

DOI:10.7524/AJE.1673-5897.20190911003

韩丽花, 李巧玲, 徐笠, 等. 大辽河流域土壤中微塑料的丰度与分布研究[J]. 生态毒理学报, 2020, 15(1): 174-185

Han L H, Li Q L, Xu L, et al. Abundance and distribution of microplastics of soils in Daliao River basin [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2020, 15(1): 174-185 (in Chinese)

## 大辽河流域土壤中微塑料的丰度与分布研究

韩丽花<sup>1,2,3</sup>, 李巧玲<sup>1</sup>, 徐笠<sup>2,3,\*</sup>, 陆安祥<sup>2,3</sup>, 李冰茹<sup>2,3</sup>, 巩文雯<sup>2,3</sup>, 田佳宇<sup>2,3</sup>

1. 中北大学理学院, 太原 030051
2. 北京市农林科学院, 北京农业质量标准与检测技术研究中心, 北京 100097
3. 农产品产地环境监测北京市重点实验室, 北京 100097

收稿日期: 2019-09-11 录用日期: 2019-10-18

**摘要:** 微塑料在海洋生态系统中的分布特征已有不少研究, 但人类活动强度较大的流域土壤中微塑料的污染研究仍存在较大空白。以大辽河流域为研究对象, 采集附近8个土壤样品, 采用密度浮选法, 结合体视显微镜及显微红外光谱( $\mu$ -FTIR), 进行了大辽河流域土壤中微塑料的组成及分布特征研究。结果表明, 土壤中微塑料颜色以白、蓝和绿色为主(88.03%), 形状以碎片、薄膜和泡沫为主(总占比为96.32%), 土壤中粒径为500~1 000  $\mu\text{m}$ 的微塑料最多(41.10%), 其次依次为1 000~2 000  $\mu\text{m}$ (26.38%)、100~500  $\mu\text{m}$ (19.33%)和2 000~5 000  $\mu\text{m}$ (11.66%)。粒径为0~100  $\mu\text{m}$ 的微塑料和>5 000  $\mu\text{m}$ 的塑料碎片所占比例最小(均小于1.00%)。薄膜类和碎片类微塑料的主要成分分别是聚乙烯(PE)和聚丙烯(PP), 颗粒类和泡沫类的主要成分是聚苯乙烯(PS), 纤维类微塑料的主要成分是聚酰胺(PA)。土壤中微塑料平均丰度为(273.33 $\pm$ 327.65)个 $\cdot\text{kg}^{-1}$ 。总体上, 该研究区域土壤中微塑料的污染程度处于中等偏低水平。

**关键词:** 微塑料; 大辽河流域; 土壤; 丰度; 分布

文章编号: 1673-5897(2020)1-174-12 中图分类号: X171.5 文献标识码: A

## Abundance and Distribution of Microplastics of Soils in Daliao River Basin

Han Lihua<sup>1,2,3</sup>, Li Qiaoling<sup>1</sup>, Xu Li<sup>2,3,\*</sup>, Lu Anxiang<sup>2,3</sup>, Li Bingru<sup>2,3</sup>, Gong Wenwen<sup>2,3</sup>, Tian Jiayu<sup>2,3</sup>

1. School of Science, North University of China, Taiyuan 030051, China
2. Beijing Research Center for Agricultural Standards and Testing, Beijing Academy of Agriculture and Forestry Sciences, Beijing 100097, China
3. Beijing Municipal Key Laboratory of Agricultural Environment Monitoring, Beijing 100097, China

Received 11 September 2019 accepted 18 October 2019

**Abstract:** Microplastics have been widely distributed in marine ecosystems, which is an increasing concern for researchers. But there is still a large gap in the studies on the pollution of microplastics in watershed soils with high human activity. Eight soil samples were selected in Daliao River basin. The composition and distribution characteristics of microplastics in the soil of the Daliao River basin were studied by density flotation combined with stereo microscope and  $\mu$ -FTIR. The results showed that the color of microplastics in the soil was mainly white, blue and

**基金项目:** 北京市优秀人才青年骨干项目; 北京市农林科学院创新能力建设(KJCX20180406, KJCX20190405); 辽河流域水环境管理与水污染治理技术推广应用项目(2018ZX07601003)

**作者简介:** 韩丽花(1993—), 女, 硕士研究生, 研究方向为微塑料的污染分布, E-mail: lihuaHanzbdx@163.com

\* **通讯作者** (Corresponding author), E-mail: xuliforever@163.com

green (the total proportion was 88.03%); the shape was fragment, film and foam (the total proportion was 96.32%). The main particle sizes of microplastics in soil were 500 ~ 1 000  $\mu\text{m}$ , which accounted for 41.10%, followed by 1 000 ~ 2 000  $\mu\text{m}$  (26.38%), 100 ~ 500  $\mu\text{m}$  (19.33%) and 2 000 ~ 5 000  $\mu\text{m}$  (11.66%). Microplastics with particle size of 0 ~ 100  $\mu\text{m}$  and debris plastics with particle size of >5 000  $\mu\text{m}$  accounted for the smallest proportion (both less than 1.00%). The main components of film and fragment microplastics were polyethylene (PE) and polypropylene (PP), respectively. The main components of particle and foam microplastics were polystyrene (PS), and the main component of the fiber microplastic was polyamide (PA). The average abundance of microplastics in soil was  $(273.33 \pm 327.65)$  items  $\cdot \text{kg}^{-1}$ . Overall, the pollution level of microplastics in the soils of the study area was at a moderately low level.

**Keywords:** microplastic; Daliao River basin; soil; abundance; distribution

微塑料(microplastics)一词最早由 Andradý<sup>[1]</sup>提出,后经美国国家海洋和大气管理局(National Oceanic and Atmospheric Administration, NOAA)将其定义为直径<5 mm 的塑料颗粒,主要来源于大尺寸塑料的风化和降解产物、化纤纺织品的断裂及个人护理品或工业原材料,即按其来源可分为初级微塑料和次级微塑料。微塑料具有粒径小、比表面积大、疏水性强和难降解等特性,是众多疏水性污染物和重金属的理想载体<sup>[2]</sup>。微塑料不断上升的环境浓度以及潜在的生态毒理效应,引起了全球的日益关注<sup>[3]</sup>。

近年来,国内外学者对微塑料污染的研究已取得了一定的成果。这些研究表明,微塑料广泛存在于海洋<sup>[4-5]</sup>、淡水湖<sup>[6]</sup>、河流沉积物<sup>[7-10]</sup>和淡水生物<sup>[11]</sup>等中。而海洋和淡水中微塑料的一个重要来源是陆地塑料的使用<sup>[12]</sup>。据报道,土壤可能比海洋接收更多的塑料垃圾<sup>[13]</sup>。已有研究表明,微塑料经过长期的风化、老化过程,比表面积逐步增大,疏水性增强,在土壤盐度、有机质和 pH 等多种因素影响下,与土壤中的重金属和有机污染物发生相互作用,引起土壤的物理化学性质的改变<sup>[14]</sup>。此外,微塑料在被土壤中的动物摄食后沿着土壤食物链传递,进而影响各营养级的土壤动物<sup>[15]</sup>。因此,对土壤中微塑料污染方面的研究迫在眉睫。

目前有部分研究证明了滨海潮滩土壤<sup>[16]</sup>、瑞士洪泛区土壤<sup>[17]</sup>、西南地区土壤<sup>[18]</sup>和滨海盐场土壤<sup>[19]</sup>等均存在微塑料的污染,而流域土壤中的微塑料很可能随着大风、降雨等冲蚀进入河流中,最终汇入海洋。目前对流域土壤中微塑料污染的认识仍存在很大的空白。因此,本文以大辽河为研究对象,选取附近 8 个土壤样品,进行了微塑料的丰度与分布研究,以期更好地了解大辽河附近土壤中微塑料的污染状况,为我国流域土壤中微塑料的评估和治理提供科

学数据。

## 1 材料与方法 (Materials and methods)

### 1.1 研究区域概况

大辽河地处辽河下游冲积平原,系指浑河、太子河合流后由三岔河至营口入海口的河段,河道全长 97 km,流域面积 1 962  $\text{km}^2$ 。两岸土质为壤土和亚粘土沉积,地势平坦,河道蜿蜒曲折多变,属弯曲形河道。整个大辽河的流向是向西南,由三岔河经下坎子、石佛、赏军台、田庄台、水源至荣兴农场附近,流向折向东南,经鸭岛进入营口市,由营口市流入渤海辽东湾。土壤采自大辽河附近,采样点分布如图 1 所示,采样时间为 2018 年 9 月。

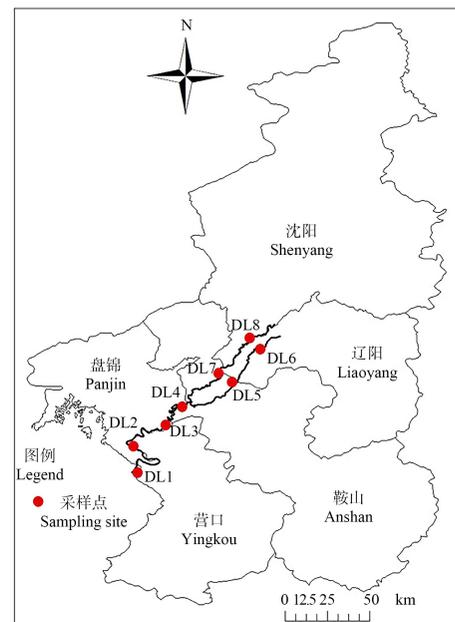


图 1 研究区域概况

Fig. 1 Overview of the study area

## 1.2 实验材料与方法

### 1.2.1 实验试剂与仪器

实验试剂包括  $\text{ZnCl}_2$  (分析纯, 购自天津福晨化学试剂有限公司)、30%  $\text{H}_2\text{O}_2$  (分析纯, 购自天津市风船化学试剂科技有限公司)、超纯水(实验室自制, 用前过滤)。

实验仪器包括 Magellan-MobleMapper 6 手持 GPS 导航仪(美国麦哲伦导航定位公司)、FA2204 电子天平(上海力辰仪器科技有限公司, 中国)、OLYMPUS SZ61 体式显微镜(Olympus Corporation, 日本)、DH-101 电热鼓风干燥箱(天津市中环实验电炉有限公司, 中国)、LC-DMS-H 双显恒温磁力搅拌器(上海力辰仪器科技有限公司, 中国)、DB-2EFS 石墨电热板(上海邦西仪器科技有限公司, 中国)、标准不锈钢筛(5 mm 和 2 mm)。

### 1.2.2 实验方法

#### (1) 样品采集

随机选择若干个 50 cm×50 cm 正方形采样点, 采样点的位置分别由 GPS 定位器确定, 采集表面约 5 cm 厚的土壤, 去除大型石头、树枝等杂质(>5 cm), 铝箔包好, 装入聚乙烯(PE)自封袋, 做好标记后带回实验室, 放置于 4 °C 的冰箱内, 直至分析。

#### (2) 样品处理

微塑料通常具有相对较低的密度(0.9 ~ 2.3  $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ )<sup>[20]</sup>。对于具有高密度(2.6 ~ 2.7  $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ )<sup>[21]</sup>的土壤, 微塑料的提取常采用密度浮选法。饱和 NaCl (1.2  $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ )、 $\text{ZnCl}_2$  (1.5 ~ 1.7  $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ )、NaI (1.6 ~ 1.8  $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ )、 $\text{CaCl}_2$  (1.5  $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) 和聚钨酸钠(SPT)常作为水体、沉积物、土壤中浮选微塑料的溶液<sup>[20,22-23]</sup>, 特别是 NaCl 和  $\text{CaCl}_2$ , 因为它们的成本低且没有潜在的污染<sup>[24]</sup>。也有研究采用甲醇和二氯甲烷溶液有效提取了土壤中的微塑料, 并可在高温下蒸发至干燥后进行称重<sup>[25]</sup>。然而, 这些萃取方法可能会高估微塑料的浓度, 并导致土壤有机质在 180 °C 时溶解<sup>[26]</sup>。Zhang 等<sup>[27]</sup>用去离子水重复超声浮选, 并用加热法去除微塑料样品中的杂质, 从不同类型的土壤中成功分离提取出了聚乙烯(polyethylene, PE)、聚丙烯(polypropylene, PP), 微塑料的回收率接近 90%。Mani 等<sup>[28]</sup>用蓖麻油结合双氧水消解法, 从土壤和沉积物中分离出 PP、聚苯乙烯(polystyrene, PS)、聚对苯二甲酸乙二醇酯(polyethylene terephthalate glycol, PET-G)、聚甲基丙烯酸甲酯(polymethyl methacrylate, PMMA)微塑料, 并将该方法应用于莱茵河样

品。余构彬等<sup>[29]</sup>用 0.4  $\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$  高锰酸钾与 1:3 硫酸酸度等量混合, 常温静置氧化 24 h, 使得甘蔗地土壤有机质的去除率达到 90.90%, 并结合饱和 NaCl 溶液浮选法, 使得微塑料的检出率达到 74.50%。

本研究选择较为常用的  $\text{ZnCl}_2$  ( $\rho=1.5 \sim 1.7 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) 溶液作为密度浮选液, 对采集的土壤样品进行微塑料的提取分离。具体步骤如下。每份土壤样品混匀, 取 300 g 于 60 °C 的恒温鼓风干燥箱中烘干。将干燥后的土壤混匀取 150 g, 过 5 mm 和 2 mm 的不锈钢筛<sup>[30]</sup>, 去除大型石头、树枝等杂质, 将过筛样品分为三等份。实验前将  $\text{ZnCl}_2$  溶液( $\rho=1.5 \sim 1.7 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) 通过直径 47 mm、孔径 0.45  $\mu\text{m}$  的混合纤维素酯膜(MF-Millipore TM Membrane Filter)过滤。将 50 g 过筛土壤(干重计)样品( $n=3$ )置于 500 mL 玻璃烧杯中, 加入 150 mL  $\text{ZnCl}_2$  溶液, 于恒温磁力搅拌器上持续搅拌 30 min, 静置过夜。固液分层后, 将上清液用真空抽滤装置进行抽滤, 滤膜采用直径 47 mm、孔径 5  $\mu\text{m}$  的纤维素滤膜(Whatman AE 98)。用少量去离子水多次冲洗滤器内壁, 冲洗液一并过滤。将载有可疑微塑料的滤膜用不锈钢镊子转移至玻璃培养皿中, 待消解。重复上述密度浮选操作 3 次( $\text{ZnCl}_2$  溶液重复利用), 以期将上清液漂浮的物质全部收集至滤膜上。

将滤膜上的物质全部转移至 200 mL 玻璃烧杯中, 用少量超纯水冲洗滤膜, 冲洗液转移至上述烧杯中。本研究中浮选得到的漂浮物中还含有一些其他的残留杂质, 这与其他研究相似<sup>[20]</sup>。因此, 本研究采用双氧水消解法去除这些杂质<sup>[31]</sup>。向上述装有可疑微塑料的烧杯中加入 100 mL 30% 双氧水, 用铝箔密封, 在石墨电加热板上于 60 °C 下消解样品中残留的有机物 3 d, 将烧杯中消解液再次真空抽滤, 完成过滤前, 多次反复使用超纯水淋洗滤器内壁, 使目标物全部富集至滤膜上。用无齿不锈钢镊子将滤膜取下转移至 60 mm 洁净的玻璃培养皿中, 室温干燥, 待分析。

#### (3) 微塑料的定性与定量

用无齿不锈钢镊子和解剖针在体式显微镜下挑拣, 将挑出的可疑微塑料置于混合纤维素网格滤膜(Whatman WME WHGR ST 47 mm 0.45  $\mu\text{m}$  ME 25) 上, 并做好标记。按颜色和形貌特征分类, 记录在电子表格中。再将样品单层平铺拍照, 以最长一边计, 测量可疑微塑料的尺寸(图 2)。傅立叶显微红外光谱仪(Perkin Elmer Spotlight 400)工作条件: 采用透

射/反射模式, MCT 检测器, 波数范围  $4\ 000 \sim 750\ \text{cm}^{-1}$ , 分辨率  $4.00\ \text{cm}^{-1}$ , 扫描次数 16 次, 光栅大小与累加次数随样品大小变化。采用显微红外光谱 ( $\mu\text{-FTIR}$ ) 的透射模式对所有粒径在  $0 \sim 500\ \mu\text{m}$  的可疑微塑料进行测定; 采用傅立叶衰减全反射 (ATR-FTIR) 对所有粒径在  $500 \sim 5\ 000\ \mu\text{m}$  的颗粒进行聚合物成分的鉴定和官能团的表征。将图谱与购买的标准品谱库 (萨特勒谱库) 进行比对, 规定匹配度达 60% 及以上的谱图对应的样品为微塑料, 以此确定微塑料的成分。

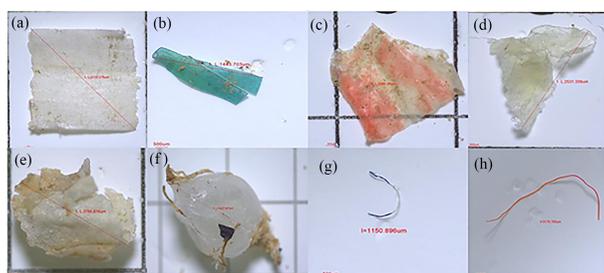


图 2 显微镜下的微塑料 (放大倍数为  $20\times$ )

注: (a), (b) 为碎片类; (c), (d) 为薄膜类; (e) 为泡沫类; (f) 为颗粒类; (g), (h) 为纤维类。

Fig. 2 Microplastics under stereo microscope (magnification times  $20\times$ )

Note: (a) and (b) are fragments; (c) and d are films; (e) is foam; (f) is particle; (g), (h) are fibers.

### 1.3 数据统计与处理

本实验结果采用平均值  $\pm$  标准偏差表示, 土壤中微塑料丰度以 “个  $\cdot\ \text{kg}^{-1}$ ” (干重) 为单位, 数据统计在 Microsoft Excell 2010 中完成, 绘图采用 Origin 9.0 软件进行。采用 IBM-SPSS 22.0 对采样区域微塑料丰度的差异进行显著性检验, 显著性水平设定为  $\alpha=0.05$ 。

## 2 结果 (Results)

### 2.1 大辽河土壤中微塑料的形状、粒径及组成

#### 2.1.1 大辽河土壤中微塑料的形状特征

根据微塑料的形状特征, 将微塑料分为薄膜、纤维、颗粒、泡沫和碎片 (图 2)。碎片类微塑料 (图 2(a), 2(b)) 边缘整齐、有一定厚度、形状多样, 有三角形、矩形和正方形等, 质地较硬。薄膜微塑料 (图 2(c), 2(d)) 质地较软而薄, 颜色多种多样, 边缘较不规则。泡沫类微塑料 (图 2(e)) 为轻质的、白色聚苯乙烯泡沫塑料。颗粒类 (图 2(f)) 微塑料为质地较硬的、规则的球

状或椭球状的塑料颗粒。纤维类微塑料 (图 2(g), 2(h)) 呈细而长的线状或极细的条状, 较软, 部分呈卷曲状或缠绕在一起。

由图 3 可知, 整体上看, 各形状的微塑料在微塑料总量中的占比由高到低顺序依次为: 薄膜 (57.36%)、碎片 (32.21%)、泡沫 (6.75%)、纤维 (2.15%) 和颗粒 (1.53%)。不同形状的微塑料在各点的检出情况不同。碎片类和薄膜类微塑料在各点土壤中均有检出。而 DL1 检出的纤维类和颗粒类微塑料是 8 个采样点中最多的, 在该点的微塑料数量中占比均为 15.79%, 分别占有纤维类和颗粒类微塑料总量的 42.86% 和 60.00%。DL8 未检测到纤维类微塑料, DL2 中薄膜类微塑料占该点微塑料的 91.84%, 占有薄膜类微塑料总量的 72.19%。DL3 中碎片类微塑料占该点微塑料的 91.38%, 占有碎片类微塑料总量的 50.48%。DL5 中泡沫类微塑料占比最大 (45.95%), 占有泡沫类微塑料总量的 77.27%。

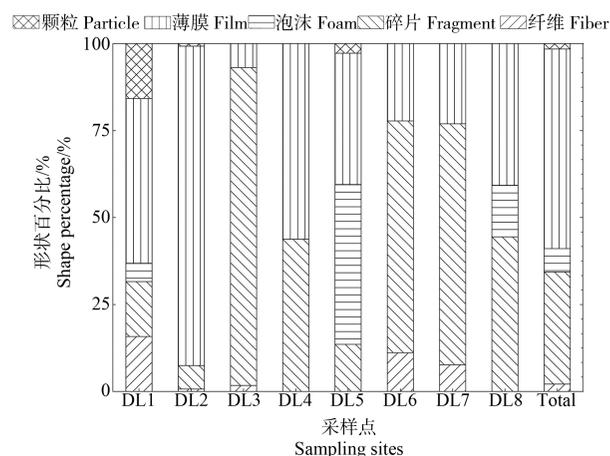


图 3 大辽河土壤中微塑料的形状

Fig. 3 Shape of microplastics in soil of Daliao River

#### 2.1.2 大辽河土壤中微塑料的粒径特征

将所检出的塑料粒径分为  $0 \sim 100\ \mu\text{m}$ 、 $100 \sim 500\ \mu\text{m}$ 、 $500 \sim 1\ 000\ \mu\text{m}$ 、 $1\ 000 \sim 2\ 000\ \mu\text{m}$ 、 $2\ 000 \sim 5\ 000\ \mu\text{m}$ 、 $>5\ 000\ \mu\text{m}$  共 6 个等级。如图 4 所示, 经分析统计, 8 个土壤样品中各粒径范围内的塑料碎片在所有塑料总量中占比最高的为  $500 \sim 1\ 000\ \mu\text{m}$  (41.10%), 其次为  $1\ 000 \sim 2\ 000\ \mu\text{m}$  (26.38%)、 $100 \sim 500\ \mu\text{m}$  (19.33%)、 $2\ 000 \sim 5\ 000\ \mu\text{m}$  (11.66%)、 $0 \sim 100\ \mu\text{m}$  (0.92%) 及  $5\ 000\ \mu\text{m}$  以上 (0.61%)。<math>1\ 000\ \mu\text{m}</math> 的微塑料占微塑料总量的 61.35%。其中,  $500 \sim 1\ 000\ \mu\text{m}$  的微塑料占 67.00%, 其次是  $100 \sim 500$

$\mu\text{m}$ , 占 31.50%,  $0 \sim 100 \mu\text{m}$  的微塑料占比最小, 为 1.50%。各点不同粒径微塑料的分布存在显著差异 ( $P=0.00$ )。DL1、DL6 和 DL7 土壤微塑料粒径以  $1\ 000 \sim 2\ 000 \mu\text{m}$  为主, 占比范围为 46.15% ~ 57.89%。DL2、DL3、DL4、DL5 和 DL8 以  $500 \sim 1\ 000 \mu\text{m}$  为主, 占比范围为 37.04% ~ 72.97%。在本研究中所有粒径为  $0 \sim 100 \mu\text{m}$  的微塑料仅在 DL2、DL3 中有分布。

### 2.1.3 大辽河土壤中微塑料的颜色特征

将检测出的微塑料大致分为白色、蓝色、黄色、绿色、红色、透明、黑色及彩色等类型。其中含量最多的为蓝色(43.87%)、其次为白色(32.82%)、绿色(11.04%)、黄色(6.13%)、彩色(3.07%)、透明(1.53%)、红色(0.92%)和黑色(0.61%)(图 5)。不同颜色的微塑料在各采样点的占比情况不同。除 DL2 以蓝色为主, DL3 以绿色为主外, 2/3 的土壤样品中白色微塑料占比均最大, 占比变化范围为 33.33% ~ 83.78%。其中, DL5 中白色微塑料在该点微塑料中占比最大, 为 83.78%, DL6 中白色微塑料占比为 33.33%。此外, DL1 中仅观察到白色、黄色和黑色的微塑料。DL2 仅观察到白色、蓝色和绿色微塑料。DL3 除透明和黑色微塑料未观察到以外, 其余颜色均有观察到。DL4 白色微塑料占比最大, 为 50%, 其次为透明, 占 31.25%。DL5 中蓝色和黄色占比相同, 均为 8.11%。DL6 中白色和绿色微塑料占比相同, 均为 33.33%。DL7 中白色和黄色微塑料占比相同, 均为 38.46%。蓝色、红色和绿色微塑料占比相同, 均为 7.69%。DL8 中白色微塑料占 74.07%, 其次为黄色(18.52%)、彩色(7.41%)。

### 2.1.4 大辽河土壤中微塑料的组成成分

对大辽河各采样点的微塑料进行红外光谱分析, 按匹配度为 60%, 确定了微塑料的组成成分。挑出 384 个颗粒, 其中微塑料颗粒共 326 个, 即 FT-IR 鉴定后假阳性的颗粒所占比例为 15.10%。各聚合物类型(共 20 种)的微塑料中英文名称、英文缩写及在微塑料的总量中所占比例列于表 1。由表 1 可知, 大辽河土壤中微塑料的主要类型为聚乙烯(PE)、聚丙烯(PP)和聚苯乙烯(PS)。为便于统计分析, 将聚 11-溴代十一烷丙烯酸酯(PBA)、聚(N-甲基丙烯酰胺)(PMAA)、聚 4-甲基己内酰胺(PMCL)、聚丁二炔二酯(PALE)、聚 11-溴代十一烷甲基丙烯酸酯(PBMA)、聚(乙烯/4-甲基-1-戊烯)(PE/PMP)、聚十八烯(PODE)和聚十八烷基异氰酸酯(PODC)归于“其他”

类型的聚合物中(图 6)。

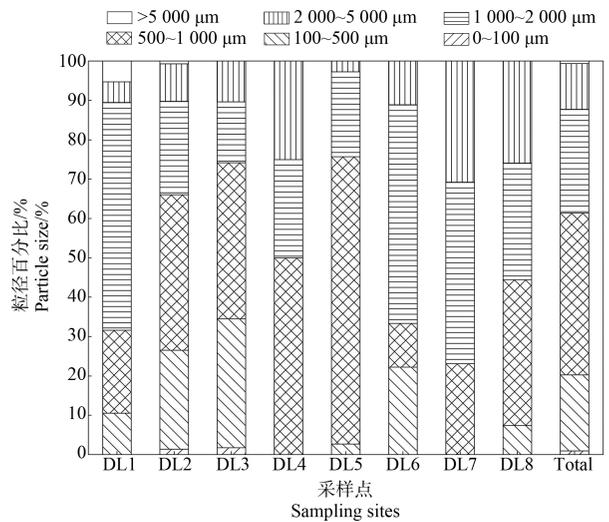


图 4 大辽河土壤中塑料碎片的粒径分布

Fig. 4 Particle size distribution of debris plastics in soil of Daliao River

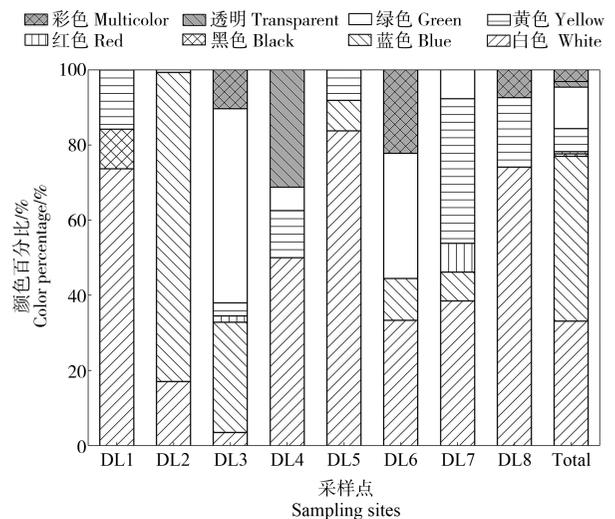


图 5 大辽河土壤中微塑料的颜色

Fig. 5 Color of microplastics in soil of Daliao River

由表 1 和图 6 可知, 不同聚合物类型的微塑料在微塑料总量中所占比例不同。所有 PE 占 50%, PP 占 24.23%, PS 占 7.67%, PA 占 2.15%, POA 占 3.07%, RY 占 3.25%, PODC 占 3.37%, 其他微塑料占比  $< 2.00\%$ 。各采样点不同种类微塑料所占比例也不同。DL2 中的 PE 在微塑料总量中占比最大, 为 87.76%。DL3 中 PP 微塑料在微塑料总量占比最大, 为 82.76%。DL1 中 PA 占比最大, 为 15.79%。DL5 中 PS 在微塑料总量中占比最大, 为

45.95%。但 PE 和 PP 类微塑料在 8 个土壤样品中均有检出,占比变化范围分别为 5.17% ~ 87.76% 和 2.70% ~ 82.76%。土壤中典型微塑料样品及对应微

塑料标准品的红外光谱如图 7 所示。特别的,参考先前的研究将人造丝(Rayon)也归为微塑料的研究范畴<sup>[1,32-35]</sup>。

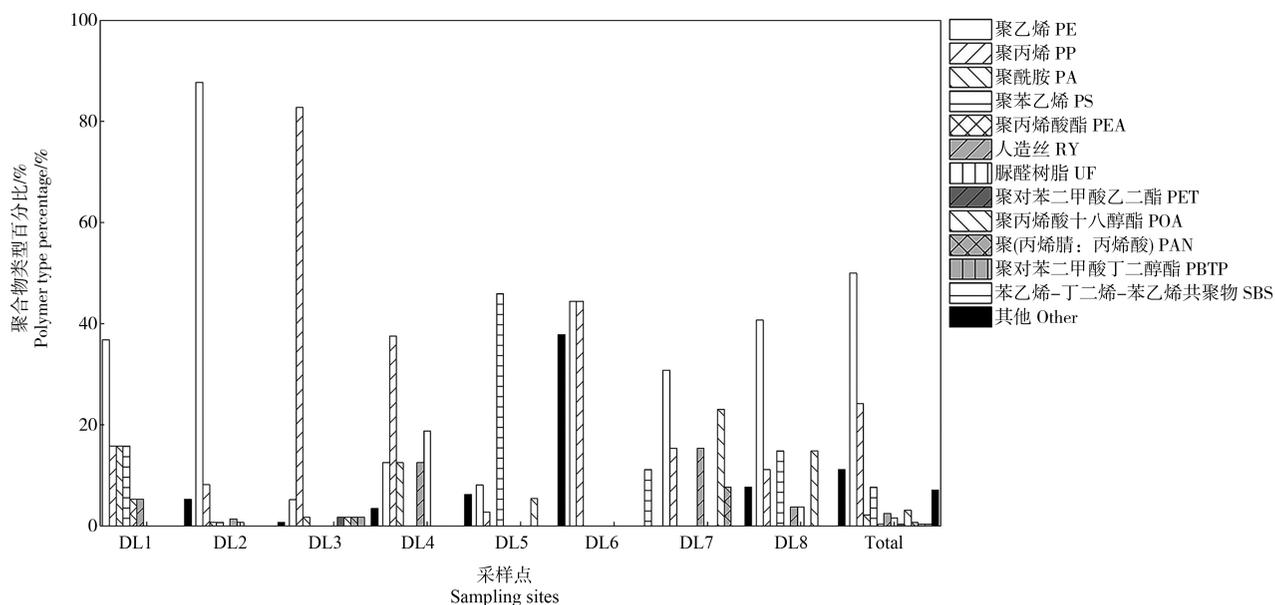


图 6 大辽河土壤中微塑料的聚合物类型

Fig. 6 Polymer types of microplastics in soil of Daliao River

表 1 大辽河土壤中微塑料聚合物类型

Table 1 The microplastic polymer types in soil of Daliao River

中文名称 Chinese names	英文名称 English names	英文缩写 Abbreviations	占比/% Proportions/%
聚乙烯	Polyethylene	PE	50
聚丙烯	Polypropylene	PP	24.233
聚对苯二甲酸乙二醇酯	Poly(ethylene terephthalate)	PET	0.307
聚苯乙烯	Poly(styrene)	PS	7.669
聚(丙烯酸十八醇酯)	Poly(octadecyl acrylate)	POA	3.068
聚酰胺	Polyamide	PA	2.147
人造丝	Rayon	RY	2.454
苯乙烯-丁二烯-苯乙烯嵌段共聚物	Styrene-Butadiene-Styrene	SBS	0.307
聚(丙烯腈/丙烯酸)	Polyacrylonitrile/acrylic acid	PAN	0.7
聚丙烯酸酯	Polyacrylate	PEA	0.307
聚对苯二甲酸丁二醇酯	Polybutylene diester	PBTP	0.307
聚 11-溴代十一烷丙烯酸酯	Poly(11-bromoundecyl acrylate)	PBA	1.227
聚(N-甲基丙烯酰胺)	Poly(N-methyl acrylamide)	PMAA	0.92
聚 4-甲基己内酰胺	Poly(4-methylcaprolactam)	PMCL	0.307
聚 11-溴代十一烷甲基丙烯酸酯	Poly(11-bromoundecyl methacrylate)	PBMA	0.307
聚十八烯	Poly(1-octadecene)	PODE	0.307
聚十八烷基异氰酸酯	Polyoctadecyl isocyanate	PODC	3.374
聚丁二炔二酯	Poly(diacetylene diester)	PALE	0.307
脲(甲)醛树脂	Urea-formaldehyde resin	UF	1.534
聚(乙烯/4-甲基-1-戊烯)	Poly(ethylene/4-methyl-1-pentene)	PE/PMP	0.307

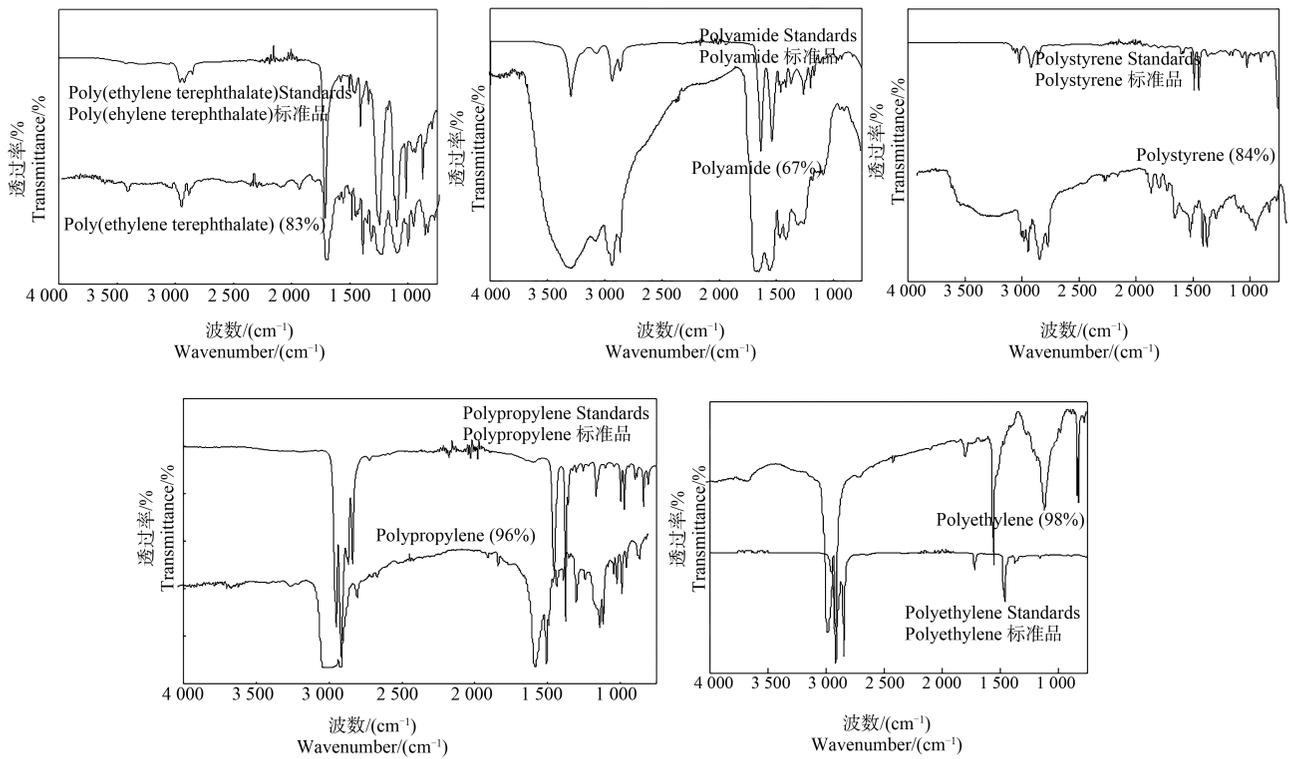


图7 典型微塑料样品的红外光谱图

Fig. 7 Infrared spectra of typical microplastics samples

2.2 大辽河土壤中微塑料的丰度及空间分布

如图8所示,在大辽河表层土壤中共检测出326个微塑料颗粒,微塑料在8个采样点的检出率为100%。本研究土壤样品中微塑料数量丰度介于(60±52.92)~(980.00±383.14)个·kg<sup>-1</sup>(干重)之间,平均丰度为(273.33±327.65)个·kg<sup>-1</sup>(干重)。各点丰度顺序由高到低依次为DL2>DL3>DL5>DL8>DL1>DL4>DL7>DL6。即大洼区、大石桥、鞍山海城市玉米地土壤中微塑料丰度高于辽中区耕地和大洼区大辽河入河口草地土壤。但盘山县、辽阳县柳壕镇玉米地土壤中微塑料丰度低于上述耕地和草地。因此,本研究中微塑料丰度与土壤利用方式有相关性,且丰度有显著性差异(P=0.001, <0.05)。将本研究中玉米地、草地、耕地的丰度进行比较,可以看出玉米地土壤微塑料平均丰度最大,其次是耕地、草地。该研究区域的上中游为浑河和太子河至河口汇入处之间的河段,包括DL5、DL6、DL7和DL8。下游为河口汇入处至入海口之间的河段,包括DL1、DL2、DL3和DL4。据此,大辽河流域土壤中微塑料的丰度顺序为:下游(406.33±216.21)个·kg<sup>-1</sup>>上中游(143.33±101.65)个·kg<sup>-1</sup>。

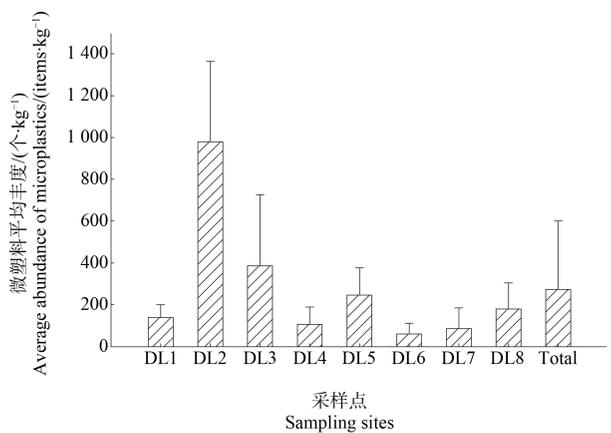


图8 大辽河土壤中微塑料的丰度

Fig. 8 Abundance of microplastics in soil of Daliao River

3 讨论 (Discussion)

3.1 研究区域土壤微塑料的形状、颜色、粒径及组成

目前,已有的研究表明,不同区域土壤中微塑料的形状有所差异。如渤海、黄海沿岸土壤中微塑料主要有泡沫、小球、碎片、薄片、纤维、薄膜和海绵等7种形态<sup>[16]</sup>;滨海潮滩土壤中微塑料的类型有颗粒、碎片、纤维和薄膜,其中颗粒类占总数的3/4<sup>[19]</sup>;

上海蔬菜地农田土壤中微塑料的形状主要为碎片、薄膜和纤维<sup>[36]</sup>。福建漳浦近岸海域表层土壤中微塑料的形状类型为碎片、纤维、颗粒、泡沫和薄膜<sup>[37]</sup>。本研究中颗粒类微塑料在各形状的微塑料中占比最小(1.53%),薄膜类微塑料占比最大(57.36%),碎片类占 32.21%,即碎片类和薄膜类微塑料占比之和超过 85%。本研究中纤维类仅占 2.15%,这一结果与渤海、黄海沿岸土壤中纤维类微塑料占 1.0%<sup>[16]</sup>的结果相近,也与上海稻鱼共养土壤<sup>[38]</sup>、中国西南滇池河岸森林缓冲带及 4 种不同种植面积土壤<sup>[8]</sup>、智利迈珀河附近土壤<sup>[39]</sup>的结果形成了对比,这些区域中纤维类微塑料百分比均超过 90%。存在这种差异的主要原因可能是微塑料的来源和材质不同<sup>[40]</sup>。例如,颗粒类占比较小的原因可能是颗粒状微塑料主要来自硬质塑料的分解,而硬质塑料分解需要较长时间<sup>[41]</sup>。

本研究中粒径<1 mm 的微塑料占微塑料总量的 61.35%。这一结果与渤海、黄海沿岸土壤粒径<1 mm 的微塑料(60%)<sup>[16]</sup>、上海蔬菜农田深层土壤粒径<1 mm 的微塑料(59.81%)<sup>[36]</sup>占比结果很相近,比滨海潮滩土壤粒径<1 mm 的微塑料(49.8%)<sup>[19]</sup>、上海菜地农田表层土壤粒径<1 mm 的微塑料(48.79%)<sup>[36]</sup>占比高,比墨西哥热带家庭花园土壤粒径<50  $\mu\text{m}$  的微塑料(93.7%)<sup>[42]</sup>、瑞士漫滩土壤粒径<500  $\mu\text{m}$  的微塑料(85%)<sup>[16]</sup>占比低。本研究中 500~1 000  $\mu\text{m}$  的微塑料占总数的 41.10%,是所有粒径范围内占比最大的区间。进一步的分析发现(图 9),粒径<1 mm 的微塑料中,500~1 000  $\mu\text{m}$  范围内的微塑料占比最大,为 67.00%。且 500~1 000  $\mu\text{m}$  范围内的薄膜(66.00%)、泡沫(5.50%)和碎片类(26.50%)微塑料占比的高低顺序与总体规律一致,而纤维类微塑料在粒径<1 mm 的微塑料中仅在 100~500  $\mu\text{m}$  内有分布。在所有纤维类微塑料中,微塑料粒径主要分布在 1 000~2 000  $\mu\text{m}$ (57.14%)。颗粒类微塑料在 100~500 和 500~1 000  $\mu\text{m}$  范围中的占比相同,而所有颗粒类微塑料的粒径主要集中在 1 000~2 000  $\mu\text{m}$  之间(60.00%)。Doyle 等<sup>[43]</sup>的研究结果中也未发现<1 mm 的纤维。在目前报道的研究中土壤微塑料的粒径大部分以<1 mm 为主<sup>[15-16,18,36,38-39,42]</sup>。在不同粒径的微塑料中,<1 mm 或微米级的微塑料更易进入生物体内<sup>[44-45]</sup>,这种尺寸范围的微塑料与许多海洋生物的食物尺寸相近,很可能被它们误食,进而对这些生物群落产生潜在的威胁<sup>[46]</sup>。因此未来对丰度较高、颗粒更细的<1 mm 的微塑料应给予更高的关注。

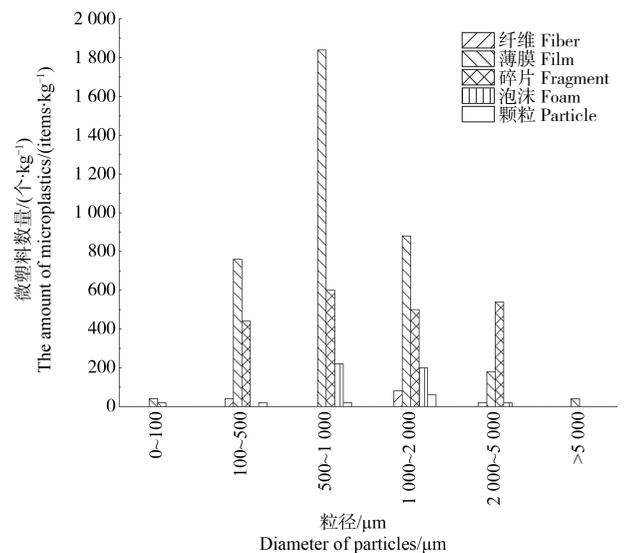


图 9 大辽河土壤微塑料的形状与粒径分布

Fig. 9 Shape and particle size distribution of microplastics in soil of Daliao River

当前的报道中土壤中微塑料的成分各不相同。如渤海、黄海沿岸土壤<sup>[16]</sup>中微塑料的主要成分为 PE、PP、PS、PE/PP 和聚氨酯(PEU)。墨西哥热带家庭花园土壤中微塑料的主要组成为 PE、PS<sup>[42]</sup>。Scheurer 和 Bigalke<sup>[17]</sup>的研究结果表明,瑞士漫滩土壤中微塑料的主要类型为 PA、聚碳酸酯(PC)、PE、PP、聚氯乙烯(PVC)和丁苯橡胶(SBR),其中最主要的是 PE。澳大利亚悉尼工业区土壤中微塑料主要类型为 PVC<sup>[25]</sup>。而本研究中微塑料的主要成分为 PE 和 PP。这与上海菜地农田土壤<sup>[36]</sup>、上海稻鱼共养土壤<sup>[38]</sup>的结果相同。由图 10 可知,本研究中微塑料的形状与聚合物类型有关。薄膜类微塑料的主要成分为 PE、PP 和 PA,其中 PE 占比最大,为 77.54%,其颜色以蓝色、白色为主,推测其来源主要是日常生活中的塑料制品如膜类食品包装袋及鱼饲料编织袋上的防水薄膜层<sup>[46]</sup>,此外,地膜在工程和农业上的应用也是潜在的来源<sup>[46-47]</sup>。碎片类微塑料的成分包括 PE、PP 和 POA,其中 PP 占 64.76%。其颜色以绿色、白色和蓝色为主,推测其来自化肥、水泥的塑料编织包装袋的破碎分解。颗粒类的组成有 PE、PP、PEA 和 PS,占比最大的为 PS(占微塑料总量的 0.61%)。泡沫类微塑料的成分只有 PS,颜色为白色,说明了这 2 种材质的微塑料有相同的来源,包括聚苯乙烯泡沫塑料和岸边的缓冲材料、以及海水养殖中使用的泡沫浮标及个人清洁护理品中的微珠等<sup>[48-50]</sup>。纤维类微塑料的主要成分包括 PP、PA、

PAN 和 SBS 等,其中 PA 占比最大,为 42.86%。其颜色以白色、黄色为主,它们可能来自于附近居民服装和纺织行业的织物洗涤后的污水排放<sup>[51]</sup>。此外,渔具、大气沉积和地表径流也是塑料纤维的潜在来源<sup>[52-53]</sup>。而福建漳浦近岸海域表层土壤<sup>[37]</sup>中泡沫塑料均为聚乙烯(PE),纤维塑料均为聚酯纤维(PES),碎片塑料多为聚丁烯(PB)。这一结果与本研究结果存在差异。

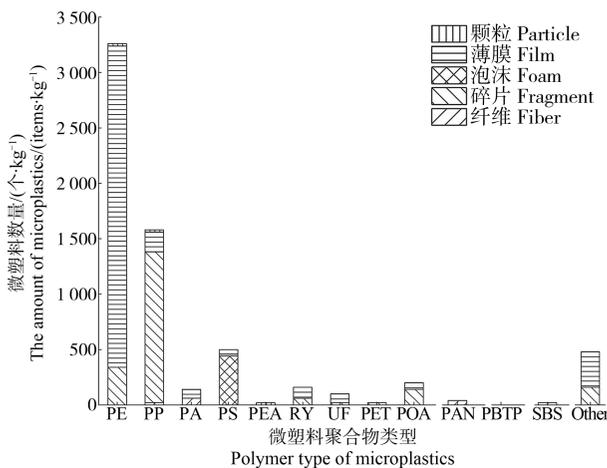


图 10 大辽河土壤中不同形状微塑料的聚合物类型

Fig. 10 Polymer types of microplastics in different shapes in soil of Daliao River

### 3.2 研究区域土壤微塑料的丰度及空间分布特征

ANOVA 统计分析可知,大辽河各采样点土壤中微塑料的丰度存在显著差异( $P=0.001, <0.05$ )。本研究大辽河土壤中微塑料的丰度为 $(60 \pm 52.92) \sim (980.00 \pm 383.14)$  个·kg<sup>-1</sup>(干重),与渤海、黄海沿岸土壤微塑料的丰度值 50 ~ 1 000 个·kg<sup>-1</sup>很相近<sup>[16]</sup>。低于中国西南滇池河岸森林缓冲带及 4 种不同种植面积土壤的 7 100 ~ 42 960 个·kg<sup>-1</sup><sup>[18]</sup>、智利迈珀河附近土壤的 18 000 ~ 41 000 个·kg<sup>-1</sup><sup>[39]</sup>、墨西哥热带家庭花园土壤的 $(900 \pm 1 900)$  个·kg<sup>-1</sup><sup>[42]</sup>,高于滨海潮滩土壤的 634 个·kg<sup>-1</sup><sup>[19]</sup>、上海菜地农田深层土壤的 $(62.50 \pm 12.9)$  个·kg<sup>-1</sup><sup>[36]</sup>、上海菜地农田表层土壤的 $(78 \pm 13)$  个·kg<sup>-1</sup><sup>[36]</sup>、上海稻鱼共养土壤 $(10.3 \pm 2.2)$  个·kg<sup>-1</sup><sup>[38]</sup>等。此外,澳大利亚悉尼工业区土壤<sup>[25]</sup>中微塑料丰度为 0.03% ~ 6.70% ( $300 \sim 67 500$  mg·kg<sup>-1</sup>)。Ramos 等<sup>[54]</sup>发现阿根廷土壤中 PE 膜残留量为 3 g·m<sup>2</sup>,平均尺寸为 28 cm<sup>2</sup>,占采样区域土壤表面积的 10%。Scheurer 和 Bigalke<sup>[17]</sup>的研究结果表明,瑞士洪泛区土壤中的微塑料污染较轻( $\leq 0.00555\%$ ,  $\leq$

593 个·kg<sup>-1</sup>)。国内有关土壤(主要为农田土壤)样品中微塑料含量较低( $\leq 320$  个·kg<sup>-1</sup>)<sup>[36,38]</sup>。由此可知,大辽河土壤微塑料的丰度为 $(273.33 \pm 327.65)$  个·kg<sup>-1</sup>处于中等偏低水平。

不同形状的微塑料在不同利用方式的土壤中的空间分布情况也不同。薄膜类微塑料在草地、玉米地和耕地中均有检出,主要分布在玉米地中(平均值 556.67 个·kg<sup>-1</sup>; 百分比 89.30%)。其中,大洼区玉米地薄膜类微塑料占 72.19%。颗粒类微塑料也主要分布在大洼区草地中(60 个·kg<sup>-1</sup>, 60%)。泡沫类微塑料主要在鞍山海城市的玉米地检出(340 个·kg<sup>-1</sup>, 77.27%),纤维类微塑料主要在大洼区草地检出(60 个·kg<sup>-1</sup>, 42.86%),此外,2/3 的玉米地也检测到了纤维状微塑料。碎片类微塑料在 3 种土壤类型中均有检出(2 100 个·kg<sup>-1</sup>),其中,大石桥玉米地碎片类微塑料最多(1 060 个·kg<sup>-1</sup>, 50.48%)。造成这一结果的原因可能是为了轮作、倒茬、提早上市以及提高玉米的商品价值,该区域大多采用盖拱膜或盖地膜方式种植,这些留在土壤中的塑料薄膜在物理、化学和生物效应的综合作用下,可以慢慢地破碎成更小的塑料<sup>[55-56]</sup>,进而导致微塑料污染。也可能是该区域的土壤有污泥改良和污水灌溉史<sup>[18]</sup>,包括衣物洗涤水、生活污水或个人护肤品中微珠的排放等,使得微塑料含量较高。Majewsky 等<sup>[31]</sup>也发现,废水中 PE 和 PP 的总浓度为 80 ~ 260 mg·m<sup>-3</sup>。这些塑料制品可能通过处理过的废水或自然洪水灌溉进入农田土壤。此外,大气沉积也可能是进入表层土壤的微塑料的一个重要来源。如对偏远的高山地区土壤中微塑料的检测结果表明,空气沉积可能是某些地区的主要来源<sup>[17]</sup>。土壤采样深度<sup>[36]</sup>、微塑料提取方法的不同等也可能是土壤微塑料丰度差异的原因。

综上所述,大辽河流域土壤中微塑料的检出率为 100%。薄膜和碎片类微塑料百分比分别为 57.36%、32.21%,是占比最大的 2 类微塑料。其次为泡沫(6.75%)、纤维(2.15%)和颗粒(1.53%)。该研究区域微塑料粒径基本遵循粒径越小,数量越多的规律。 $<1$  mm 的微塑料占微塑料总量的 61.35%。其中,500 ~ 1 000  $\mu$ m 的微塑料占 67.00%,其次是 100 ~ 500  $\mu$ m,为 31.50%,0 ~ 100  $\mu$ m 的微塑料占比最小,为 1.50%。 $>1$  mm 的微塑料中,1 ~ 2 mm 的微塑料占 68.25%,2 ~ 5 mm 的占 30.16%, $>5$  mm 的塑料碎片占 1.59%。大辽河流域土壤样品中共检测出 20 种微塑料,其主要类型有 PP、PE、PS、POA、

PA 和 RY 等。其中,PE 占 50%,PP 占 24.23%,是占比最大的 2 类微塑料。微塑料的形状类型与组成有关,薄膜类微塑料的主要成分为 PE,碎片类微塑料的主要成分为 PP。颗粒类、泡沫类微塑料的成分为 PS。纤维类微塑料的主要成分为 PA。各采样点微塑料丰度具有显著差异,其中,DL2(大洼区玉米地)微塑料丰度最大,为 $(980.00 \pm 383.14)$  个 $\cdot\text{kg}^{-1}$ (干重),DL6(辽阳县柳壕镇玉米地)丰度最小,为 $(60 \pm 52.92)$  个 $\cdot\text{kg}^{-1}$ (干重)。大辽河流域土壤中微塑料平均丰度为 $(273.33 \pm 327.65)$  个 $\cdot\text{kg}^{-1}$ (干重),与现有研究结果相比,大辽河流域土壤中微塑料污染状况处于中等偏低水平。

通讯作者简介:徐笠(1984—),男,博士,副研究员,主要研究方向为微塑料的污染分布及毒性效应。

#### 参考文献 (References):

- [1] Andrady A L. Microplastics in the marine environment [J]. Marine Pollution Bulletin, 2011, 62(8): 1596-1605
- [2] Shim W J, Thomposon R C. Microplastics in the ocean [J]. Archives of Environmental Contamination Toxicology, 2015, 69(3): 265-268
- [3] Joint Group of Experts on the Scientific Aspects of Marine Environmental Protection (GESAMP). Sources, fate and effects of microplastics in the marine environment: A global assessment [R]. London: International Maritime Organization, 2016
- [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]. Environmental Pollution, 2019, 245: 122-130
- [5] Zhang C, Zhou H, Cui Y, et al. Microplastics in offshore sediment in the Yellow Sea and East China Sea, China [J]. Environmental Pollution, 2019, 244: 827-833
- [6] Wen X, Du C, Xu P, et al. Microplastic pollution in surface sediments of urban water areas in Changsha, China: Abundance, composition, surface textures [J]. Marine Pollution Bulletin, 2018, 136: 414-423
- [7] Klein S, Worch E, Knepper T P. Occurrence and spatial distribution of microplastics in river shore sediments of the Rhine-Main Area in Germany [J]. Environmental Science & Technology, 2015, 49(10): 6070-6076
- [8] Ding L, Mao R F, Guo X, et al. Microplastics in surface waters and sediments of the Wei River, in the northwest of China [J]. Science of the Total Environment, 2019, 667(1): 427-434
- [9] Rodrigues M O, Abrantes N, Fernando J M, et al. Spatial and temporal distribution of micro-plastics in water and sediments of a freshwater system (Antuã River, Portugal) [J]. Science of the Total Environment, 2018, 633: 1549-1559
- [10] Zhao S, Zhu L, Li D. Microplastic in three urban estuaries, China [J]. Environmental Pollution, 2015, 206: 597-604
- [11] Sloommaekers B, Carteny C C, Belpaire C, et al. Microplastic contamination in gudgeons (*Gobio gobio*) from Flemish rivers (Belgium) [J]. Environmental Pollution, 2019, 244: 675-684
- [12] Alimi O S, Budarz J F, Hernandez L M, et al. Microplastics and nanoplastics in aquatic environments: Aggregation, deposition, and enhanced contaminant transport [J]. Environmental Science & Technology, 2018, 52(4): 1704-1724
- [13] Horton A A, Walton A, Spurgeon D J, et al. Microplastics in freshwater and terrestrial environments: Evaluating the current understanding to identify the knowledge gaps and future research priorities [J]. Science of the Total Environment, 2017, 586: 127-141
- [14] Bläsing M, Amelung W. Plastics in soil: Analytical methods and possible sources [J]. Science of the Total Environment, 2017, 612: 422-435
- [15] Rillig M C. Microplastic in terrestrial ecosystems and the soil? [J]. Environmental Science & Technology, 2012, 46(12): 6453-6454
- [16] Zhou Q, Zhang H, Fu C, et al. The distribution and morphology of microplastics in coastal soils adjacent to the Bohai Sea and the Yellow Sea [J]. Geoderma, 2018, 322: 201-208
- [17] Scheurer M, Bigalke M. Microplastics in Swiss floodplain soils [J]. Environmental Science & Technology, 2018, 52(6): 3591-3598
- [18] Zhang G S, Liu Y F. The distribution of microplastics in soil aggregate fractions in southwestern China [J]. Science of the Total Environment, 2018, 642: 12-20
- [19] Zhou Q, Zhang H B, Zhou Y, et al. Separation of microplastics from a coastal soil and their surface micro-sopic features [J]. Chinese Science Bulletin, 2016, 61: 1604-1611
- [20] Hidalgo-Ruz V, Gutow L, Thompson R C, et al. Microplastics in the marine environment: A review of the methods used for identification and quantification [J]. Environmental Science & Technology, 2012, 46(6): 3060-3075
- [21] Dekiff J H, Remy D, Klasmeier J, et al. Occurrence and

- spatial distribution of microplastics in sediments from Norderney [J]. *Environmental Pollution*, 2014, 186(96): 248-256
- [22] Imhof H K, Schmid J, Niessner R, et al. A novel, highly efficient method for the separation and quantification of plastic particles in sediments of aquatic environments [J]. *Limnology & Oceanography Methods*, 2012, 10(7): 524-537
- [23] Nuelle M T, Dekiff J H, Remy D, et al. A new analytical approach for monitoring microplastics in marine sediments [J]. *Environmental Pollution*, 2014, 184(1): 161-169
- [24] Claessens M, Van Cauwenberghe L, Vandegehuchte M B, et al. New techniques for the detection of microplastics in sediments and field collected organisms [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2013, 70(1-2): 227-233
- [25] Fuller S G, Gautam A. A procedure for measuring microplastics using pressurized fluid extraction [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(11): 5774-5780
- [26] Schnitzer M, Khan S U. *Soil Organic Matter* [M]. New York: Elsevier Science Publishing Company Inc., 1980: 97-98
- [27] Zhang S, Yang X, Gertsen H, et al. A simple method for the extraction and identification of light density microplastics from soil [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 616-617: 1056-1065
- [28] Mani T, Frehland S, Kalberer A, et al. Using castor oil to separate microplastics from four different environmental matrices [J]. *Analytical Methods*, 2019, 11 (13): 1788-1794
- [29] 余构彬, 陈明周, 陶平. 基于微塑料分离分析的甘蔗地土壤有机质去除方法研究[J]. *甘蔗糖业*, 2017(2): 66-70
- Yu G B, Chen M Z, Tao P. Study on the removal of organic matter for separation and analysis of microplastics in sugarcane soil [J]. *Sugarcane and Canesugar*, 2017(2): 66-70 (in Chinese)
- [30] He D F, Luo Y M, Lu S B, et al. Microplastics in soils: Analytical methods, pollution characteristics and ecological risks [J]. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 2018, 109: 163-172
- [31] Majewsky M, Bitter H, Eiche E, et al. Determination of microplastic polyethylene (PE) and polypropylene (PP) in environmental samples using thermal analysis (TGA-DSC) [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, 568: 507-511
- [32] Hu L, Chernick M, Hinton D E, et al. Microplastics in small waterbodies and tadpoles from Yangtze River Delta, China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, 52(15): 8885-8893
- [33] Mohamed Nor N H, Obbard J P. Microplastics in Singapore's coastal mangrove ecosystems [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2014, 79(1-2): 278-283
- [34] Peng G, Zhu B, Yang D, et al. Microplastics in sediments of the Changjiang Estuary, China [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 225: 283-290
- [35] 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
- [36] Liu M T, Lu S B, Song Y, et al. Microplastic and mesoplastic pollution in farmland soils in suburbs of Shanghai, China [J]. *Environmental Pollution*, 2018, 242: 855-862
- [37] 邓加聪, 陈晓凤, 张志鹏, 等. 福建漳浦近岸海域表层土壤中微塑料的赋存特征[J]. *福建师大福清分校学报*, 2019(2): 75-83
- Deng J C, Chen X F, Zhang Z P, et al. On the accumulation characteristics of microplastics from the surface soil offshore of Zhangpu in Fujian Province [J]. *Journal of Fuqing Branch of Fujian Normal University*, 2019(2): 75-83 (in Chinese)
- [38] Lv W, Zhou W, Lu S, et al. Microplastic pollution in rice-fish co-culture system: A report of three farm-land stations in Shanghai, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 652: 1209-1218
- [39] Corradini F, Meza P, Eguiluz R, et al. Evidence of microplastic accumulation in agricultural soils from sewage sludge disposal [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 671: 411-420
- [40] Wen X, Du C, Xu P, et al. Microplastic pollution in surface sediments of urban water areas in Changsha, China: Abundance, composition, surface textures [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2018, 136: 414-423
- [41] Marcus E, Lebreton L C M, Carson H S, et al. Plastic pollution in the world's oceans: More than 5 trillion plastic pieces weighing over 250,000 tons afloat at sea [J]. *PLoS ONE*, 2014, 9(12): e111913
- [42] Huerta E, Vega J M, Quej V K, et al. Field evidence for transfer of plastic debris along a terrestrial food chain [J]. *Scientific Reports*, 2017, 7(1): 14071
- [43] Doyle M J, Watson W, Bowlin N M, et al. Plastic particles in coastal pelagic ecosystems of the Northeast Pacific Ocean [J]. *Marine Environmental Research*, 2011, 71(1): 41-52
- [44] 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]. *Environmental Science & Technology*, 2012, 46(20): 11327-11335
- [45] Lusher A L, Mchugh M, Thompson R C. Occurrence of microplastics in the gastrointestinal tract of pelagic and demersal fish from the English Channel [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2013, 67(1-2): 94-99
- [46] Lusher A L, Hernandez-Milian G, O'Brien J, et al. Microplastic and macroplastic ingestion by a deep diving, oceanic cetacean: The true's beaked whale *Mesoplodon mirus* [J]. *Environmental Pollution*, 2015, 199: 185-191
- [47] Free C M, Jensen O P, Mason S A, et al. High-levels of microplastic pollution in a large, remote, mountain lake [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2014, 85(1): 156-163
- [48] Thompson R C. Lost at Sea: Where is all the plastic? [J]. *Science*, 2004, 304(5672): 838
- [49] Lee J, Hong S, Song Y K, et al. Relationships among the abundances of plastic debris in different size classes on beaches in South Korea [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2013, 77(1-2): 349-354
- [50] Lee J, Lee J S, Jang Y C, et al. Distribution and size relationships of plastic marine debris on beaches in South Korea [J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2015, 69(3): 288-298
- [51] Browne M A, Crump P, Niven S J, et al. Accumulation of microplastic on shorelines worldwide: Sources and sinks [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 45(21): 9175-9179
- [52] Alam F C, Sembiring E, Muntalif B S, et al. Microplastic distribution in surface water and sediment river around slum and industrial area (case study: Ciwalengke River, Majalaya District, Indonesia) [J]. *Chemosphere*, 2019, 224: 637-645
- [53] Chubarenko I P, Esiukova E E, Bagaev A V, et al. Three-dimensional distribution of anthropogenic microparticles in the body of sandy beaches [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 628-629: 1340-1351
- [54] Ramos L, Berenstein G, Hughes E A, et al. Polyethylene film incorporation into the horticultural soil of small peri-urban production units in Argentina [J]. *Science of the Total Environment*, 2015, 523: 74-81
- [55] Barnes D K A, Galgani F, Thompson R C, et al. Accumulation and fragmentation of plastic debris in global environments [J]. *Philosophical Transactions of the Royal Society B: Biological Sciences*, 2009, 364(1526): 1985-1998
- [56] Briassoulis D, Babou E, Hiskakis M, et al. Analysis of long-term degradation behaviour of polyethylene mulching films with pro-oxidants under real cultivation and soil burial conditions [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2015, 22(4): 2584-2598
- ◆