

环境介质中微塑料分离检测技术现状解析*

邵媛媛^{1#} 韩郭兰¹ 李松¹ 王洪波¹ 王宁¹ 陈高²

(1.山东建筑大学市政与环境工程学院,山东 济南 250101;2.山东省农业科学院,山东 济南 250000)

摘要 微塑料作为目前国内外广泛关注的一种新污染物,研究主要聚焦微塑料的来源、迁移、毒性等方面,然而由于其颗粒粒径小、污染载体负荷种类较多且在多介质中极易迁移,存在难以准确检测及定量的瓶颈问题,因此亟需准确高效、操作方便、普适性高的定性检测技术以及成本廉价的定量技术。通过梳理总结不同环境介质中微塑料的多种分离检测技术,分析对比不同技术的优缺点及适用条件,指出目前不同分离检测技术对不同环境介质微塑料检测结果存在较大差异性,缺乏标准化分析方法、标准样品库、高效的分离技术以及准确的定量技术。因此需要建立标准统一的分离检测方法,从而为客观评估微塑料污染及其潜在影响和风险提供可靠技术支持。

关键词 新污染物 微塑料 分离技术 定性检测 定量检测

DOI:10.15985/j.cnki.1001-3865.202311033

Current status analysis of microplastics separation and detection technology in environmental media SHAO Yuanyuan¹, HAN Guolan¹, LI Song¹, WANG Hongbo¹, WANG Ning¹, CHEN Gao². (1. School of Municipal and Environmental Engineering, Shandong Jianzhu University, Jinan Shandong 250101; 2. Shandong Academy of Agricultural Sciences, Jinan Shandong 250000)

Abstract: As a new type of pollutant, the microplastics have attracted widespread attention both domestically and internationally. Current research primarily focused on the sources, migration, toxicity, and other aspects of microplastics. However, detected and quantified microplastics accurately presents significant challenges due to their small particle size, diverse pollution carriers, and their ability to easily migrate in various media. Therefore, there is an urgent need for qualitative detection technologies that are accurate, efficient, easy to operate, and universally applicable, as well as low-cost quantitative technologies. This paper aimed to summarize various separation and detection technologies for microplastics in different environmental media. The advantages, disadvantages, and applicable conditions of different technologies were analyzed and compared. It was pointed out that there were significant differences in the detection results of microplastics in different environmental media by different separation and detection technologies at present, and there was a lack of standardized separation and analysis methods, standard sample libraries, efficient separation techniques, and accurate quantitative techniques. Therefore, it is necessary to establish a standardized and unified separation and detection methods to provide reliable technical support for the objective assessment of microplastic pollution and its potential impacts and risks.

Keywords: new pollutants; microplastics; separation technology; qualitative detection; quantitative detection

据统计,2021 年全球塑料制品用量为 4.6 亿 t,相比 20 年前翻番,与此同时,塑料垃圾数量也几乎翻番,超过 3.5 亿 t,其中不到 10% 得到回收利用。目前微塑料(直径小于 5 mm)污染问题越来越受到全球学者的关注。环境中的微塑料分为初生微塑料和次生微塑料,初生微塑料主要包括护肤品和化妆品中的“微珠”^[1],空气爆破和工业磨料所用的磨料介质等^[2],次生微塑料是指环境中的塑料制品在环境中老化,生成的微塑料颗粒,或在紫外线的照射下

降解产生的微小颗粒^[3]。微塑料不易降解,因此很容易积聚在环境中,对生态系统甚至人体造成危害。塑料垃圾回收利用率低及焚烧填埋处理是造成陆地及海洋微塑料污染的直接原因,据报道 20 世纪 50 年代以来,人类生产了大约 83 亿 t 塑料制品,其中 60% 被填埋、焚烧或直接倒入江河湖海。2022 年,研究者对 22 名健康志愿者的血液进行了塑料颗粒的测量,检测出血液中塑料颗粒可量化浓度总和的平均值为 1.6 $\mu\text{g}/\text{mL}$ ^[4],再次证实微塑料可随着食

第一作者:邵媛媛,女,1985 年生,博士,副教授,主要从事污染控制与生态修复研究。* 通信作者。

* 山东省重点研发计划(重大科技创新工程)项目(No.2022TZXD0044, No.2022CXGC021001)。

物链和食物网由环境介质进入人体。

我国对微塑料污染的认识和研究起步较晚,多数聚焦在其来源、迁移转化及毒性研究。2022年5月,国务院办公厅印发《新污染物治理行动方案》,将列为新污染物之一的微塑料污染治理纳入安排部署。2023年7月,生态环境部部长黄润秋指出,要全面落实新污染物摸底调查、环境风险评估等工作。然而由于微塑料在不同环境介质中的分布极为分散且不均匀,采集样本会受到很多干扰因素的影响,难以全面准确的定量,尤其是对已进入生物体内微塑料的类型和来源情况还缺乏深入研究。此外,微塑料可作为其他污染物的有效吸附载体,大大增加了复合污染,检测难度大大增加。因此分离检测技术水平对于摸清微塑料污染调查的准确性至关重要。

目前,微塑料分离检测技术仍处于发展阶段,但已经有一些方法被研究和应用。现有分离检测技术主要包括光谱技术、电子显微技术和光学显微技术,这些技术在不同环境和样本类型中有不同的适应性和局限性。笔者针对目前存在的环境微塑料难以准确定量的问题,梳理不同环境介质中的微塑料检测方法并加以比较和分析,探讨各种分离检测方法的优缺点,旨在提出具有普适性的不同介质微塑料检测技术集成,为微塑料污染的控制和管理提供有效的技术支持。

1 微塑料分离技术

微塑料并不是孤立存在于环境中的,它通常以复杂的形式存在于水体、土壤、聚合物等样品中。因此需要利用各种方法对样品进行处理,以获得微塑料颗粒的可靠数据。目前分离方法主要有密度分离法、淘析法、油提法和消解法等。由于不同类型的微塑料具有不同的物理、化学性质和结构,因此需要针对不同的微塑料样品选择合适的分离方法。

1.1 密度分离法

密度分离法是基于微塑料颗粒与样品的密度差异,通过离心和浮选等步骤来分离出不同密度的微塑料。该方法适用范围广,是微塑料分离用的最多的方法之一,它可以用于分离土壤^[5-6]、淡水沉积物^{[7]384,[8]}中的微塑料。

密度分离过程中浮选液的选择取决于微塑料的密度大小,微塑料的密度大多在 $0.8\sim 1.5\text{ g/cm}^3$,常用的浮选液有饱和NaCl(1.2 g/cm^3)^{[9]163,[10-11]}、NaI(1.8 g/cm^3)^{[9]163,[12],[13]228}、ZnCl₂(1.6 g/cm^3)^[14-16]、KI(3.1 g/cm^3)^[17]、二水钨酸钠($\text{Na}_2\text{WO}_4\cdot 2\text{H}_2\text{O}$,

1.4 g/cm^3)^[18]、聚钨酸钠($3\text{Na}_2\text{WO}_4\cdot 9\text{WO}_3\cdot \text{H}_2\text{O}$, 1.4 g/cm^3)^{[7]385,[19]}等溶液。其中,饱和NaCl溶液廉价易得,且对环境无污染,是微塑料分离最常用的浮选液。使用ZnCl₂作为浮选液,微塑料分离效果显著,但是长期使用ZnCl₂会对水环境造成污染。NaI和聚钨酸钠价格昂贵,分析成本过高,只在少数研究中使用,因此亟需研究一种经济、操作简单、无污染的密度分离提取方法。

微塑料密度分离法可以分离出不同密度的微塑料颗粒,适用于不同种类、不同尺寸的微塑料颗粒的分离和计量。但是,该方法需要专业的设备和技术,且分离效率有一定限制,无法处理海水中的所有微塑料颗粒。

1.2 过滤筛分法

过滤筛分法是利用滤膜或钢筛来分离微塑料的一种简单易操作的方法,滤膜和钢筛的孔径大小取决于微塑料颗粒的大小。它只适用于分离土壤中粒径较大的塑料颗粒,目前微塑料研究中很少采用过滤筛分法。滤膜孔径比钢筛孔径小,更有利于分离小尺寸的塑料颗粒。DU等^[20]将过滤器与真空泵联用,选取 $5\text{ }\mu\text{m}$ 滤膜,对冲洗过食品容器的水样进行抽滤提取微塑料,研究结果表明,每个容器有 $3\sim 29$ 个颗粒,聚苯乙烯(PS)占 77% ,根据人们点外卖的次数估计,这些人每周可能会通过外卖盒摄入 $12\sim 203$ 个微塑料颗粒。微塑料的分离效果还与滤膜的材质有关,LI等^[21]分别用石英($2.2\text{ }\mu\text{m}$)、玻璃纤维($1.6\text{ }\mu\text{m}$)、尼龙($20\text{ }\mu\text{m}$)和聚四氟乙烯($2\text{ }\mu\text{m}$)滤膜对样品进行过滤,结果显示,石英和玻璃纤维滤膜能够被去离子水冲洗掉纤维,干扰后续结果,聚四氟乙烯的疏水表面性质让其在水中的过滤难度更大,因此选取尼龙滤膜用于微塑料过滤。

1.3 淘析法

微塑料淘析法是一种通过密度差异来分离不同密度颗粒的方法,通常是密度分离与洗脱浮选装置联用,将其与其他杂质物质分离出来,主要应用于分离沉积物中的微塑料。这种技术能对不同类型的微塑料产生 $93\%\sim 98\%$ 的高提取效率^{[13]231}。需要注意的是,在操作过程中要小心,避免产生空气泡和剧烈振荡,否则会影响分离效果。使用的容器和工具也要干净卫生,以避免产生干扰物质。

1.4 油提法

微塑料油提法是一种通过将样品与有机溶剂接触,使微塑料从样品中分离出来的方法。该方法利

用微塑料的亲油特性,可以应用于土壤、海水、淡水等不同类型的样品中,为不基于密度的方法提供了一种替代方案。

相关研究人员使用油提法提取沉积物中的微塑料,平均回收率为 $96.10\% \pm 7.43\%$,且适用于不同类型的沉积物,远高于使用 NaI 溶液 ($83.30\% \pm 5.81\%$) 和 CaCl_2 溶液 ($69.00\% \pm 3.58\%$) 的基于密度的提取技术。此外,油提法成本低,还受益于低提取时间和低有机物量,与傅里叶变换红外光谱 (FTIR) 法兼容,提取后可以成功鉴定聚合物类型^{[9]165,[22-23]}。当选择使用有机溶剂时,应该评估其对环境和健康的影响,并在操作过程中采取相应的安全防护措施。此外,油提法只能分离出密度低的微塑料颗粒,因此在实际应用中还需要结合其他方法进行分析和检测。

1.5 消解法

消解法普遍适用于生物组织中微塑料提取,包括化学消解和酶消解。

1.5.1 化学消解法

化学消解目前存在的问题主要有消解液的种类少、提取效率低、消解方法可操作性低等。目前的化学消解法包括酸消解、碱消解、氧化剂消解。

酸消解法对生物体内微塑料的提取效率高,CLAESSENS 等^{[13]229-231} 将贻贝在 HNO_3 溶液中消解,并在 $5 \mu\text{m}$ 过滤器上过滤, $30 \mu\text{m}$ 的塑料颗粒提取率达到了 97.9% , $10 \mu\text{m}$ 的塑料颗粒提取率达到了 93.6% 。然而酸消解法对微塑料质量影响也很大^[24],不常用于微塑料的提取。

常用的化学消解液是质量分数为 10% 的 KOH 溶液。DEHAUT 等^[25] 使用 10% 的 KOH 溶液在 60°C 下对海鲜组织消化 24 h ,消解率达到了 $99.6\% \sim 99.8\%$,且对颗粒的完整性没有任何影响。

目前主要用到的氧化剂种类有 H_2O_2 、Fenton 试剂。研究结果显示,微塑料在 H_2O_2 溶液中进行消解也会改变其质量和大小,需严格控制反应温度在 60°C 以下,使消解效果更好^[26]。Fenton 试剂可以高效去除有机物,除粘胶机械性能外,对所有测试纤维的影响都很小,更适合保持纤维的完整性,是消解效果更好的氧化剂^[27]。

尽管酸消解和碱消解在降解有机物和鉴定微塑料方面具有积极的作用,但是消解液浓度过高,可能会降解或破坏对 pH 敏感的聚合物,从而对后续检测微塑料带来挑战^{[28]1024,[29]}。化学消解过程中的高温、酸碱等因素可能会对微塑料颗粒造成损伤,从而

影响后续的分析结果。因此,在选择消解方法时需要考虑保护微塑料颗粒的完整性。

1.5.2 酶消解法

酶消解法是代替化学消解法的最优方案,它对环境的危害小且不会破坏微塑料结构,分离效果更好^[30]。用于微塑料消解的酶大多是蛋白酶、淀粉酶、纤维素酶等,适用于消解含生物组织多的微塑料样品。COLE 等^[31] 使用优化后的蛋白酶 k 对富含浮游生物的海水样本进行消化,消解率达到了 97% 以上,显著高于同时进行的酸消解和碱消解方案。

然而目前的酶消解法往往难以实现针对性消解,而且选取正确的酶对于不同种类微塑料可能很困难,从而可能会影响分析结果的准确性。此外,微塑料颗粒往往具有不同的形状和大小,而这些因素可能会影响消解的效果;不同的样品来源、存储条件等因素也可能会影响消解效果(见表 1),因此需要对消解方法进行优化和验证。

2 微塑料检测技术

利用 VOSviewer 对 Web of Science 数据库近 20 年相关文献报道中对微塑料污染研究领域进行可视化分析(见图 1),结果表明微塑料对水生和陆生生物的生理和行为影响日益严重,已经渗入到了生态环境的各个角落,研究人员正在努力开发更加准确、高效的微塑料检测技术,包括改进样品处理方法、利用先进的仪器分析技术提高微塑料的检测灵敏度和准确性。

目前,微塑料的检测技术已经发展到比较成熟的阶段,包括 FTIR、拉曼光谱、荧光测定法、热裂解-气相色谱/质谱法(Py-GC/MS)、电感耦合等离子体-质谱法(ICP-MS)等多种分析方法。图 2 为通过分析知网和 Web of Science 近 5 年有关微塑料检测的文献所得的各种检测技术在应用研究中所占的比例。

2.1 FTIR

FTIR 是检测微塑料最常用的技术之一,可以对样品进行定性和定量分析。广泛用于分析粒径大于 $20 \mu\text{m}$ 的微塑料。它不仅不会改变微塑料原有的结构特征,还可以通过分析微塑料表面的氧化程度进一步探究微塑料的降解能力^[36]。FTIR 有 3 种模式:衰减全反射(ATR)模式、反射模式和透射模式。大颗粒的塑料样品使用 ATR-FTIR 进行检测,较小的塑料样品通过傅里叶变换显微红外光谱检测^[37]。其中傅里叶变换显微红外光谱法是显微镜和 FTIR

成,可以对微塑料进行无标记成像,以亚细胞精度定位生物组织内的微塑料聚合物^[41-42]。然而,具有荧光特性的非目标样品(如添加剂、环境颜料、其他化合物)产生的拉曼光谱会与微塑料的拉曼光谱重叠,干扰微塑料的识别鉴定^[43]。

2.3 荧光测定法

荧光测定法是一种常用的微塑料检测方法,它利用微塑料表面特有的性质,将荧光标记分子固定在微塑料表面,然后通过激光或者荧光光源进行激发,测定微塑料的荧光强度来判断其存在和数量。LUO 等^[44]用荧光检测技术实现了对吸附进小麦和莴苣根部的微塑料颗粒的定位分析。荧光测定法检测微塑料操作简单、灵敏度高、准确性高、快速且可量化。但是,荧光标记染料可能会影响微塑料的物化性质,导致检测结果的准确性受到影响;同时,荧光标记染料的选择和合成也需要一定的技术和经验,可能存在成本较高的问题。

2.4 Py-GC/MS

Py-GC/MS 技术针对高分子聚合物,通过高温裂解方式,将高分子聚合物裂解为碎片,高温下可挥发的小分子,导入 GC/MS 仪器中,通过获得的热解图与原有数据库或文献数据作比较,识别聚合物的指示化合物,进而鉴定识别塑料聚合物的类型。通过选定的指示化合物在质谱图中相应的峰值面积,建立标准曲线,对微塑料进行量化^[45-46]。

Py-GC/MS 技术通过浓度量化微塑料和纳米塑料,不受颗粒大小、形状的限制,但通常需要比光谱方法更大的颗粒质量。通过这种方法,可以同时评估添加剂,如果样品足够大,它也可以识别纳米塑料颗粒的聚合物组成^[47]。该技术通常用于确定环境样品中微塑料的组成和浓度,如果结合适当的预处理方法(如 H₂O₂ 消解),可以成为一种有前景的识别和定量微塑料的技术,以最大限度地减少其他有机杂质的可能干扰。TER HALLE 等^[48]使用原

位动态光散射(DLS)对海水胶体进行浓缩和表征,并通过 Py-GC/MS 确定了化学指纹图谱,证明了海水胶体组分中纳米塑料的存在。但是该方法只适用于几种特定的微塑料,且难以区分微塑料与天然粒子,不适合进行大规模塑料检测分析^[49],因为不同的微塑料聚合物可能会产生出相同的热解产物,所以它可能也会对微塑料的类型进行误判。

2.5 ICP-MS

ICP-MS 是一种将 ICP 技术和 MS 技术结合起来的高灵敏度、高分辨率的分析方法,主要用于元素测量和同位素分析。

由于微塑料尺寸较小,而且通常存在于复杂的环境样品中,传统的检测方法往往受到限制。BOLEA FERNANDEZ 等^[50]首次使用 ICP-MS 通过监测其碳含量(¹³C⁺) 在单事件模式下操作检测出了 PS 微球的综合强度分布,通过比较分别依靠监测¹³C⁺ 和¹⁶⁵Ho⁺ 检测到的 2.5 μm 镧系元素掺杂的 PS 微球的数量,研究了以这种方式确定的基于数量的浓度值的准确性。这些结果证明了根据质量浓度表征微塑料(球形)的可能性。在微塑料检测领域,ICP-MS 技术已成为一种重要的分析手段。但是该技术需要昂贵的设备,而且 ICP-MS 只能分析有限的元素,这限制了对微塑料中所有元素的检测。在实际应用中,需要根据具体情况综合考虑这些因素。

综上,目前微塑料的定性检测技术已相对成熟,然而这些定性检测技术需要和其他技术联用才能实现定量检测,但是仍然无法实现对微塑料进行准确且可靠的低水平定量,且在实际应用过程中仍存在着一些挑战和难点,如样品制备、数据分析等方面需要更加细致和完善(见表 2)。因此,在未来的研究中,需要进一步推进微塑料的检测技术,并在环境保护和污染治理中更好地利用微塑料检测结果。

2.6 微塑料分离检测技术应用实例

表 2 常用微塑料检测技术比较

Table 2 Comparison of commonly used microplastic testing techniques

检测技术	优点	缺点	检测对象	文献示例
FTIR	不会改变微塑料原有结构特性,可量化	每种模式下获得的光谱不同	粒径 ≥ 20 μm 的微粒	[38]
拉曼光谱	灵敏度高,光谱范围广,可以分析不同透明粒子,可量化	易受荧光干扰	粒径 ≥ 1 μm 的微粒	[7], [40]
荧光测定法	操作简单、灵敏度高、准确性高、快速且可量化	容易影响微塑料物化性质、成本高		[44]
Py-GC/MS	不受颗粒大小、形状的限制,可量化	难以区分微塑料颗粒与天然粒子,仪器复杂,成本高	特定种类微塑料	[48]
ICP-MS	灵敏度高、分辨率高、多元素分析、可量化	成本高、样品前处理要求苛刻,精度有限	粒径 ≥ 0.8 μm 的微粒	[50], [51]

表3 微塑料分离检测实例研究
Table 3 Example study on separation and detection of microplastics

样品	分离方法	检测方法	结果分析	参考文献
吕根岛海滩沉积物	淘析法	荧光测定法	回收率:80%(PET)、72%(PVC) 微塑料平均丰度:88.10个/kg	[52]
安大略湖近岸、支流、 海滩沉积物	密度分离(聚钨酸钠)	目视统计法、 拉曼光谱	微塑料丰度:近岸,980个/kg;支流,610个/kg;海滩, 140个/kg 类型:31%PE、10%PS、4%聚氨酯、3%PP、3%PVC、 3%聚苯乙烯磺酸盐	[7]
上海洪泛平原土壤、 水稻土、黄棕壤、农田 土壤	密度分离(NaBr溶 液)	FTIR	微塑料丰度:洪泛平原土壤为(256.7±62.2)个/kg,水 稻土为(190.0±31.2)个/kg,黄棕壤为(155.0±95.2) 个/kg,农田土壤为(136.6±41.7)个/kg 类型:40%PP、35.5%PE、15.6%丙烯酸、6.7%PET和 2.2%PA	[5]
温哥华海滩沉积物	油提法(菜籽油)	目视统计法、 FTIR	微塑料平均回收率:96.1%±7.43%可以回收已确认的 疏油纤维。	[22]
江西抚河地表水、地 下水	化学消解法(H ₂ O ₂ 消解)	Py-GC/MS	地表水主要纳米塑料:PP(37.3%~50.3%,0.117~ 0.389 μg/L)、PE(27.2%~30.8%,0.088~0.242 μg/L) 地下水主要纳米塑料:PP(34.3%~82.9%,0.014~ 0.108 μg/L)、PE(0~44.0%,0~0.070 μg/L)	[45]
旧金山湾的底栖沉积 物(反渗透水代表淡 水,盐水代表人造海 水)	磁性提取(铁纳米颗 粒)	荧光测定法	从海水中回收了92%的10~20 μm PE和PS,93% 的>1 mm塑料(PE、PET、PS、PP、PVC、聚氨酯),从淡 水和沉积物中分别回收了84%和78%的200 μm至1 mm的塑料(PE、PS、PP、PVC、聚氨酯)	[53]
东莞某公司PS微塑料		单颗粒 ICP-MS	PS微塑料在老化过程中表现出快速的尺寸下降趋势, 从5 μm缩小到1 μm,颗粒数浓度增加了3倍。	[51]

目前已有对微塑料进行定性及定量检测的研究,所用的分离方法和检测技术不尽相同,得出的结果也无法准确比较(见表3),亟需统一标准的分离检测技术,为改善微塑料污染问题提供依据。

3 结论与展望

国内外学者在微塑料的分离检测方面已经取得了较好的研究结果,一些方法经过了严格的验证和实践,已经被广泛接受,并应用于各种研究和监测项目,为了解和监测微塑料的分布和影响提供了重要的数据和工具。然而由于存在的问题也比较突出,建议如下:

(1) 建立标准化分离检测方法。由于微塑料来源广、性质不同,不同技术的分析结果存在差异性较大,因此标准化的分离检测方法对确保不同数据的可比性至关重要。急需梳理一套具有较强适用性的分离检测一体化技术体系。

(2) 建立样品标准库。尽管目前已经有多种微塑料分离检测技术得到了应用,但是由于样品来源、样品处理、检测方法等方面的差异,不同研究结果之间的比较和验证困难,使得微塑料分离检测得到的结果不统一,比对起来存在较大差异。急需建立基于其形貌、粒径大小、材质材料、分子结构等特征的典型微塑料标准样品库。

(3) 发展高效的微塑料提取技术。由于微塑料样本在环境介质中具有多介质迁移的特点,因此在处理和提取过程中具有极大的隐蔽性,回收率低导致微塑料在介质中的含量被严重低估。

(4) 发展准确廉价的微塑料定量技术。不同研究中使用了不同采样、分析和计数技术,使得结果之间的比较和可靠性受到限制,样品中存在的一些天然纤维或其他有机物也可能导致微塑料的误识别和计数不准,这些因素都会对微塑料的定量问题造成很大影响。且基于Py-GC/MS等的定量技术,成本过高,极大限制了对微塑料的环境评估。

为了有效解决微塑料污染问题,未来需要加大对微塑料分离检测技术的研究和探索,力求形成标准化、可重复、可验证、低成本的微塑料分离检测技术,这对于客观评估微塑料污染及其潜在影响和风险至关重要。

参考文献:

- [1] NAPPER I E, BAKIR A, ROWLAND S J, et al. Characterisation, quantity and sorptive properties of microplastics extracted from cosmetics[J]. Marine Pollution Bulletin, 2015, 99(1/2): 178-185.
- [2] SBK A, NSMS A, MFI B. Microplastic pollution in the environment: insights into emerging sources and potential threats[J]. Environmental Technology & Innovation, 2021, 23: 101790.
- [3] HAN C, SAHLE DEMESSIE E, VARUGHESE E, et al. Poly-

- propylene-MWCNT composite degradation, and release, detection and toxicity of MWCNTs during accelerated environmental aging[J]. *Environmental Science-Nano*, 2019, 6(6): 1876-1894.
- [4] LESLIE H A, VAN VELZEN M J M, BRANDSMA S H. Discovery and quantification of plastic particle pollution in human blood[J]. *Environment International*, 2022, 163: 107199.
- [5] LIU M T, SONG Y, LU S B. A method for extracting soil microplastics through circulation of sodium bromide solutions[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 691: 341-347.
- [6] 林婧, 李振国, 余光辉. 密度分离法提取土壤中微塑料的优化[J]. *中国环境科学*, 2022, 42(7): 3285-3294.
- [7] BALLENT A, CORCORAN P L, MADDEN O. Sources and sinks of microplastics in Canadian Lake Ontario nearshore, tributary and beach sediments[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2016, 110(1).
- [8] 张耀丹, 李欣桐, 李永. 淡水环境沉积物中微塑料的密度分离方法研究[J]. *中国环境监测*, 2022, 38(2): 1-7.
- [9] NUELLE M T, DEKIFF J H, REMY D. A new analytical approach for monitoring microplastics in marine sediments[J]. *Environmental Pollution*, 2014, 184.
- [10] LOTS F A E, BEHRENS P, VIJVER M G. A large-scale investigation of microplastic contamination: abundance and characteristics of microplastics in European beach sediment[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2017, 123(1/2): 219-226.
- [11] ZHAO J M, RAN W, TENG J. Microplastic pollution in sediments from the Bohai Sea and the Yellow Sea, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 640: 637-645.
- [12] WANG J, WANG M X, RU S G. High levels of microplastic pollution in the sediments and benthic organisms of the South Yellow Sea, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 651: 1661-1669.
- [13] CLAESSENS M, VAN CAUWENBERGHE L, VANDEGEHUCHTE M B. New techniques for the detection of microplastics in sediments and field collected organisms[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2013, 70(1/2).
- [14] IMHOF H K, SCHMID J, NIESSNER R. A novel, highly efficient method for the separation and quantification of plastic particles in sediments of aquatic environments[J]. *Limnology and Oceanography-Methods*, 2012, 10: 524-537.
- [15] IMHOF H K, WIESHEU A C, ANGER P M. Variation in plastic abundance at different lake beach zones - a case study[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 613: 530-537.
- [16] HORTON A A, SVENDSEN C, WILLIAMS R J. Large microplastic particles in sediments of tributaries of the River Thames, UK - Abundance, sources and methods for effective quantification[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2017, 114(1): 218-226.
- [17] PHUONG N N, POIRIER L, LAGARDE F. Microplastic abundance and characteristics in French Atlantic coastal sediments using a new extraction method[J]. *Environmental Pollution*, 2018, 243: 228-237.
- [18] PAGTER E, FRIAS J, NASH R. Microplastics in Galway Bay: a comparison of sampling and separation methods[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2018, 135: 932-940.
- [19] CORCORAN P L, BIESINGER M C, GRIFI M. Plastics and beaches: a degrading relationship[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2009, 58(1): 80-84.
- [20] DU F N, CAI H W, ZHANG Q. Microplastics in take-out food containers[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, 399: 122969.
- [21] LI Q L, WU J T, ZHAO X P. Separation and identification of microplastics from soil and sewage sludge[J]. *Environmental Pollution*, 2019, 254: 113076.
- [22] CRICHTON E M, NOEL M, GIES E A. A novel, density-independent and FTIR-compatible approach for the rapid extraction of microplastics from aquatic sediments[J]. *Analytical Methods*, 2017, 9(9): 1419-1428.
- [23] STOLTE A, FORSTER S, GERDTS G. Microplastic concentrations in beach sediments along the German Baltic coast[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2015, 99(1/2): 216-229.
- [24] 王志超, 孟青, 李卫平, 等. 不同消解方法对微塑料质量及其表面特征的影响[J]. *环境工程学报*, 2020, 14(5): 1385-1393.
- [25] DEHAUT A, CASSONE A L, FRERE L. Microplastics in seafood: benchmark protocol for their extraction and characterization[J]. *Environmental Pollution*, 2016, 215: 223-233.
- [26] MUNNO K, HELM P A, JACKSON D A. Impacts of temperature and selected chemical digestion methods on microplastic particles[J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2018, 37(1): 91-98.
- [27] TREILLES R, CAYLA A, GASPERI J. Impacts of organic matter digestion protocols on synthetic, artificial and natural raw fibers[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 748: 141230.
- [28] PRIMPKE S, CHRISTIANSEN S H, COWGER W. Critical assessment of analytical methods for the harmonized and cost-efficient analysis of microplastics[J]. *Applied Spectroscopy*, 2020, 74(9).
- [29] COURTENE JONES W, QUINN B, MURPHY F. Optimisation of enzymatic digestion and validation of specimen preservation methods for the analysis of ingested microplastics[J]. *Analytical Methods*, 2017, 9(9): 1437-1445.
- [30] MAES T, JESSOP R, WELLNER N. A rapid-screening approach to detect and quantify microplastics based on fluorescent tagging with Nile Red[J]. *Scientific Reports*, 2017, 7: 44501.
- [31] COLE M, WEBB H, LINDEQUE P K. Isolation of microplastics in biota-rich seawater samples and marine organisms[J]. *Scientific Reports*, 2014, 4: 4528.
- [32] PFEIFFER F, FISCHER E K. Various digestion protocols within microplastic sample processing-evaluating the resistance of different synthetic polymers and the efficiency of biogenic organic matter destruction[J]. *Frontiers in Environmental Science*, 2020, 8: 572424.
- [33] KARAMI A, GOLIESKARDI A, CHOO C K. A high-performance protocol for extraction of microplastics in fish[J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 578: 485-494.
- [34] DUAN J H, HAN J, ZHOU H C. Development of a digestion method for determining microplastic pollution in vegetal-rich clayey mangrove sediments[J]. *Science of the Total Environ-*

