13] 吴秀花, 杨荣, 刘丽英, 等. 白枸杞瘤螨的虫瘿特点、分布及对枸杞的危害[J]. *植物保护*, 2017, 43(1): 135–139.
- [14] FERNANDES G W, DUARTE H, LUTTGE U. Hypersensitivity of *Fagus sylvatica* L. against leaf galling insects [J]. *Trees-Structure and Function*, 2003, 17(5): 407–411.
- [15] 陆沁, 杨子祥, 吴海霞, 等. 角倍蚜虫瘿的组织学结构与功能解析[J]. *环境昆虫学报*, 2018, 40(1): 1–10.
- [16] STUART J J, CHEN M S, SHUKLE R, et al. Gall midges (Hessian Flies) as plant pathogens [J]. *Annual Review of Phytopathology*, 2012, 50(1): 339–357.
- [17] MANI M S. Ecology of plant galls [M]. Dordrecht: Springer, 1964.
- [18] 刘世彪, 李勇, 龙华, 等. 油茶叶肿病子房瘿体和叶片瘿体的形态结构特征观察[J]. *西北植物学报*, 2012, 32(9): 1752–1757.
- [19] 王光钺. 栗瘿蜂致瘿生物学及其对寄主植物生长发育的影响[D]. 杭州: 浙江农林大学, 2010: 58.
- [20] ALLISON S D, SCHULTZ J C. Biochemical responses of chestnut oak to a galling cynipid [J]. *Journal of Chemical Ecology*, 2005, 31(1): 151–166.
- [21] RAMAN A. Morphogenesis of insect-induced plant galls: facts and questions [J]. *Functional Ecology of Plants*, 2011, 206(6): 517–533.

- [22] ROHFRITSCH O, SHORTHOUSE J D. 5-insect galls [M]//KAHL G, SCHELL J S. Molecular biology of plant tumors. New York: Academic Press, 1982: 131–152.
- [23] CHOUDHARY R, KUMAR S. Quantitative estimation of some metabolites and enzymes in insect induced leaf galls of *Pongamia pinnata* (L.) [J]. *Journal of Chemical & Pharmaceutical Research*, 2012, 4(9): 4192–4197.
- [24] BAILEY S, PERCY D M, HEFER C A, et al. The transcriptional landscape of insect galls: psyllid (Hemiptera) gall formation in Hawaiian *Metrosideros polymorpha* (Myrtaceae) [J/OL]. *BMC Genomics*, 2015, 16: 943. DOI:10.1186/s12864-015-2109-9.
- [25] BYERS J A, BREWER J W, DENNA W D. Plant growth hormones in pinyon insect galls [J]. *Marcelia*, 1976, 39: 125–134.
- [26] MAPES C C, DAVIES P J. Indole-3-acetic acid and ball gall development on *Solidago altissima* [J]. *New Phytologist*, 2001, 151(1): 195–202.
- [27] KNYPL J S, CHYLINSKA K M, BRZESKI M W. Increased level of chlorogenic acid and inhibitors of indolyl -3- acetic acid oxidase in roots of carrot infested with the northern root-knot nematode [J]. *Physiological Plant Pathology*, 1975, 6(1): 51–64.
- [28] YAMAGUCHI H, TANAKA H, HASEGAWA M, et al. Phytohormones and willow gall induction by a gall-inducing sawfly [J]. *New Phytologist*, 2012, 196(2): 586–595.

(责任编辑: 杨明丽)