

微塑料的检测及其生态环境影响研究进展

叶李嘉, 吴南翔

浙江省医学科学院卫生学研究所, 浙江 杭州 300013

摘要:

微塑料是一类尺寸小于5 mm的塑料碎片, 具有比表面积大、可以吸附环境中污染物的特点。大量的研究发现微塑料在环境中分布广泛, 在生物体内可以产生多种不良健康效应, 但是目前缺乏对于人体影响的证据。鉴于此, 本文主要综述微塑料在环境和人类饮食中的分布, 提取和检测方法以及对生物产生的多种影响方式, 为将来制定微塑料相关标准, 研究微塑料毒性提供理论依据。

关键词: 微塑料; 分布; 提取方法; 检测方法; 毒性

Progress on detection of microplastics and their effects on ecosystem YE Li-jia, WU Nan-xiang
(Institute of Hygiene, Zhejiang Academy of Medical Sciences, Hangzhou, Zhejiang 300013, China)

Abstract:

Microplastics are a sort of plastic pieces with a size less than 5 mm and large specific surface area, and can absorb pollutants in the environment. A large number of studies have shown that microplastics are widely distributed in the environment and may have a variety of adverse health effects on organisms. The evidence for human health effects, however, is insufficient yet. Thus, this review introduced the distribution of microplastics in the environment and human diet, the extraction and detection methods of microplastics, and various ways of affecting organisms, aiming to provide a theoretical basis for developing relevant standards and studying the toxicity of microplastics.

Keywords: microplastics; distribution; extraction method; detection method; toxicity

在2004年Thompson等^[1]首次提出微塑料(microplastics)一词, 之后人们普遍接受将微塑料定义为直径小于5 mm的塑料碎片, 但也有学者将微塑料定义为直径小于1 mm的塑料颗粒^[2]。微塑料根据来源可分为两种——原生微塑料和次生微塑料, 除了存在于个人护理品及工业废物之中, 也可由体积较大的塑料经过日光照射、水流冲蚀等因素降解、磨损所形成。微塑料在环境中易被生物摄取, 影响生物的消化和生长发育, 由于生物放大作用, 微塑料可以随食物链传递至更高营养级甚至影响人类^[3]。不仅如此, 微生物和化学污染物也可以被微塑料吸附, 微塑料生产当中使用的添加剂也可以对生物产生危害。鉴于微塑料的污染问题日趋严重, 本文将对微塑料的分类、来源、分布、提取和检测方法、对生态环境影响的研究进展进行综述, 以全方位了解该类物质。

1 自然环境中的微塑料

有调查表明微塑料在水体、沉积物和水生生物中广泛存在, 随着微塑料在环境中的积累, 其对生物和生态环境产生的影响也在逐渐增加。在水体当中, 微塑料中密度小于水的部分漂浮在水体表面, 而密度较大的部分则聚集到沉积物中, 这些经地表径流等途径排放进入海洋的原生微塑料以及在海洋中形成的次生微塑料, 通过季风洋流分散到世界各地, 甚至在北极附近的白令海峡周

DOI 10.13213/j.cnki.jeom.2019.19438

基金项目

浙江省科技厅院所专项(1921D)

作者简介

叶李嘉(1995—), 男, 硕士生;
E-mail: hsmbyx2x@163.com

通信作者

吴南翔, E-mail: zamewu@163.com

利益冲突 无申报

收稿日期 2019-06-25

录用日期 2019-09-03

文章编号 2095-9982(2019)12-1161-08

中图分类号 R12

文献标志码 A

引用

叶李嘉, 吴南翔. 微塑料的检测及其生态环境影响研究进展[J]. 环境与职业医学, 2019, 36(12): 1161-1167, 1174.

本文链接

www.jeom.org/article/cn/10.13213/j.cnki.jeom.2019.19438

Funding

This study was funded.

Correspondence to

WU Nan-xiang, E-mail: zamewu@163.com

Competing interests None declared

Received 2019-06-25

Accepted 2019-09-03

To cite

YE Li-jia, WU Nan-xiang. Progress on detection of microplastics and their effects on ecosystem[J]. Journal of Environmental and Occupational Medicine, 2019, 36(12): 1161-1167, 1174.

Link to this article

www.jeom.org/article/en/10.13213/j.cnki.jeom.2019.19438

边海域发现了微塑料。研究者采取密度分离法,通过饱和碘化钾溶液分离出微塑料,经傅立叶变换红外光谱(Fourier transform infrared, FTIR)的方法分析显示微塑料的主要成分是聚丙烯,其余是聚对苯二甲酸乙二醇酯和合成纤维,分别占51.5%、35.2%和13.3%;在所检测的区域中,海底沉积物所含微塑料最高可达68.88个/kg^[4]。有学者使用碘化钠溶液分离微塑料,以拉曼光谱法(Raman spectroscopy, RM)检测,于南极威德尔海发现微塑料^[5],说明即使在远离人类聚集区的极地也有微塑料的污染存在。Browne等^[6]研究了横跨6个大陆的18个海岸的微塑料污染情况,结果显示微塑料的污染程度和人口密度显著相关。在日本及韩国附近海域均有微塑料的存在^[7];在印度的旅游景点果阿邦海滩也有微塑料发现的相关记录,以聚乙烯和聚丙烯为主^[8]。

中国是塑料的主要生产国家之一。Wang等^[9]在广东北江发现沉积物中存在微塑料[(178±69)~(544±107)个/kg],研究人员采取扫描电子显微镜(scanning electron microscopy, SEM)观察微塑料表面,用FTIR识别,并使用能谱仪(energy dispersive spectrometer, EDS)证明部分附着于微塑料的金属源自于环境。在对胶州湾水域的检测中,通过氯化锌溶液从沉积物中分离微塑料,数量可达25个/kg^[10]。Yuan等^[11]对中国最大的淡水湖鄱阳湖提取水样进行检测,结果表明微塑料在湖水、沉积物和生物体中广泛存在,湖水和沉积物中微塑料含量分别为5~34个/L和54~506个/L。Yan等^[12]在珠江三角洲所属的珠江流域也发现了微塑料污染,调查显示珠江广州市区河段以及出海口微塑料平均含量分别为20个/L和9个/L。拥有较高人口密度的华东地区易受到微塑料污染,有研究发现太湖中微塑料颗粒含量为3.4~25.8个/L^[13],Peng等^[14]调查了上海的数条不同规模的河流,使用氯化钠溶液提取微塑料,借助FTIR检测,结果显示在河底沉积物当中,平均含有(802±594)个/kg的塑料碎片,其中以聚丙烯塑料为主。

除了水体中含有微塑料,空气中也存在微塑料,尤其是室内空气。现代社会人们普遍存在室内活动较多的情况,室内污染对人类的危害可能比其他途径更大。其中由职业因素导致的微塑料污染比较常见^[15]。除了职业因素,农业用聚乙烯塑料膜^[16]或干燥衣物^[17]等破碎分解而来的微塑料,也是空气中微塑料的来源之一。

2 食品、饮用水中的微塑料

由于海水中存在微塑料,因此食盐中也含有此物质。食盐是一种使用最广的调味品,虽然日均摄入量低,但可导致长期暴露。一项研究发现西班牙产食盐中含有微塑料50~280个/kg,主要是聚对苯二甲酸乙二醇酯,其次是聚乙烯和聚丙烯^[18]。Yang等^[19]从中国的超市收集了15种品牌的食盐,发现海盐当中的微塑料含量最多,为550~681个/kg,岩盐当中含量最少,为7~204个/kg。Li等^[20]从上海渔业市场购买的9种最受欢迎的贝类水产中发现了微塑料的存在,以合成纤维为主。微塑料对贝类的污染并不限于中国,德国人工养殖的贻贝和牡蛎同样受到了微塑料的污染,根据测量所得,估计欧洲的贝类消费者平均每年可摄入微塑料多达11000个^[21]。除了人工养殖的水产体内含有微塑料外,陆上的农业生产也有类似问题,其污染主要以风为媒介。有研究发现蜂蜜也被污染,微塑料经由空气携带附着在植物的花朵和叶片上,在授粉的同时微塑料颗粒可同花粉一起被蜜蜂携带,在花朵和蜂巢中发现了合成纤维支持这一观点^[22]。另外更值得注意的是,即使原料未被微塑料污染,但在食品生产加工过程中也可能受到污染,例如在啤酒中发现了合成纤维^[17],研究者认为啤酒工人服装脱落的合成纤维和啤酒生产过程中过滤材料是啤酒中微塑料污染的主要原因。

以上证据表明微塑料不仅存在于环境中,也可以通过污染食物进而影响人类。从塑料问世至今,已衍生出繁多种类,随着生产技术和生活水平的发展,塑料垃圾以聚乙烯、聚丙烯、聚对苯二甲酸乙二醇酯、聚苯乙烯和聚氯乙烯为主。虽然塑料仅有百余年历史,但这些被废弃投入环境的塑料却在全球范围内造成了深远的影响。

3 微塑料的提取方法

目前文献报道从水样、沉积物和生物当中提取微塑料的方法有所不同,采用不同的方法所提取的微塑料可能会产生偏差。由于标准化微塑料检测方法缺乏,迫切需要对现有报道的方法进行分析比较,以了解各种方法的优缺点和使用范围。微塑料的分析主要包括两步:一是提取和纯化,二是定量和鉴定。微塑料必须从所取样品中分离出来,才能进行后续的定量和鉴定过程。考虑到样品主要是水、水底沉积物、生物样品,三者的取样方法不尽相同,对样品的预处理

也有所区别。各种处理方法在不同条件下, 要按具体情况分别考虑, 尽可能做到在不产生破坏的前提下提取出全部微塑料且没有遗漏, 也不可将其其他有机、无机颗粒误认为微塑料保留, 以免影响后续检测。将微塑料从样品中分离出来后, 根据研究目的不同, 对微塑料的物理形态和化学性质(包括颗粒数量、大小、颜色、腐蚀程度、颗粒类型、材料类型等)进行分析鉴定。微塑料的提取方法如下。

3.1 直接提取法

直接提取法, 即通过肉眼或借助显微镜观察直接从样品中提取微塑料。凭借塑料相对天然物质独特的颜色和形状等特征, 直径较大的微塑料颗粒可以通过肉眼或借助显微镜直接观察到。若微塑料的颜色等特征与其他物质相近不易区分时, 通过直接观察微塑料会和真实结果有所出入, 导致过高或过低地评价微塑料对环境或生物的影响。有研究者通过经高温探针触碰微塑料^[23]和染料染色以提高精确度和准确性^[24]。

3.2 消化提取法

生物样品所含的大量生物组织会影响微塑料直接分离提取的效率, 此时可使用酸、碱、氧化剂等化学试剂或者利用生物酶降解生物组织^[25], 使有机物消化。但是单独使用某一种化学试剂往往不能完全消化有机物, 试剂甚至会与微塑料发生反应, 破坏微塑料结构, 影响检测结果。因此可根据微塑料的化学特性和生物组织的不同选择合适的化学试剂。Hurley等^[26]使样品经由不同温度和浓度的过氧化氢溶液、芬顿试剂、氢氧化钠溶液和氢氧化钾溶液处理, 统计微塑料质量、大小和光谱分析结果并分析有机杂质去除率, 共测试了包括聚丙烯、低密度聚乙烯在内的8种欧洲常见塑料材料类型, 结果显示芬顿试剂效果最优。

3.3 超声提取法

鉴于消化提取法采用的化学溶剂可能腐蚀样本中的微塑料, 造成生物组织内的微塑料溶解等问题, Wagner等^[27]运用超声波提取微塑料, 其与使用化学物质的直接提取法相比, 这种超纯水-超声提取技术相对消化提取法还具有用时短的优点。

3.4 密度提取法

上述方法并不能完全去除微塑料之外的所有杂质, 例如沙粒等二氧化硅类物质, 此时可采用密度提取法。密度提取法是一种常用的微塑料分离方法, 需用密度已知的溶液, 将样品与该溶液混合, 搅拌离心后微塑料颗粒浮在上清液中, 而不能消化溶解的无机

颗粒等则沉淀到底部, 由此达到分离微塑料的目的。常用的溶液有NaCl、NaI、CaCl₂、ZnCl₂和聚钨酸钠, 根据所研究的内容选用一定密度范围的溶液用于分离不同密度的微塑料。

3.5 过滤提取法

根据所需获得的微塑料尺寸大小选择孔径合适的滤膜, 并且所选用的滤膜材质要有利于后续微塑料的检测。通过多层不同孔径的滤膜将微塑料按照不同的尺寸大小范围进行分类。另外, 密度提取法之后, 进一步可通过过滤分离将上清液中的微塑料提取出来。

4 微塑料的检测方法

4.1 直接观察法

直接观察分拣是常用的方法之一, 即通过肉眼观察或者借助显微镜将提取的微塑料直接按照颜色形状等进行挑选分类, 或者鉴定微塑料的颗粒类型、腐蚀程度等, 该方法简单、经济, 但是只能对尺寸较大的微塑料进行操作, 不能鉴定微塑料的材料类型。另外, 有研究通过偏振光显微镜也成功鉴定了聚乙烯颗粒^[28]。

4.2 SEM

SEM利用聚焦得到非常细的高能电子束在试样上扫描激发出各种物理信息, 通过对这些信息的接收, 可以得到样品放大至500 000倍的显示成像, 形成清晰图像。从图像中可以看到颗粒表面的结构, 鉴别表面结构、腐蚀程度等。结合EDS能够进一步分析待测物元素组成, 更好地区分微塑料和无机颗粒, 但缺点是设备成本较高。

4.3 FTIR

尺寸较小的微塑料不便直接观察进行鉴定, 须使用其他方法进行鉴别, 其中FTIR是检测微塑料种类最常用的检测方法之一。用这种方法可以很容易地识别含碳聚合物, 不同的化学键形成不同的光谱, 从而将塑料与其他有机和无机杂质区分开。通过将所得的微塑料样品红外图谱与标准图谱进行对比, 从而得出所检测的微塑料的主要成分及其含量, 也能检测微塑料的腐蚀情况。该方法除了可以检测尺寸较小的微塑料颗粒之外, 还拥有不损害样品、准确性高等优点。

4.4 RM

和FTIR相同, RM也是一种非破坏性检测微塑料的常用方法, 对所测样品照射激光束, 不同的分子结

构会产生不同频率的散射光,从而产生独特的光谱。该方法主要可识别芳香键、碳氢键和碳碳双键以确定微塑料的材料类型。同时相比于上述的 FTIR, RM 能达到更高的分辨率,识别尺寸更小的微塑料。然而,这种方法对微塑料中的添加剂和染料敏感,会影响对微塑料的检测。

4.5 色谱法

色谱法是光谱法的替代方法,利用不同物质在固定相与流动相之间分配能力的差异,实现多种物质之间的分离。主要有气相色谱法和液相色谱法,其中气相色谱通常和质谱联用(GC-MS),再结合热分解技术对样品中的微塑料进行检测,被称为热解析气相色谱技术,是常见的检测方法之一。此外高温凝胶渗透色谱(high-temperature gel-permeation chromatography)也可用于检测^[29]。

4.5.1 热解析气相色谱法 这种技术方法于2001年首次应用于环境样品的检测^[3],将样品置于惰性气体中,加热至一定的温度使其分解成为小分子,之后通过GC-MS测定质荷比,以此来判断所测样品中微塑料的材料种类^[30]。该方法能检测微塑料中的有机添加剂,无机物杂质不会干扰检测结果。但是这种方法会破坏样品,经过检测的微塑料被完全分解从而不能对其进行其他检测^[31]。

4.5.2 液相色谱法 除了气相色谱法之外,液相色谱法也可用于微塑料的定量检测。该方法利用各种塑料之间的不同溶解度,选择适当的溶剂溶解不同的聚合物。但目前鲜有采用此方法进行微塑料鉴定的相关研究报告,仍需进一步研究探索。

4.5.3 核磁共振法 运用核磁共振是一种经济有效,快速且简单的方法,Peez等^[32]首次将核磁共振法用于微塑料的检测,由于核磁共振法所检测到的信号与受测样品的氢原子数量相关,而氢原子数量又和溶液中微塑料的浓度有关,因此核磁共振法可以用来定量检测微塑料。与其他检测方法如FTIR、RM和热解析气相色谱法等相比,该方法的主要优势是不受待测微塑料尺寸大小限制,但是需要放在氘代溶剂中进行检测。

5 微塑料对生态环境的影响

5.1 聚合物单体、添加剂和吸附化学物对生物体的影响

塑料中包含有害单体、添加剂,这些单体和添加

剂在生产工艺和改善塑料特性方面往往是必要的。例如双酚A是合成聚碳酸酯塑料和环氧树脂所用的单体之一,其作为添加剂具有增加抗氧化或可塑性等作用。包含有毒单体和污染物的微塑料被生物摄入体内后,这些化学物质浸出释放,从而对生物产生有害作用,甚至对人类健康产生明显的影响。例如塑化剂邻苯二甲酸酯的暴露可导致性发育异常和出生缺陷^[33],双酚A则会干扰内分泌系统,影响生长发育。一项挪威海鸟的研究表明微塑料的摄入对持久性有机污染物的蓄积几乎没有影响^[34],这可能是由于微塑料所吸附的化学物质含量有限所致。迄今有大量证据证明微塑料能够吸附污染物,但是微塑料吸附污染物对生物体造成影响的报道并不多见,该方向研究重要性突显。

5.2 附着于微塑料的微生物对生物体健康的影响

微塑料除了吸附有毒有害物质以外,还可以携带各种微生物。有研究发现,在东太平洋收集的塑料碎片中,检测到珊瑚的几种病原体^[35],而在北大西洋收集的微塑料中发现了副溶血性弧菌^[36]。微塑料在微生物的传播上提供了一个相对适宜的环境,能够保护微生物抵抗外界的各种不利因素,如温度、紫外线等。因此,凭借微塑料的保护作用和环境中易于迁移的特性,微生物能跨越较长距离传播至更加偏远地区。这种将致病菌传播至其他地区的生物入侵,会增加生物体的感染风险,严重者甚至会破坏生态平衡。

5.3 微塑料对生物体的影响方式

微塑料主要存在于海洋中,由于微塑料尺寸较小,易被水生生物误食。微塑料本身无法被生物消化吸收,除部分经消化道排出体外,剩余的微塑料会蓄积在生物体内,主要在消化系统中。微塑料除了蓄积在消化道直接影响生物的代谢外,还可以携带环境中其他的污染物和微生物,如多溴联苯醚、邻苯二甲酸盐、双酚A以及一些重金属如汞、铅、铬、镉等而造成生物体损害。另外由于微塑料在世界范围内分布广泛,并随着生物链富集、迁移,从而对低等到高等各种生物产生影响。

微塑料被误食在所难免。近几年微塑料对生物影响的研究有新的进展,研究包括软体动物、鱼类、鸟类甚至哺乳动物。其中鱼类作为水生生物通过鳃进行呼吸,与哺乳动物的肺不同的是鱼类的鳃拥有特殊的结构,这种更紧密的呼吸系统结构使得微塑料暴露产生的危害降低,而更可能在鱼的消化道产生蓄积,并

且鱼类摄取微塑料这一现象已在实验室研究中得到证实^[37]。有研究推测,微塑料本身随食物进入消化道,尺寸大于150 μm的微塑料可能不会被吸收,可直接从消化道排出体外;而小于150 μm的微塑料则可能会从肠腔转移至循环系统,从而在肝、脑、肌肉等组织器官中蓄积^[38]。同时有研究表明微塑料会产生联合效应,增加重金属等化学污染物对鱼类的影响^[39]。而列于人类食谱中的贝类没有类似鱼类的高级消化系统,贝类摄食过程中蓄积的微塑料不易去除。而鱼类在作为人类的食物时,鳃和消化系统通常因不可食用而被去除,所以经微塑料污染的贝类对人类产生的影响比被污染鱼类更大。

Ziajahromi等^[40]用不同大小的微塑料对摇蚊幼虫进行染毒,结果显示在10~27 μm这一尺寸范围内,暴露于聚乙烯微塑料会产生成虫孵化率明显减少,虫体长度变短和死亡率上升的现象。将大型蚤暴露于1 μm的聚乙烯微塑料中,随着染毒剂量和时间增加,可以观察到大型蚤活动的减少^[41],这种现象可能与微塑料对消化系统产生的影响有关。摄入的微塑料会阻塞消化道,造成摇蚊无法摄取足够的食物,减缓生长发育过程甚至导致死亡。LeMoine等^[42]将斑马鱼胚胎暴露于经荧光染色的聚乙烯微塑料中,虽然未观察到对斑马鱼的生长发育产生明显有害作用,但却发现微塑料对神经相关的基因表达产生影响。Chen等^[43]也发现了此类现象,且纳米级别的微塑料会减少斑马鱼的活动。Lei等^[44]利用斑马鱼和秀丽隐杆线虫作为模式生物,对多种材料的微塑料毒性进行研究,发现70 μm尺寸的微塑料除了对消化道产生损害作用以外还影响生殖功能,并且可能导致肠道细胞氧化损伤发生。不仅如此,尺寸也可对微塑料的吸收产生影响,通常只有尺寸小于20 μm的微塑料才能进入组织器官,如此可造成微塑料在肝脏、肌肉和大脑等组织器官中的蓄积^[45],而<10 μm的部分能够通过细胞膜、血脑屏障和血胎屏障^[46]。此外,有研究证明微塑料具有免疫毒性,引发免疫抑制和异常炎症反应^[47]。一项关于大脑和上皮细胞的体外研究借助高内涵分析技术(high-content analysis),证明了10 μm和40~250 nm的微塑料具有氧化应激的细胞毒性作用^[48]。

微塑料水污染不是对生物造成影响的唯一暴露途径,微塑料还可以通过空气进入生物呼吸道。已有研究发现,人类由空气途径接触合成纤维的可能性高于通过食用贻贝摄取合成纤维^[49]。人类吸入微塑料

可因为在微塑料上附着的有毒有害化学物、致病菌和寄生虫等产生不良健康影响。Karbalaee等^[50]的一项问卷调查显示,46名使用3D打印机的工人中,57%的受访者每周工作超过40h,这些工人平常接触的打印材料包括聚乳酸、丙烯腈-丁二烯-苯乙烯和尼龙等人工合成高分子材料。Gallagher等^[51]从1989—2006年跟踪了上海超过26万的纺织女工,发现暴露于合成纤维20年以上是胃癌发生的危险因素(95% CI: 1.1~1.4)。相关职业人群若缺乏防护措施,这种高剂量的暴露可能会产生不良的健康影响,应对此予以密切关注。

6 总结与展望

现有的微塑料分离、检测技术方法种类繁多。随着研究深入,更需要一套标准的微塑料检测方法,以减少在提取和检测方面的误差,提高各个研究结果之间的可比性。建议在微塑料样品的收集、预处理、定量和鉴定的研究中根据实际情况选择一种或多种方法合并使用。未来全自动化的检测设备是发展趋势,这就为微塑料的识别与检测提供了更多的可能性,从而更好地分析环境中的微塑料。

微塑料在空气、土壤当中普遍存在,特别是水生环境中的存在已经成为环境污染研究的热点之一。这是研究环境对人类健康产生潜在影响的新兴领域,这种潜在的健康问题主要与微塑料自身、吸附的化学物质以及塑料生产过程中使用的添加剂有关。目前在细胞、动物实验研究结果中已知包括生殖发育毒性、行为毒性、免疫毒性在内的多种毒性效应,但除此之外也要综合评价微塑料与环境其他污染物的联合作用。目前微塑料对人类影响的毒理学和流行病学研究仍然缺乏,需要更多关于微塑料对人类健康风险的评估,进一步了解微塑料的毒性效应机制,以便相关部门、机构制定法律法规来指导环境保护工作并保障生活生产安全。

参考文献

- [1] THOMPSON RC, OLSEN Y, MITCHELL RP, et al. Lost at sea: where is all the plastic? [J]. *Science*, 2004, 304 (5672): 838.
- [2] COSTA MF, IVAR DO SUL JA, SILVA-CAVALCANTI JS, et al. On the importance of size of plastic fragments and pellets on the strandline: a snapshot of a Brazilian beach [J]. *Environ Monit Assess*, 2010, 168 (1/2/3/4): 299-304.

- [3] IVLEVA N P, WIESHEU A C, NIESSNER R. Microplastic in aquatic ecosystems [J]. *Angew Chem Int Ed Engl*, 2017, 56 (7) : 1720-1739.
- [4] MU J, QU L, JIN F, et al. Abundance and distribution of microplastics in the surface sediments from the northern Bering and Chukchi Seas [J]. *Environ Pollut*, 2019, 245 : 122-130.
- [5] VAN CAUWENBERGHE L, VANREUSEL A, MEES J, et al. Microplastic pollution in deep-sea sediments [J]. *Environ Pollut*, 2013, 182 : 495-499.
- [6] BROWNE MA, CRUMP P, NIVEN SJ, et al. Accumulation of microplastic on shorelines worldwide : sources and sinks [J]. *Environ Sci Technol*, 2011, 45 (21) : 9175-9179.
- [7] KIM IS, CHAE DH, KIM SK, et al. Factors influencing the spatial variation of microplastics on high-tidal coastal beaches in Korea [J]. *Arch Environ Contam Toxicol*, 2015, 69 (3) : 299-309.
- [8] VEERASINGAM S, SAHA M, SUNEEL V, et al. Characteristics, seasonal distribution and surface degradation features of microplastic pellets along the Goa coast, India [J]. *Chemosphere*, 2016, 159 : 496-505.
- [9] WANG J, PENG J, TAN Z, et al. Microplastics in the surface sediments from the Beijiag River littoral zone : composition, abundance, surface textures and interaction with heavy metals [J]. *Chemosphere*, 2017, 171 : 248-258.
- [10] ZHENG Y, LI J, CAO W, et al. Distribution characteristics of microplastics in the seawater and sediment : a case study in Jiaozhou Bay, China [J]. *Sci Total Environ*, 2019, 674 : 27-35.
- [11] YUAN W, LIU X, WANG W, et al. Microplastic abundance, distribution and composition in water, sediments, and wild fish from Poyang Lake, China [J]. *Ecotoxicol Environ Saf*, 2019, 170 : 180-187.
- [12] YAN M, NIE H, XU K, et al. Microplastic abundance, distribution and composition in the Pearl River along Guangzhou city and Pearl River estuary, China [J]. *Chemosphere*, 2019, 217 : 879-886.
- [13] SU L, XUE Y, LI L, et al. Microplastics in Taihu Lake, China [J]. *Environ Pollut*, 2016, 216 : 711-719.
- [14] PENG G, XU P, ZHU B, et al. Microplastics in freshwater river sediments in Shanghai, China : a case study of risk assessment in mega-cities [J]. *Environ Pollut*, 2018, 234 : 448-456.
- [15] PRATA JC. Airborne microplastics : consequences to human health? [J]. *Environ Pollut*, 2018, 234 : 115-126.
- [16] NIZZETTO L, FUTTER M, LANGAAS S. Are agricultural soils dumps for microplastics of urban origin? [J]. *Environ Sci Technol*, 2016, 50 (20) : 10777-10779.
- [17] LIEBEZEIT G, LIEBEZEIT E. Synthetic particles as contaminants in German beers [J]. *Food Addit Contam Part A*, 2014, 31 (9) : 1574-1578.
- [18] IÑIGUEZ ME, CONESA JA, FULLANA A. Microplastics in Spanish table salt [J]. *Sci Rep*, 2017, 7 (1) : 8620.
- [19] YANG D, SHI H, LI L, et al. Microplastic pollution in table salts from China [J]. *Environ Sci Technol*, 2015, 49 (22) : 13622-13627.
- [20] LI J, YANG D, LI L, et al. Microplastics in commercial bivalves from China [J]. *Environ Pollut*, 2015, 207 : 190-195.
- [21] VAN CAUWENBERGHE L, JANSSEN CR. Microplastics in bivalves cultured for human consumption [J]. *Environ Pollut*, 2014, 193 : 65-70.
- [22] LIEBEZEIT G, LIEBEZEIT E. Non-pollen particulates in honey and sugar [J]. *Food Addit Contam Part A*, 2013, 30 (12) : 2136-2140.
- [23] DEVRIESE LI, VAN DER MEULEN MD, MAES T, et al. Microplastic contamination in brown shrimp (*Crangon crangon*, Linnaeus 1758) from coastal waters of the Southern North Sea and Channel area [J]. *Mar Pollut Bull*, 2015, 98 (1/2) : 179-187.
- [24] SHIM WJ, SONG YK, HONG SH, et al. Identification and quantification of microplastics using Nile Red staining [J]. *Mar Pollut Bull*, 2016, 113 (1/2) : 469-476.
- [25] CLAESSENS M, VAN CAUWENBERGHE L, VANDEGEHUCHTE MB, et al. New techniques for the detection of microplastics in sediments and field collected organisms [J]. *Mar Pollut Bull*, 2013, 70 (1/2) : 227-233.
- [26] HURLEY RR, LUSHER AL, OLSEN M, et al. Validation of a method for extracting microplastics from complex, organic-rich, environmental matrices [J]. *Environ Sci Technol*, 2018, 52 (13) : 7409-7417.
- [27] WAGNER J, WANG ZM, GHOSAL S, et al. Novel method for the extraction and identification of microplastics in ocean

- trawl and fish gut matrices [J]. *Anal Methods*, 2017, 9 (9) : 1479-1490.
- [28] VON MOOS N, BURKHARDT-HOLM P, KÖHLER A. Uptake and effects of microplastics on cells and tissue of the blue mussel *Mytilus edulis* L. after an experimental exposure [J]. *Environ Sci Technol*, 2012, 46 (20) : 11327-11335.
- [29] HINTERSTEINER I, HIMMELSBACH M, BUCHBERGER W W. Characterization and quantitation of polyolefin microplastics in personal-care products using high-temperature gel-permeation chromatography [J]. *Anal Bioanal Chem*, 2015, 407 (4) : 1253-1259.
- [30] FRIES E, DEKIFF J H, WILLMEYER J, et al. Identification of polymer types and additives in marine microplastic particles using pyrolysis-GC/MS and scanning electron microscopy [J]. *Environ Sci Processes Impacts*, 2013, 15 (10) : 1949-1956.
- [31] KÄPPLER A, FISCHER M, SCHOLZ-BÖTTCHER B M, et al. Comparison of μ -ATR-FTIR spectroscopy and py-GCMS as identification tools for microplastic particles and fibers isolated from river sediments [J]. *Anal Bioanal Chem*, 2018, 410 (21) : 5313-5327.
- [32] PEEZ N, JANISKA M C, IMHOF W. The first application of quantitative ¹H NMR spectroscopy as a simple and fast method of identification and quantification of microplastic particles (PE, PET, and PS) [J]. *Anal Bioanal Chem*, 2019, 411 (4) : 823-833.
- [33] CHENG Z, NIE X P, WANG H S, et al. Risk assessments of human exposure to bioaccessible phthalate esters through market fish consumption [J]. *Environ Int*, 2013, 57-58 : 75-80.
- [34] HERZKE D, ANKER-NILSSEN T, NOST T H, et al. Negligible impact of ingested microplastics on tissue concentrations of persistent organic pollutants in northern fulmars off coastal Norway [J]. *Environ Sci Technol*, 2016, 50 (4) : 1924-1933.
- [35] GOLDSTEIN M C, CARSON H S, ERIKSEN M. Relationship of diversity and habitat area in North Pacific plastic-associated rafting communities [J]. *Mar Biol*, 2014, 161 (6) : 1441-1453.
- [36] KIRSTEIN I V, KIRMIZI S, WICHELS A, et al. Dangerous hitchhikers? Evidence for potentially pathogenic *Vibrio* spp. on microplastic particles [J]. *Mar Environ Res*, 2016, 120 : 1-8.
- [37] MAZURAI S D, ERNANDE B, QUAZUGUEL P, et al. Evaluation of the impact of polyethylene microbeads ingestion in European sea bass (*Dicentrarchus labrax*) larvae [J]. *Mar Environ Res*, 2015, 112 : 78-85.
- [38] BARBOZA L G A, DICK VETHAAK A, LAVORANTE B R B O, et al. Marine microplastic debris : an emerging issue for food security, food safety and human health [J]. *Mar Pollut Bull*, 2018, 133 : 336-348.
- [39] RAINIERI S, CONLLEDO N, LARSEN B K, et al. Combined effects of microplastics and chemical contaminants on the organ toxicity of zebrafish (*Danio rerio*) [J]. *Environ Res*, 2018, 162 : 135-143.
- [40] ZIAJAHROMI S, KUMAR A, NEALE P A, et al. Environmentally relevant concentrations of polyethylene microplastics negatively impact the survival, growth and emergence of sediment-dwelling invertebrates [J]. *Environ Pollut*, 2018, 236 : 425-431.
- [41] REHSE S, KLOAS W, ZARFL C. Short-term exposure with high concentrations of pristine microplastic particles leads to immobilisation of *Daphnia magna* [J]. *Chemosphere*, 2016, 153 : 91-99.
- [42] LEMOINE C M R, KELLEHER B M, LAGARDE R, et al. Transcriptional effects of polyethylene microplastics ingestion in developing zebrafish (*Danio rerio*) [J]. *Environ Pollut*, 2018, 243 : 591-600.
- [43] CHEN Q, GUNDLACH M, YANG S, et al. Quantitative investigation of the mechanisms of microplastics and nanoplastics toward zebrafish larvae locomotor activity [J]. *Sci Total Environ*, 2017, 584-585 : 1022-1031.
- [44] LEI L, WU S, LU S, et al. Microplastic particles cause intestinal damage and other adverse effects in zebrafish *Danio rerio* and nematode *Caenorhabditis elegans* [J]. *Sci Total Environ*, 2018, 619-620 : 1-8.
- [45] WRIGHT S L, KELLY F J. Plastic and human health : a micro issue? [J]. *Environ Sci Technol*, 2017, 51 (12) : 6634-6647.
- [46] BOUWMEESTER H, HOLLMAN P C, PETERS R J. Potential health impact of environmentally released micro- and nanoplastics in the human food production chain : experiences from nanotoxicology [J]. *Environ Sci Technol*, 2018, 52 (12) : 6981-6991.

(下转第 1174 页)

- a membrane bioreactor for removing antibiotic resistance genes exposed to antibiotics : role of membrane foulants [J] . Water Res, 2018, 130 : 139-150.
- [42] YOON Y, CHUNG HJ, WEN DD, et al. Inactivation efficiency of plasmid-encoded antibiotic resistance genes during water treatment with chlorine, UV, and UV/H₂O₂ [J] . Water Res, 2017, 123 : 783-793.
- [43] RODRÍGUEZ-CHUECA J, VARELLA DELLA GIUSTINA S, ROCHA J, et al. Assessment of full-scale tertiary wastewater treatment by UV-C based-AOPs : removal or persistence of antibiotics and antibiotic resistance genes? [J] . Sci Total Environ, 2019, 652 : 1051-1061.
- [44] CHANG F, SHEN S, SHI P, et al. Antimicrobial resins with quaternary ammonium salts as a supplement to combat the antibiotic resistome in drinking water treatment plants [J] . Chemosphere, 2019, 221 : 134-140.
- [45] ZHANG Y, GU AZ, XIE S, et al. Nano-metal oxides induce antimicrobial resistance via radical-mediated mutagenesis [J] . Environ Int, 2018, 121 : 1162-1171.
- [46] HUANG KS, SHIEH DB, YEH CS, et al. Antimicrobial applications of water-dispersible magnetic nanoparticles in biomedicine [J] . Curr Med Chem, 2014, 21 (29) : 3312-3322.
- [47] JIAO W, DU R, YE M, et al. 'Agricultural Waste to Treasure'-Biochar and eggshell to impede soil antibiotics/antibiotic resistant bacteria (genes) from accumulating in *Solanum tuberosum* L. [J] . Environ Pollut, 2018, 242 : 2088-2095.

(英文编辑：汪源；编辑：汪源；校对：葛宏妍)

(上接第 1167 页)

- 2015, 49 (15) : 8932-8947.
- [47] WEN B, JIN SR, CHEN ZZ, et al. Single and combined effects of microplastics and cadmium on the cadmium accumulation, antioxidant defence and innate immunity of the discus fish (*Symphysodon aequifasciatus*) [J] . Environ Pollut, 2018, 243 : 462-471.
- [48] SCHIRINZI GF, PÉREZ-POMEDA I, SANCHÍS J, et al. Cytotoxic effects of commonly used nanomaterials and microplastics on cerebral and epithelial human cells [J] . Environ Res, 2017, 159 : 579-587.
- [49] CATARINO AI, MACCHIA V, SANDERSON WG, et al. Low levels of microplastics (MP) in wild mussels indicate that MP ingestion by humans is minimal compared to exposure via household fibres fallout during a meal [J] . Environ Pollut, 2018, 237 : 675-684.
- [50] KARBALAEI S, HANACHI P, WALKER TR, et al. Occurrence, sources, human health impacts and mitigation of microplastic pollution [J] . Environ Sci Pollut Res, 2018, 25 (36) : 36046-36063.
- [51] GALLAGHER LG, LI W, RAY RM, et al. Occupational exposures and risk of stomach and esophageal cancers : update of a cohort of female textile workers in Shanghai, China [J] . Am J Ind Med, 2015, 58 (3) : 267-275.

(英文编辑：汪源；编辑：王晓宇；校对：丁瑾瑜)