

凌小芳, 谢天, 李铭, 吴宇. 环境及化工产品中的微塑料及其防治策略[J]. 应用与环境生物学报, 2021, 27 (4): 1110-1118

Ling XF, Xie T, Li M, Wu Y. Microplastics in the environment and chemical products and remediation strategies [J]. Chin J Appl Environ Biol, 2021, 27 (4): 1110-1118

环境及化工产品中的微塑料及其防治策略

凌小芳¹ 谢天^{2,3}✉ 李铭¹ 吴宇¹

¹成都产品质量检验研究院有限责任公司 成都 610199

²中国科学院成都生物研究所中国科学院环境与应用微生物重点实验室 成都 610041

³中国科学院成都生物研究所环境微生物四川省重点实验室 成都 610041

摘要 微塑料是直径< 5 mm的塑料物质, 是环境中广泛分布的持久性污染物, 对人类和其他生物的健康造成威胁. 综述微塑料的危害、污染现状及组成来源、在食品和化工产品中的赋存现状, 并着重探讨化工产品及环境中微塑料的防控. 微塑料对生物体具有直接危害, 同时环境中释放塑料添加剂, 并吸附环境中的其他污染物形成复合污染. 微塑料在水、大气及土壤中普遍存在, 在海洋、河流及大气中的迁移作用较强. 微塑料按照来源可分为初生微塑料和次生微塑料. 化工产品为初生微塑料的重要来源, 根据具体情况可以对其含有的微塑料采用禁用、使用替代物质、调整添加量等方式控制, 也可以通过产品替代控制使用. 根据环境中微塑料的污染情况, 可组合使用物理、化学和生物的治理技术, 重点使用包含酶、微生物或二者组合的生物修复技术对散布于水和土壤中的微塑料进行治理. 目前, 角质酶和*Ideonella sakaiensis* 201-F6菌可以有效降解聚酯类塑料, 而对于聚烯烃类及其他塑料, 现有微生物及酶的降解效率低, 降解机制尚不清楚. 检测方法、分布特征、使用情况及防控方案将是应对化工产品中微塑料问题的研究重点; 实现常温下有效降解芳香族聚酯类塑料, 发掘能有效降解聚烯烃类塑料的微生物和酶, 解析相关的分子机制, 将是生物修复微塑料的研究方向; 保证生物修复技术的安全性是其应用的前提. (图1 表2 参92)

关键词 微塑料; 化工产品; 环境污染; 防控策略; 生物修复

Microplastics in the environment and chemical products and remediation strategies

LING Xiaofang¹, XIE Tian^{2,3}✉, LI Ming¹ & WU Yu¹

¹ Chengdu Institute of Product Quality Inspection Co. Ltd., Chengdu 610199, China

² Key Laboratory of Environmental and Applied Microbiology of Chinese Academy of Sciences, Chengdu Institute of Biology, Chinese Academy of Sciences, Chengdu 610041, China

³ Key Laboratory of Environmental Microbiology of Sichuan Province, Chengdu Institute of Biology, Chinese Academy of Sciences, Chengdu 610041, China

Abstract Plastic particles (diameter < 5 mm) are defined as microplastics (MPs), which are persistent pollutants that are widely distributed in the environment, threatening the health of humans and other organisms. This study reviewed the hazards, pollution, constituents and sources, and occurrence of MPs in food and chemical products and emphasized their prevention and control in chemical products and the environment. In addition to direct harm to organisms, MPs can release plastic additives to the environment and absorb other pollutants in the environment, resulting in compound pollution. MPs are ubiquitous in the water, atmosphere, and soil. The migration of MPs in seas, rivers, and the atmosphere is intense. MPs can be divided into primary and secondary MPs according to their sources. Chemical products are the primary source of MPs. According to the specific situation, using MPs in chemical products can be controlled by forbidding, using substitutes, and adjusting the amount added. The use of MPs can also be controlled by product substitution. According to the pollution, physical, chemical, and biological techniques can be combined to deal with MP pollution in the environment. Bioremediation techniques, including enzymes, microorganisms, or a combination of the two, are preferred for the treatment of MPs dispersed in water and soil. Currently, cutinase and *Ideonella sakaiensis* 201-F6 can degrade polyester MPs effectively; however, microorganisms and enzymes cannot effectively degrade polyalkene and other plastics, and the degradation mechanisms are not fully understood. Finally, this study highlighted that the detection method, distribution characteristics, usage, and control plans of MPs in chemical products will become the research focus to manage the use of MPs in chemical products, degrading aryl polyester plastics at normal temperatures, and discovering new microorganisms and enzymes to effectively degrade polyalkene plastics. Moreover, elucidating

收稿日期 Received: 2020-08-21 接受日期 Accepted: 2020-10-12

四川省中央引导地方发展专项项目(2020ZYD024)资助 Supported by the Central Government Guiding Local Development Special Project of Sichuan Province (2020ZYD024)

✉通讯作者 Corresponding author (E-mail: xietian@cib.ac.cn)

the molecular mechanisms will be the main research focus for the biological remediation of MPs; assuring the safety of techniques is the foundation of biological remediation techniques.

Keywords microplastic; chemical product; environmental pollution; prevention and control strategy; bioremediation

塑料制品因轻便、稳定性强、制造成本低等特点广泛用于社会生产生活。人类自20世纪50年代开始大规模生产使用塑料,据统计估算,现在全球塑料年产量已近4亿吨^[1]。截至2015年,人类大概生产了83亿吨塑料,产生63亿吨塑料垃圾,其中79%被填埋或丢弃在环境中^[1]。大的塑料垃圾在自然风化、海水侵蚀、紫外照射及生物作用下变成小的塑料碎片(图1),最后变成肉眼难以发现或不可见的微小塑料碎片,即直径小于5 mm的微塑料(microplastics, MPs)。

2004年,英国科学家首次提出微塑料的概念^[2]。此后,众多科研人员投入到微塑料相关的研究中,微塑料污染引起全球重视。2015年第二届联合国环境大会上,微塑料污染被列入环境与生态科学领域的第二大科学问题。微塑料在环境中很难发生降解,半衰期长达数百年,是持久性污染物^[3]。本文就微塑料的危害、污染现状、组成来源、产品中微塑料的赋存情况及其防治策略等进行论述。其中,对化工产品中微塑料的使用情况予以特别关注,并对微塑料污染的生物修复方法进行详细总结和分析,促使人们关注微塑料的污染和开发有效的防治策略。

1 微塑料的危害

1.1 微塑料对生物体的直接危害

微塑料粒径小,易被水生生物吞食,从而在生物体内富集

并通过食物链传递^[4-5]。研究者常利用模式生物斑马鱼^[6]、浮游植物藻类^[7-8]及滤食的贝类^[9]等研究微塑料对海洋生物的危害。比如,微塑料可通过鱼鳃和嘴等进入斑马鱼体内,在成年斑马鱼的鳃、肠道、肌肉、肾脏及其他组织中赋存,导致斑马鱼肝脏出现肝糖原耗竭和脂肪空泡等^[6]。微塑料可吸附于藻类表面,阻碍其吸收光子和二氧化碳,降低光合作用效率,致使藻类生长受到抑制^[8]。海贝暴露于1-80 μm 的微塑料会出现血细胞增加、溶酶体稳定性降低以及炎症反应^[9]。被吞食的微塑料还会堵塞生物的消化道,减小生物进食量,减弱其生长和繁殖能力,最终可破坏生态系统^[10]。人类也可能因为摄入含有微塑料的水^[11]或鱼、贝等海产品^[4-5]致使体内蓄积微塑料。此外,研究人员通过人体呼吸模型研究得知,空气中的微塑料可以通过呼吸进入人体^[12]。目前虽然没有直接研究证明微塑料通过饮食进入人体会带来什么危害,但是却有研究通过人体大脑和上皮细胞的体外实验证明微塑料对人细胞有毒害作用^[13]。基于微塑料对其他生物的危害,推测微塑料也会对人类的健康造成威胁。

在研究土壤中微塑料的危害时,研究主要集中在利用模式生物蚯蚓和白符跳虫(*Folsomia candida*)研究微塑料对生物的危害^[14-17]或生物降解塑料的过程^[18]。蚯蚓摄入微塑料可引起肠道损伤,影响进食与排泄,导致成活率下降^[17]。相比对海洋生物的危害,有关微塑料对土壤生物危害的研究起步较晚,也较薄弱。今后,微塑料如何影响土壤结构和性能、植物

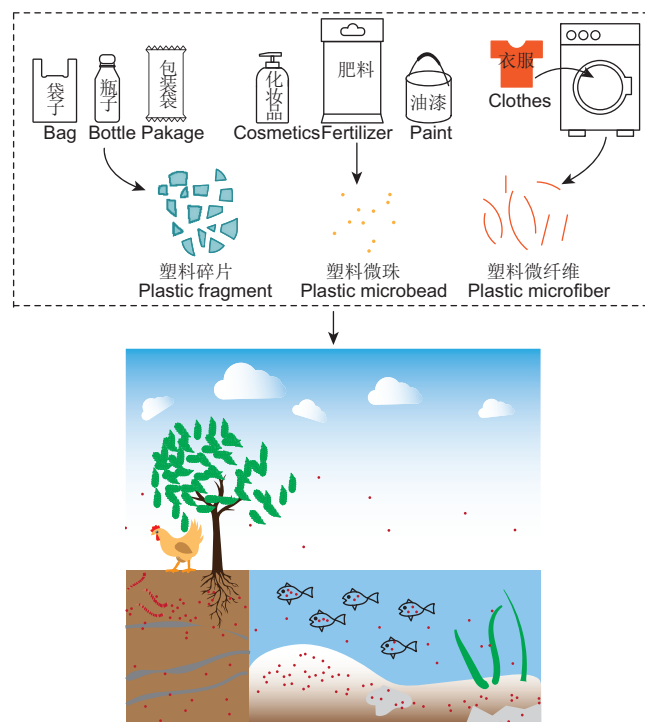


图1 微塑料的来源及在环境中的分布示意图。微塑料按来源分为初生微塑料(化妆品、肥料和油漆涂料等中添加的塑料微珠等以及合成纤维衣服洗涤过程中脱落的塑料纤维)和次生微塑料(丢弃在环境中的大塑料分解为塑料碎片),在土壤、海洋以及大气中都检测到微塑料的污染。图中的红色圆球为微塑料。

Fig. 1 Sources and distribution of microplastics in the environment. Microplastics are categorized as primary microplastics (including plastic microbeads added into the products of cosmetics, fertilizers, paint, etc. and microfibers released from synthetic cloth by washing) and secondary microplastics (mainly resulting from breakdown of larger plastic items into plastic fragment). Microplastics pollution has been detected in soil, ocean and atmosphere. Red spheres in the figure indicate microplastics.

根系生长环境及土壤生态系统将成为研究重点^[19]。

此外,近年还发现,纳米微塑料(nanoplastics)(目前还没有统一定义,不同学者认为其直径小于1 000 nm或100 nm不等)可以穿过斑马鱼的胚胎绒毛膜,进入发育中的胚胎,分布于斑马鱼各个组织^[20]。带正电的纳米微塑料可以吸附于细胞膜表面,通过内吞进入细胞内部^[21],虽然纳米微塑料的具体毒害作用还有待进一步研究,但其可以直接进入细胞内部,对生物体的健康构成极大威胁,应引起格外关注^[22]。

1.2 微塑料自身分解出污染物

为满足不同的使用需求,塑料的生产过程中会加入增塑剂、阻燃剂、抗氧剂、热稳定剂等塑料添加剂。而塑料添加剂和塑料聚合分子结合力较弱或不结合,随着时间的推移及塑料的碎化、裂解,塑料添加剂会从塑料中释放出来^[23-24]。塑料添加剂大多具有毒性物质,如双酚A(bisphenol A, BPA)、邻苯二甲酸酯(phthalic acid esters, PAEs)、有机锡、多溴联苯醚(poly brominated diphenyl ethers, PBDEs)、重金属、壬基酚(nonyl phenol, NP)等^[23-25],释放入环境会对环境中生物体及生态系统造成极大影响^[25]。不同研究表明,全球范围内的海洋及沉积物中均检测出塑料添加剂^[25],陆地土壤环境有大量的增塑剂^[26],我国学者发现增塑剂在使用塑料薄膜及塑料大棚附近的土壤含量较高,证明增塑剂含量和塑料制品的使用有很大相关性^[27]。

1.3 微塑料吸附环境中污染物形成复合污染效应

微塑料粒径小、比表面积大、亲脂性强,且在水中处于流动状态,极易通过表面吸附作用从周围环境吸附重金属、多环芳烃(polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs)、多氯联苯(polychlorinated biphenyls, PCBs)、药品及其他有机污染物^[23, 28]。Browne等研究发现,微塑料能够吸附壬基酚、菲、三氯生和四溴联苯醚并在有机体内解吸^[29]。不同岛屿沙滩收集的微塑料吸附了PAHs、PCBs和二氯二苯基三氯乙烷(dichlorodiphenyltrichloroethane, DDT)^[30]。Napper等研究发现,化妆品中提取的微塑料对菲和有机氯类杀虫剂DDT均有吸附作用,且对后者的吸附能力更强^[31]。表面粗糙的微塑料较表面光滑的微塑料有更大的比表面积,具有更强的吸附作用,更容易从海水中吸附持久性有机污染物。微塑料成为有机污染物的富集、迁移和扩散的载体。

微塑料释放塑料添加剂及其吸附污染物形成复合污染都是微塑料引起的间接危害,研究发现,微塑料释放塑料添加剂的影响因素有微塑料及添加剂的种类,添加剂的结合方式,环境的pH、环境温度及环境中的离子强度^[23]。这为不同场景下塑料添加剂使用的风险评估提供了思路。而微塑料吸附解析环境中其他污染物的影响因素包括污染物的亲脂性、微塑料的表面特征、污染物浓度等^[24]。目前关于复合污染物生物毒理效应的研究较薄弱,此研究将有助于复合污染物生态效应的阐释^[24]。而关于复合污染物在环境及生物体内迁移、转化的研究有助于复合污染处理方案的制定。

2 环境中微塑料的污染现状、组成及来源

2.1 微塑料在水域系统的污染

人类会向海洋和水域系统排放大量的塑料和含微塑料废水,形成微塑料污染(图1)。这其中,微塑料在海洋中的污染问题最早受到关注。2016年《中国环境报》指出,海洋中约有3.5万吨微塑料,占比超过塑料垃圾总数量的55%和质量的72%,是海洋中丰度最高的塑料污染,且微塑料含量增速较快,在过去40年间,北太平洋中部洋流中微塑料的浓

度升高了两个数量级(http://49.5.6.212/html/2016-05/19/content_44329.htm)。其中,海岸带是陆海交界带,人类活动产生的塑料垃圾在海岸带汇集^[32],并在近海输送^[33],海洋中的塑料垃圾在洋流、潮汐的作用下也会迁移汇聚在海岸带^[34-35]。因此,目前国际上微塑料污染的调研多集中在海岸带,如东北太平洋海岸^[36],地中海海岸地区^[37],印尼泗水北部沿海水域^[38],夏威夷Kamil海滩^[39],渤海、黄海海滩^[40],南海旅游海滩^[41]等。此外,北大西洋^[34]和太平洋表面^[42]以及深海^[43]也存在塑料碎片污染,而湖泊和河流等内陆水系也同样存在微塑料污染问题^[44]。由此可见,微塑料在水域的污染极其普遍。且由海洋及河流较强的流动性推测,其中微塑料的迁移作用较强。

2.2 微塑料在土壤中的污染

据估算,陆地中存在的微塑料丰度可能是海洋中的4-23倍^[44]。土壤中的微塑料(图1)主要通过农膜使用及废弃物循环利用等途径进入^[45]。但总体来看,国际上关于微塑料在土壤中污染情况的研究起步较晚,其原因可能为:微塑料污染问题起源于海域,后扩展至陆地水域,且相较于水域系统,土壤基质更为复杂,微塑料分离和检测的干扰更大,所以水域生态系统的研究模式不宜应用于陆地生态系统^[46]。但随着研究方法的不断更新和探索的逐步深入,关于土壤中微塑料污染情况的研究论文^[47]及综述类论文逐渐出现^[45]。例如,不同学者对不同地区土壤中微塑料的污染情况进行研究发现,在澳大利亚悉尼工业区、瑞士平原、墨西哥东南部家居环境以及中国的上海、云南等地的土壤中均检测到不同程度的微塑料污染^[19],由此不难发现,微塑料在土壤中的污染也很普遍。此外,土壤较水及大气流动性差,微塑料在土壤中的污染是否具有地域性,能够随地下水进行迁移的小粒径微塑料,尤其是纳米微塑料的迁移作用是否更强等问题还有待考证。

2.3 微塑料在大气中的污染

大气中的微塑料粒径和密度均较小,可在空气中飘浮较长时间,对人们健康造成极大困扰,且大气中的微塑料大多是纤维,尤其是纺织纤维,和人们日常的起居生活密切相关^[48]。Rachid Dris对空气中纺织纤维进行调研发现,室内和室外均存在飘浮在空气中的人造纤维,根据ISO/TR 11827:2012纺织品-成分测试-纤维识别》的界定,由石油化工产品制成的人造纤维是微塑料的一种^[49],这是较早对空气中微塑料进行的研究。我国学者对大气悬浮物和沉降物进行检测,均发现了微塑料的存在,通过微塑料的成分分析证明,空气中的微塑料是其海洋污染源之一^[50]。由此可知,微塑料随大气的环流向不同区域迁移作用较强,并可进入海洋系统。

需指出的是,目前关于微塑料对环境污染的研究大多针对单一环境体系,微塑料在整个环境有机体中的赋存、迁移转化及归趋将成为未来研究的重点,主要涉及不同环境中微塑料的检测方法、分布特征及来源解析等工作。其中,微塑料的检测方法为其他研究提供保障,微塑料的分布特征和来源解析为其在大环境中迁移转化及归趋提供研究基础。

2.4 微塑料的组成和来源

目前环境中检出的微塑料主要有聚乙烯(polyethylene, PE)、聚氯乙烯(polyvinyl chloride, PVC)、聚苯乙烯(polystyrene, PS)、聚丙烯(polypropylene, PP)、聚对苯二甲酸乙二醇酯(polyethylene terephthalate, PET)、聚酰胺(polyamide, PA)^[51]等。这些微塑料通过风和地表径流进行迁移,在海洋、淡水、陆地和大气环境中都可以检测到。

微塑料按来源可分为次生微塑料和初生微塑料^[52](图1)。次生微塑料指较大塑料进入环境后经碎裂和降解最终变成微塑料。初生微塑料是指塑料直接以小颗粒的形式进入环境。塑

料物质会作为成膜物质或者为了达到某种功能而添加到普通肥料、缓释肥料、油漆涂料以及化妆品、洗涤剂、日用护理品中^[51, 53]，这些化工产品进入环境后释放出微塑料，这些微塑料以及化学合成纤维洗涤过程中脱落的塑料纤维等均可定义为初生微塑料^[52]。通过产品使用进入环境的微塑料迁移至河流、湖泊及海洋，成为近年来微塑料海洋污染的来源之一^[51]。但目前微塑料污染来源工作的重点还集中于塑料制品的使用及少部分产品（如化妆品），而大部分化工产品中微塑料的使用问题还没有引起足够重视。

3 微塑料在产品中的赋存情况及存在的问题

微塑料在产品中的存在大概分为两种，一种是外源污染或者原材料带入，另一种是人为添加。微塑料在食品中的存在属于前者。不同国家的食盐、糖、饮用水、啤酒、蜂蜜、鸡肉、茶及海产品、沙丁鱼罐头等食品中均存在微塑料^[54]。其中饮用水中的微塑料值得关注，较新的研究表明：（1）粒径大于50 μm 的微塑料在水的净化处理中可以去除，不同前处理方式的去除率在25%-90%之间；（2）而粒径小于50 μm 的微塑料则很难去除^[55]。食品中微塑料的来源有：（1）原材料的污染，作为食品原料的海洋生物摄入海域中的微塑料，家禽家畜摄入含有微塑料的食物或水而导致其在体内富集^[56-57]，饮用水及饮料中的水源存在塑料污染，而后续的水处理未能将其去除^[55]；（2）外界环境的污染，如盐、糖等生产及保存过程中微塑料的附着^[54]；（3）外包装污染，针对所有包装食品，微塑料有可能从塑料包装袋中迁移至食品^[54]。需要指出的是，微塑料在堆肥产品^[45]、有机肥料中的存在也属于原材料带入或外源污染。

微塑料在衣物、复混肥料、缓释肥料、油漆涂料、化妆品、个人日常护理品及洗涤产品中则有人为添加的情况，此举通常为产品达到某种功能。在衣物的生产过程中，加入人造纤维（如俗称涤纶的PET、丙纶PP、锦纶PA、氨纶PU等）满足衣物弹性、耐磨性的要求；油漆涂料的生产过程中，添加聚氯乙烯、丙烯酸树脂等作为成膜物质；在复混肥料或者缓释肥料的生产中添加聚氨酯作为助剂^[58]；而将微塑料添加在磨砂膏、洁面乳、沐浴露、牙膏等产品中，则可能是为了产品达到清洁、祛皱、美白等功效^[59-60]。据保守估计，含有PE微塑料的液体肥皂的使用会导致人均每天消费2.4 mg PE微塑料^[61]。

目前，微塑料在化妆品、个人日常护理品及部分洗涤剂中的添加情况逐渐受到重视，相关法规政策相继出台，但对于衣物、油漆、涂料、普通复混肥料、缓释肥料、堆肥产品、有机肥等产品中微塑料赋存情况的研究较少，鉴于这些物品在社会活动中使用量大、使用普遍，微塑料在此类产品中的使用情况及相应的防控对策研究应及早提上日程。

4 微塑料污染的防控策略

4.1 源头控制方案

4.1.1 塑料制品使用的控制对策 减少非必要塑料制品的使用，或采用可降解塑料是目前较能得到国际认同的方案。2018年4月，英国首相表示将推动英国禁止所有一次性塑料产品。2018年7月，美国西雅图规定全面禁止餐饮从业者提供不可降解的塑料吸管及塑料刀叉，鼓励改用可重复使用的餐具或可堆肥塑料制品。同年，美国加州通过法案，禁止加州餐厅主动向顾客提供一次性塑料吸管。我国在2020年1月发布的

《关于进一步加强塑料污染治理的意见》规定，2020年底全国餐饮行业禁止使用不可降解的一次性塑料吸管。日本也在推动用可降解塑料来代替现有的塑料吸管。相应的研究表明可以用可降解塑料代替PE用于农业系统^[62]，此方案在美国取得较好的效果^[63]。在2020年第二十二届中国科协年会上，我国科研人员的可食性生物降解海藻产品保鲜膜发明授权专利引起了广泛关注，这种保鲜膜以褐藻胶为原料，此研究为解决白色污染提供了更多可能。此外，还可采用塑料制品回收利用减少塑料流入自然环境^[64]，回收方法包括将其物理热熔以后重新制备塑料制品、热分解为石油类物质或者水解为单体物质等^[65]。

4.1.2 化工产品中微塑料使用情况的应对策略及存在的问题

针对食品中外源污染的微塑料，其缓解有赖于对食品原材料、包装材料的严格把关及环境中微塑料的治理。以褐藻胶为原料的可食性海藻保鲜膜的出现为食品包装材料的发展提供了新的方向。而原材料带入微塑料终究是环境中微塑料的治理问题，本文对食品中微塑料污染防控不作进一步论述，而重点关注化工产品中人为添加的微塑料。

目前，许多国家逐渐开始禁止微塑料在部分产品中的使用，其中最多的是其在冲洗类化妆品、个人护理品等日用化工产品中的使用。本文统计了不同国家或组织对化妆品、日用护理品、洗涤剂、日用化工产品、油漆涂料中微塑料的使用制定的法规和政策（表1）。

除化妆品及相关个人护理品，少数国家禁止洗涤产品中使用微塑料，只有个别国家禁止黏合剂和胶黏剂产品中使用微塑料，没有国家对微塑料在衣物、普通复混肥料、油漆涂料等产品中的使用进行限制，这与微塑料在这些产品中发挥的重要作用有关。考虑微塑料的处理难度和目前科技及工艺的限制，也没有涉及堆肥、有机肥原材料及成品中微塑料的限制政策。但微塑料在这些产品中的赋存情况也应受到重视，针对微塑料在这些产品中的使用情况、检测方法、应对策略的研究不容忽视。

化工产品中的微塑料受到的关注较少，相关的研究尚不完善，根据目前的行业现状，对微塑料在化工产品中使用可以采纳以下应对策略：（1）日用化工产品种类多使用量大，目前的禁用政策主要集中于化妆品和相关的个人护理品，针对洗涤用品如洗衣粉、餐具洗涤剂、工业洗涤剂的禁用政策较少，此方面有待加强。（2）大量的衣物使用化学纤维制成，在洗涤过程中释放出塑料微纤维。对于这类微纤维污染，可以通过选用天然材料制成的衣物，给洗衣机加装过滤微纤维的装置，使用干洗清洁衣物等来减少化学纤维成分的衣物所造成的塑料微纤维污染^[66]。（3）油漆涂料覆于器物表面起到包膜保护作用，其生命周期是必须考虑的因素，完全禁止使用微塑料物质具有一定困难，采取的措施需根据使用需求而定。具体举措有：减少含难降解微塑料产品的使用，如减少PE类涂料的使用；利用工艺优化减少微塑料在产品中的添加比例；对生命周期要求不高的产品采用可降解微塑料替代难降解微塑料^[66]。（4）对于普通复混肥，采用逐渐减少，转而用水溶肥料代替的方案对微塑料的使用量进行控制是可行的。且肥料主要施用于土壤，对产品生命周期要求小，利用淀粉基水性聚氨酯肥料包膜材料等容易降解原料替代普通聚氨酯包膜材料的可行性较强^[58]。（5）针对由含有塑料或微塑料的秸秆、畜禽粪便等制作的堆肥，对原材料进行必要处理是控制其中微塑料的有效办法。

总而言之，解决方案可以概括为两类：一是原材料层面，即针对不同产品中使用微塑料物质的情况，可采用禁用、寻找

表1 化工产品中微塑料相关的法规和政策

Table1 Overview of regulations and policies regarding microplastics in chemical products

国家/组织 Country/organization	所涉产品 Products involved	法规和政策等 Regulations, policies etc.
联合国 The United Nations	个人护理品、化妆品 Personal care products and cosmetics	2015年, 联合国环境规划署倡议在个人护理品和化妆品中逐步淘汰并禁止使用微塑料。 In 2015, United Nations Environment Programme (UNEP) released a publication recommending a phase-out and ban of microplastics in personal care products and cosmetics.
美国 America	个人护理品、化妆品 personal care products and cosmetics	2014年6月, 美国伊利诺斯州率先立法禁止出售含有塑料微珠的化妆品。 In June 2014, Illinois State took the lead in enacting legislation to ban sales of cosmetics containing plastic microbeads. 2015年3月, 新泽西州通过法案, 禁止使用塑料微珠。 In March 2015, New Jersey State enacted law banning use of plastic microbeads. 2015年12月, 奥巴马总统签署法令: 禁止在美国销售和运输含塑料微珠的产品。 In December 2015, President Obama signed a bill: prohibit selling and distributing products containing plastic microbeads in USA.
加拿大 Canada	化妆品 cosmetics	2015年8月开始逐步淘汰塑料微珠。2017年6月立法全面禁止使用。 Plastic microbeads were phased out in cosmetics since August 2015. In June 2017, laws and regulations were established to prohibit use of them.
澳大利亚 Australia	化妆品、清洁产品 cosmetics and cleaning products	澳大利亚政府承诺, 如果在2018年7月前塑料微珠没有在化妆品和清洁产品中被自发淘汰将会立法禁止使用。 The Australian government promised a ban on plastic microbeads if they weren't voluntarily phased out from cosmetics and cleaning products by July 2018
奥地利、比利时、卢森堡、荷兰和瑞典 Austria, Belgium, Luxembourg, the Netherlands and Sweden	个人护理品 Personal care products	2015年1月, 荷兰、奥地利、卢森堡、比利时和瑞典发表联合声明禁止使用微塑料。 In January 2015, Austria, Belgium, Luxembourg, the Netherlands and Sweden issued a joint call to ban the use of microplastics in personal care products.
欧盟 European Union	化妆品、洗涤剂 Cosmetics, and detergents	2015年10月, 欧盟建议在2020年前在所有化妆品中禁止使用微塑料。 In October 2015, European Union proposed to ban use of microplastic in all cosmetics before 2020. 2017年6月, 欧盟修订了针对洗涤用品的生态标签的标准, 其中包含禁止在洗衣用洗涤用品中使用微塑料。 In June 2017, European Union revised ecolabel criteria for laundry detergents, in which banning use of microplastics in detergents was included.
英国 England	个人护理品 Personal care products	在2017年底前, 英国政府禁止在化妆品中使用塑料微珠。 Before the end of 2017, United Kingdom governments banned using plastic microbeads in cosmetics.
丹麦 Denmark	化妆品 Cosmetics	2016年, 丹麦发起打击丹麦境内塑料微珠的活动, 其中包含向欧盟请愿禁止在个人护理品中使用微塑料。 In 2016, Denmark launched 'Beat Microbead in Denmark', in which a national petition asking for an EU ban of microplastics in care products was included.
法国 France	冲洗类产品 Rinse-off products	2016年10月, 法国提出于2018年以前在冲洗类产品中禁止使用塑料微珠。 October 2016, France proposed to ban microbeads in rinse-off products before 2018.
瑞典 Sweden	冲洗类产品 Rinse-off products	2017年7月, 瑞典发布法规草案禁止在冲洗类产品中使用塑料微珠。 In July 2017, Sweden published a draft regulation to prohibit the use of plastic microbeads in rinse-off cosmetic products.
比利时 Belgium	化妆品、牙膏、清洁和保养产品、黏合剂和胶黏剂 Cosmetics, toothpaste, cleaning and maintenance products, adhesives, and adhesives	2017年10月, 向欧盟委员会通告全面禁止使用微塑料。 In October 2017, Belgium has informed the European Commission of a total ban on microbeads.
意大利 Italy	冲洗类化妆品、洗涤剂 Rinse-off cosmetics and detergents	2018年6月, 意大利提出在2020年1月前逐步淘汰在冲洗类化妆品和洗涤剂中使用微塑料。 In June 2018, Italy proposed to phase out plastic microbeads in rinse-off cosmetics and detergents by January 2020.
新西兰 New Zealand	冲洗类产品 Rinse-off products	2017年8月, 新西兰发布法规禁止销售和制造含有塑料微珠的冲洗类产品。 In August 2017, New Zealand enacted a regulation to ban sale and manufacture rinse-off products that contain plastic microbeads.
韩国 South Korea	化妆品 Cosmetics	韩国从2017年7月1日开始禁止在化妆品中使用塑料微珠。 South Korea banned use of plastic microbeads in cosmetics since July 1, 2017.
中国 China	日化用品 Daily chemical products	2019年10月, 中国发布规定: 含塑料微珠的日化用品, 到2020年12月31日禁止生产, 到2022年12月31日禁止销售。 In October 2019, China enacted a regulation: daily chemical products containing plastic microbeads would be banned to manufacture by December 31 2020 and banned to sale by December 31 2022.

表格中的微塑料包含微塑料、塑料微珠和塑料微粒等。

Microplastics in the table include microplastics, plastic beads, plastic particles, etc.

替代原料、优化配方减少微塑料的添加比例等方法; 二是产品层面, 即使用替代产品、优化产品使用结构, 进而推动产业结构的改变。

4.2 污染修复方案

4.2.1 不同环境中微塑料污染的修复方案 虽然政府通过各种方法从源头减少微塑料进入环境, 但环境中已经有大量

的微塑料, 它们造成的环境污染及生态破坏逐渐凸显, 寻求有效的治理方法是唯一可行的方案。针对不同环境和污染程度, 可以采用不同的修复方式以便获得理想的处理结果, 不同环境中微塑料的修复方案见表2。

其中, 利用生物降解, 特别是将有降解塑料能力的微生物投放到污染场地中进行原位修复, 是较有前景的微塑料污染

表2 不同环境中微塑料的修复方案

Table 2 The remediation plan of microplastics in different environments

环境 Environment	处理方案 Treatment	选择方案的原因或依据 Reasons for selection
海洋或河流沉积物 Marine or river sediments	密度分离 ^[67] 、沉淀气浮 ^[68] 方法将微塑料从沉积物中分离 Density separation ^[69] and precipitation air flotation ^[70] were used to separate microplastics from sediments	估计90%以上的微塑料存在于海洋的沉积物中 ^[68] It was estimated that more than 90% of microplastics were present in marine sediments ^[70]
淡水湖泊、河流沉积物 Sediments of freshwater lakes and river	参照海洋沉积物 Refer to marine sediment	参照海洋沉积物 Refer to marine sediment
饮用水或污水处理厂 Drinking water or sewage treatment plant	针对性膜反应器 ^[69] 、电芬顿法 ^[70] 去除水中大多数微塑料 ^[69] Removing most of microplastics ^[71] in water by targeted membrane reactor ^[71] and Electro-Fenton method ^[72]	设计优化水处理方法 Design and optimization of water treatment
陆地土壤、淡水及海水 Land soil, fresh water and seawater	生物处理 ^[66, 71-72] 或光催化方法 ^[73-76] 修复环境中散布的微塑料 ^[76-79] Bioremediation ^[73-75] or photocatalysis ^[76-79] for the remediation of dispersed microplastics in the environment	微塑料分布广泛不易富集, 常规水处理方式成本太高 The microplastics were widely distributed and difficult to be enriched, and the conventional methods for water treatment were costly

修复方式。

4.2.2 微塑料污染生物修复方案的研究及应用前景 塑料具有极高的稳定性, 自然环境中很难进行生物降解。塑料的可降解性主要由塑料的分子间连键、单体成分和晶态结构决定。总的来说, 以C—C键连接的聚烯烃类塑料(PE、PP、PS和PVC等)化学键键能较高^[66], 难进行生物降解; 以酯键(ester)或者氨基甲酸乙酯(urethane)连接的聚酯类塑料, 如PET和PLA或聚氨酯(polyurethane, PU)类塑料等可以被生物酶水解, 相对较易被生物利用。同时, 单体中有苯环的塑料比普通脂肪族塑料难降解, 比如由于苯环刚性较强, PET塑料的玻璃化转变温度(Tg)较高(80℃左右), 而PLA塑料的Tg值在40℃左右, 温度在Tg值以上时分子运动加剧^[77], 利于酶进入高分子化合物内与其结合, PET塑料需要在接近Tg值温度下才能有很好的降解效率, 所以自然界中只有较少的酶可以降解PET, 而PLA则可以在中温条件被酶降解或发生自发降解。

对于C—C键连接的聚烯烃类塑料, 迄今筛选到一些可以分解的细菌、真菌乃至昆虫。在1个月到几个月的时间内, 只有少量(小于10%)的聚烯烃塑料可以进行生物降解^[18, 78-83], 同时生物降解利用聚烯烃类塑料的机制研究较缺乏。研究人员在2015年发现面包虫可以在人工条件下以PS为底物^[84]。后续研究发现在16 d内, 面包虫可以将47.7%的PS矿化, 剩余的PS基本以粪便的形式排出^[80]。同时, 从面包虫中筛选到的微小杆菌YT2(*Exiguobacterium* sp. YT2)可以在体外培养条件下分解PS, 证明其在面包虫矿化PS中发挥重要作用。但YT2分解PS的效率(培养60 d达到7.2%降解率)远低于面包虫, 推断面包虫对PS的预处理以及体内肠道的环境等因素对YT2利用PS的效率有较大影响^[81]。学者尝试利用可降解含C-C键的天然多聚木质素的酶(漆酶和Mn过氧化物酶等), 结合高温、紫外等前处理方法降解聚烯烃类塑料, 结果发现虽然聚烯烃塑料的分子量有所降低, 但降解效率还是偏低^[78, 85-86]。总的来说, 目前可以降解高稳定性聚烯烃类塑料的生物或者酶的降解效率不是很高, 而通过多种生物、多种酶的联合作用可提高生物降解效率。此外, 生物降解聚烯烃类塑料的机制解析(比如面包虫和肠道微生物协同利用PE塑料的机制)将成为实现生物高效降解聚烯烃类微塑料的关键。

与聚烯烃类塑料相比, 以脂键或氨基甲酸乙酯连接的塑料较易进行生物降解^[66]。2019年, Gan Zhiqiang等人建立了一个塑料的微生物降解的在线数据库(Plastics Microbial Biodegradation Database, PMBD), 里面罗列了79种可以降解各种塑料的酶, 绝大部分是降解聚酯类塑料的酶。迄今, 发现可以水解聚酯类塑料酯键的酶包括酯

酶(carboxylesterases EC 3.1.1.1)、脂肪酶(lipases EC 3.1.1.3)和角质酶(cutinases EC 3.1.1.74)^[66]。但是在聚酯类塑料中, 含有苯环单元的PET塑料由于具有较高的Tg值而较难降解。现在发现, 只有来自嗜热双歧杆菌属(genera *Thermobifida*)的角质酶和来自艾德昂菌属*Ideonella sakaiensis*菌的PETase酶(EC 3.1.1.101)(有的科学家认为从结构、催化机制和催化序列保守性等方面出发, PETase应该属于一种角质酶^[77]), 可以有效水解PET塑料。具体如下:

2016年, 日本科学家从一个PET塑料回收工厂的土壤中分离到一个中温细菌*Ideonella sakaiensis* 201-F6可以完全矿化PET塑料, 该细菌通过附器(appendage)吸附在PET塑料表面, 可能通过这个结构释放PET降解酶PETase到PET塑料表面, 从而分解PET, 分解后的PET单体(单体对苯二甲酸乙二醇酯, MHET)在MHETase酶的作用下酯键断裂, 水解为单对苯二甲酸(TPA)和乙二醇(TG)单元, 最后TPA被运输到201-F6菌的体内完全分解代谢^[87]。在30℃下, 经过6周的时间, 201-F6菌可以完全分解代谢掉PET塑料薄膜。该工作表明通过向污染环境投入微生物的方法可以降解微塑料。其次, PET水解酶水解PET为单体, PET单体物质再被环境中其他的微生物利用代谢掉也是可行的一种生物修复模式。

在分离到*I. sakaiensis*的PETase之前, 科学家在2005年就发现嗜热单孢菌*Thermobifida fusca*来源菌的角质酶可以高效分解PET塑料^[88]。后来, 科学家们又从嗜热双歧杆菌属(genera *Thermobifida*)分离了众多可以降解PET塑料的角质酶, 这其中, 从树叶枝条堆肥中利用后基因组学的方法分离得到的角质酶LCC(leaf-branch compost cutinase, LCC)具有高效的催化活性和很好的热稳定性^[89]。通过利用角质酶等生物酶分解PET塑料回收单体的模式已被Carbios公司(www.carbios.fr)成功商业化。2020年, 在经过蛋白质工程改造以后科学家又成功地进一步提高了LCC酶的耐热性, 在PET的玻璃化转变温度附近(72℃), 突变体LCC连续水解PET约10 h以后, 90%的PET(200 g/kg)被降解为单体分子^[90]。此外, 还有科学家将PETase或角质酶转入到海藻^[91]或者嗜热厌氧菌^[92]中尝试用于PET塑料的生物修复。但迄今为止, 研究较成熟的高效降解塑料的酶只有降解PET塑料的角质酶等, 并且高温的反应条件不利于生物修复的过程。如何在常温条件下, 高效降解PET塑料将是生物修复PET微塑料污染的关键。

5 总结与展望

微塑料是持久性污染物, 体积小, 比表面积大, 比大塑料

具有更强的迁移能力,还可吸附各种环境污染物,对人类和其他生物造成了极大的危害。至今,海岸带微塑料的污染和危害研究较多,起步较早,而人类活动主要集中于陆地,所以陆地土壤及水域系统微塑料的污染、危害和治理等将是未来的研究重点。含有微塑料的各种化工产品的使用以及相关的研究应该引起足够的重视,例如不同化工产品中微塑料检测方法的建立,包含微塑料种类及添加量在内的分布特征的研究,针对不同产品中使用情况及添加目的制定相应的防治策略将是产品中微塑料使用的防控重点。

对于微塑料的防控,通过法规约束,提高人们回收利用塑料的意识等方式可以有效控制微塑料的污染源头。但是,修复

环境中已经存在的微塑料污染是比较紧迫的,通过在不同环境和不同污染程度下,结合水处理技术、化学、物理修复和生物修复将有效降低微塑料的污染水平。对于微塑料生物修复技术,筛选高效降解聚烯烃类塑料的微生物和昆虫,解析生物利用烯烃类塑料的机制,联合利用几种生物或酶协同降解微塑料等方式将推动聚烯烃类微塑料的治理研究;此外,开发在常温条件下高效降解PET塑料等聚酯类塑料的生物技术将提高生物修复微塑料污染的可行性。塑料不同于其他环境污染物,是人类生产生活离不开的材料,在高效修复环境微塑料污染的情况下,保证生物修复的安全性是生物修复微塑料污染的前提。

参考文献 [References]

- Geyer R, Jambeck JR, Law KL. Production, use, and fate of all plastics ever made [J]. *Sci Adv*, 2017, **3** (7): e1700782
- Thompson RC, Olsen Y, Mitchell RP, Davis A, Rowland SJ, Mcgonigle D, Russell AE. Lost at sea: where is all the plastic? [J]. *Science*, 2004, **304** (5672): 838-838
- Worm B, Lotze HK, Jubinville I, Wilcox C, Jambeck J. Plastic as a persistent marine pollutant [J]. *Annu Rev Environ Resour*, 2017, **42** (1): 1-26
- Carbery M, O'Connor W, Thavamani P. Trophic transfer of microplastics and mixed contaminants in the marine food web and implications for human health [J]. *Environ Int*, 2018, **115**: 400-409
- Wang W, Gao H, Jin S, Li R, Na G. The ecotoxicological effects of microplastics on aquatic food web, from primary producer to human: a review [J]. *Ecotox Environ Safe*, 2019, **173**: 110-117
- Bhagat J, Zang L, Nishimura N, Shimada Y. Zebrafish: an emerging model to study microplastic and nanoplastic toxicity [J]. *Sci Total Environ*, 2020, **728**: 138707
- Nolte TM, Hartmann NB, Kleijn JM, Garnæs J, Dik VDM, Jan Hendriks A, Baun A. The toxicity of plastic nanoparticles to green algae as influenced by surface modification, medium hardness and cellular adsorption [J]. *Aquat Toxicol*, 2017, **183**: 11-20
- Bhattacharya P, Lin S, Turner JP, Ke PC. Physical adsorption of charged plastic nanoparticles affects algal photosynthesis [J]. *J Phys Chem C*, 2010, **114** (39): 16556-16561
- Nadia VM, Patricia BH, Angela KH. 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
- Blarer P, Burkhardt-Holm P. Microplastics affect assimilation efficiency in the freshwater amphipod *Gammarus fossarum* [J]. *Environ Sci Pollut Res*, 2016, **23**: 23522-23532
- Kosuth M, Mason S, Wattenberg E. Anthropogenic contamination of tap water, beer, and sea salt [J]. *PLoS ONE*, 2018, **13** (4): e0194970
- Vianello A, Jensen RL, Li L, Vollertsen J. Simulating human exposure to indoor airborne microplastics using a breathing thermal manikin [J]. *Sci Rep*, 2019, **9**: 8670
- Schirinzi G, Pérez-Pomeda I, Sanchís Sandoval J, Rossini C, Farré M, Barcelo D. Cytotoxic effects of commonly used nanomaterials and microplastics on cerebral and epithelial human cells [J]. *Environ Res*, 2017, **159**: 579-587
- Zhu BK, Fang YM, Zhu D, Christie P, Ke X, Zhu YG. Exposure to nanoplastics disturbs the gut microbiome in the soil oligochaete *Enchytraeus crypticus* [J]. *Environ Pollut*, 2018, **239**: 408-415
- Ju H, Zhu D, Qiao M. Effects of polyethylene microplastics on the gut microbial community, reproduction and avoidance behaviors of the soil springtail, *Folsomia candida* [J]. *Environ Pollut*, 2019, **247**: 890-897
- Lahive E, Walton A, Horton AA, Spurgeon DJ, Svendsen C. Microplastic particles reduce reproduction in the terrestrial worm *Enchytraeus crypticus* in a soil exposure [J]. *Environ Pollut*, 2019, **255** (Pt 2): 113174
- Wang J, Coffin S, Sun C, Schlenk D, Gan J. Negligible effects of microplastics on animal fitness and HOC bioaccumulation in earthworm *Eisenia fetida* in soil [J]. *Environ Pollut*, 2019, **249**: 776-784
- Lwanga EH, Thapa B, Yang XM, Gertsen H, Salánki T, Geissen V, Garbeva P. Decay of low-density polyethylene by bacteria extracted from earthworm's guts: a potential for soil restoration [J]. *Sci Total Environ*, 2018, **624**: 753-757
- Guo J-J, Huang X-P, Xiang L, Wang Y-Z, Wong M-H. Source, migration and toxicology of microplastics in soil [J]. *Environ Int*, 2020, **137**: 105263
- Lee WS, Cho HJ, Kim E, Huh YH, Kim HJ, Kim B, Kang T, Lee JS, Jeong J. Bioaccumulation of polystyrene nanoplastics and their effect on the toxicity of Au ions in zebrafish embryos [J]. *Nanoscale*, 2019, **11** (7): 3173-3185
- Canesi L, Ciacci C, Fabbri R, Balbi T, Salis A, Damonte G, Cortese K, Caratto V, Monopoli MP, Dawson K, Bergami E, Corsi I. Interactions of cationic polystyrene nanoparticles with marine bivalve hemocytes in a physiological environment: role of soluble hemolymph proteins [J]. *Environ Res*, 2016, **150**: 73-81
- Nanoplastic should be better understood (editorial). *Nat Nanotechnol*, 2019, **14** (4): 299
- Teuten EL, Saquing JM, Knappe DRU, Barlaz MA, Takada H. Transport and release of chemicals from plastic to the environment and to wildlife [J]. *Philos T R Soc B*, 2009, **364** (1526): 2027-2045
- Horton AA, Walton A, Spurgeon DJ, Lahive E, Svendsen C. Microplastics in freshwater and terrestrial environments: Evaluating the current understanding to identify the knowledge gaps and future research priorities [J]. *Sci Total Environ*, 2017, **586**: 127-141
- Hermabessiere L, Dehaut A, Paul-Pont I, Lacroix C, Jezequel R, Soudant P, Duflos G. Occurrence and effects of plastic additives on marine environments and organisms: a review [J].

- Chemosphere*, 2017, **182**: 781-793
- 26 Kong S, Ji Y, Liu L, Chen L, Sun Z. Diversities of phthalate esters in suburban agricultural soils and wasteland soil appeared with urbanization in China [J]. *Environ Pollut*, 2012, **170**: 161-168
- 27 Wang J, Luo Y, Teng Y, Ma W, Christie P, Li Z. Soil contamination by phthalate esters in Chinese intensive vegetable production systems with different modes of use of plastic film [J]. *Environ Pollut*, 2013, **180**: 265-273
- 28 Rochman CM, Hoh E, Kurobe T, Teh SJ. Ingested plastic transfers hazardous chemicals to fish and induces hepatic stress [J]. *Sci Rep*, 2013, **3**: 3623
- 29 Mark Anthony B, Niven SJ, Galloway TS, Rowland SJ, Thompson RC. Microplastic moves pollutants and additives to worms, reducing functions linked to health and biodiversity [J]. *Curr Biol*, 2013, **23** (23): 2388-2392
- 30 Pannetier P, Cachot J, Clerandeanu C, Faure F, Van Arkel K, de Alencastro LF, Levasseur C, Sciacca F, Bourgeois J-P, Morin B. Toxicity assessment of pollutants sorbed on environmental sample microplastics collected on beaches: Part I - adverse effects on fish cell line [J]. *Environ Pollut*, 2019, **248**: 1088-1097
- 31 Napper IE, Bakir A, Rowland SJ, Thompson RC. Characterisation, quantity and sorptive properties of microplastics extracted from cosmetics [J]. *Mar Pollut Bull*, 2015, **99** (1-2): 178-185
- 32 Mark Anthony B, Phillip C, Niven SJ, Emma T, Andrew T, Tamara G, Richard T. Accumulation of microplastic on shorelines worldwide: sources and sinks [J]. *Environ Sci Technol*, 2011, **45** (21): 9175-9179
- 33 Zhang K, Gong W, Lü J, Xiong X, Wu C. Accumulation of floating microplastics behind the Three Gorges Dam [J]. *Environ Pollut*, 2015, **204**: 117-123
- 34 Kara Lavender L, Skye MF, Maximenko NA, Giora P, Peacock EE, Jan H, Reddy CM. Plastic accumulation in the North Atlantic subtropical gyre [J]. *Science*, 2010, **329** (5996): 1185-1188
- 35 Andrés C, Fidel E, J Ignacio GG, Xabier I, Bárbara U, Santiago HL, Palma AT, Sandra N, Juan GDL, Andrea R. Plastic debris in the open ocean [J]. *PNAS*, 2014, **111** (28): 10239-10244
- 36 Pan Z, Guo H, Chen H, Wang S, Sun X, Zou Q, Zhang Y, Lin H, Cai S, Huang J. Microplastics in the northwestern Pacific: abundance, distribution, and characteristics [J]. *Sci Total Environ*, 2018, **650**: 1913-1922
- 37 Alomar C, Estarellas F, Deudero S. Microplastics in the Mediterranean Sea: Deposition in coastal shallow sediments, spatial variation and preferential grain size [J]. *Mari Environ Res*, 2016, **115**: 1-10
- 38 Cordova MR, Purwiyanto AIS, Suteja Y. Abundance and characteristics of microplastics in the northern coastal waters of Surabaya, Indonesia [J]. *Mar Pollut Bull*, 2019, **142**: 183-188
- 39 Carson HS, Colbert SL, Kaylor MJ, Mcdermid KJ. Small plastic debris changes water movement and heat transfer through beach sediments [J]. *Mar Pollut Bull*, 2011(8): 1708-1713
- 40 Zhou Q, Zhang HB, Fu CC, Yang D, Li ZF. The distribution and morphology of microplastics in coastal soils adjacent to the Bohai Sea and the Yellow Sea [J]. *Geoderma*, 2018, **322**: 201-208
- 41 Zhao S, Zhu L, Li D. Characterization of small plastic debris on tourism beaches around the South China Sea [J]. *Reg Stud Mar Sci*, 2015, **1**: 55-62
- 42 Kara Lavender L, Morét-Ferguson SE, Goodwin DS, Zettler ER, Emelia D, Tobias K, Giora P. Distribution of surface plastic debris in the eastern Pacific Ocean from an 11-year data set [J]. *Environ Sci Technol*, 2014, **48** (9): 4732-4738
- 43 Cauwenberghe LV, Vanreusel A, Mees J, Janssen CR. Microplastic pollution in deep-sea sediments [J]. *Environ Pollut*, 2013, **182**: 495-499
- 44 Wong KHJ, Lee KK, Ho DTK, Yap P-S. Microplastics in the freshwater and terrestrial environments: prevalence, fates, impacts and sustainable solutions [J]. *Sci Total Environ*, 2020, **719**: 137512
- 45 Chae Y, An YJ. Current research trends on plastic pollution and ecological impacts on the soil ecosystem: a review [J]. *Environ Pollut*, 2018, **240**: 387-395
- 46 Rillig MC. Microplastic in terrestrial ecosystems and the soil? [J]. *Environ Sci Technol*, 2012, **46** (12): 6453-6454
- 47 Scopetani C, Chelazzi D, Mikola J, Leiniö V, Pellinen J. Olive oil-based method for the extraction, quantification and identification of microplastics in soil and compost samples [J]. *Sci Total Environ*, 2020, **733**: 139338
- 48 Liu K, Wang XH, Fang T, Xu P, Zhu LX. Source and potential risk assessment of suspended atmospheric microplastics in Shanghai [J]. *Sci Total Environ*, 2019, **675**: 462-471
- 49 Dris R, Gasperi J, Mirande C, Mandin C, Guerrouache M, Langlois V, Tassin B. A first overview of textile fibers, including microplastics, in indoor and outdoor environments [J]. *Environ Pollut*, 2017, **221**: 453-458
- 50 Liu K, Wang X, Song Z, Wei N, Li D. Global inventory of atmospheric fibrous microplastics input into the ocean: an implication from the indoor origin [J]. *J Hazard Mater*, 2020, **400**: 123223
- 51 Barboza LGA, Frias JPGL, Booth AM, Vieira LR, Masura J, Baker J, Foster G, Guilhermino L. Microplastics pollution in the marine environment [C]//Charles Sheppard. World Seas: an Environmental Evaluation II. Netherlands: Elsevier Ltd, 2019: 329-351 [2020]. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-805052-1.0020-6>
- 52 Boucher J, Friot D. Primary Microplastics in the Oceans: A Global Evaluation of Source [M]. Switzerland: IUCN, 2017: 46
- 53 Wezel AV, Caris I, Kools SAE. Release of primary microplastics from consumer products to wastewater in the Netherlands [J]. *Environ Toxicol Chem*, 2016, **35**: 1627-1631
- 54 Zhang Q, Zhao Y, Li J, Shi H. Microplastics in food: health risks [C]//He, Defu, Luo, Yongming. Microplastics in Terrestrial Environments. Switzerland: Springer, Cham, 2020: 343-356
- 55 Martin P, Lenka C, Katerina N, Petra P, Tomas C, Vaclav J. Occurrence of microplastics in raw and treated drinking water [J]. *Sci Total Environ*, 2018, **643**: 1644-1651
- 56 Li Q, Sun C, Wang Y, Cai H, Shi H. Fusion of microplastics into the mussel byssus [J]. *Environ Pollut*, 2019, **252A**: 420-426
- 57 Barboza, LGA, Dick, Vethaak, Lavorante, BRBO, Lundebye, AK, Guilhermino. Marine microplastic debris: an emerging issue for food security, food safety and human health [J]. *Mar Pollut Bull*, 2018, **133**: 336-348
- 58 Xie J, Yang Y, Gao B, Wan Y, Li YC, Xu J, Zhao Q. Biomimetic superhydrophobic biobased polyurethane-coated fertilizer with atmosphere "Outerwear" [J]. *Acs Appl Mater Inter*, 2017, **9** (18): 15868-15879
- 59 Browne MA, Galloway T, Thompson R. Microplastic--an emerging contaminant of potential concern? [J]. *Integr Environ Assess Manage*, 2007, **3** (4): 559-561
- 60 Lei K, Qiao F, Liu Q, Wei Z, Qi H, Cui S, Yue X, Deng Y, An L.

- Microplastics releasing from personal care and cosmetic products in China [J]. *Mar Pollut Bull*, 2017, **123** (1-2): 122-126
- 61 Todd G, Nicola R, Rainer L, Geoff H. A thermodynamic approach for assessing the environmental exposure of chemicals absorbed to microplastic [J]. *Environ Sci Technol*, 2011, **45** (4): 1466-1472
 - 62 Cirujeda A, Aibar J, Anzalón Á, Martín-Closas L, Meco R, Moreno MM, Pardo A, Pelacho AM, Rojo F, Rojo-Esna A. Biodegradable mulch instead of polyethylene for weed control of processing tomato production [J]. *Agron Sustain Dev*, 2012, **32** (4): 889-897
 - 63 Dentzman K, Goldberger JR. Plastic scraps: biodegradable mulch films and the aesthetics of 'good farming' in US specialty crop production [J]. *Agric Human Values*, 2020, **37** (1): 83-96
 - 64 Rahimi A, García JM. Chemical recycling of waste plastics for new materials production [J]. *Nat Rev Chem*, 2017, **1**: 0046
 - 65 Vollmer DI, Jenks MJF, Roelands DMCP, White DRJ, Harmelen DTV, Wild DPd, Laan DGPVD, Meirer DF, Keurentjes PJTF, Weckhuysen PBM. Beyond mechanical recycling: giving new life to plastic waste [J]. *Angew Chem Int Ed*, **59** (36): 15402-15423
 - 66 Chen C-C, Dai L, Ma L, Guo R-T. Enzymatic degradation of plant biomass and synthetic polymers [J]. *Nat Rev Chem*, 2020, **4**: 114-126
 - 67 Nakajima R, Tsuchiya M, Lindsay DJ, Kitahashi T, Fujikura K, Fukushima T. A new small device made of glass for separating microplastics from marine and freshwater sediments [J]. *PeerJ*, 2019, **7**: e7915
 - 68 Van Melkebeke M, Janssen C, De Meester S. Characteristics and sinking behavior of typical microplastics including the potential effect of biofouling: implications for remediation [J]. *Environ Sci Technol*, 2020, **54** (14): 8668-8680
 - 69 Shen M, Song B, Zhu Y, Zeng G, Zhang Y, Yang Y, Wen X, Chen M, Yi H. Removal of microplastics via drinking water treatment: Current knowledge and future directions [J]. *Chemosphere*, 2020, **251**: 126612
 - 70 Miao F, Liu Y, Gao M, Yu X, Xiao P, Wang M, Wang S, Wang X. Degradation of polyvinyl chloride microplastics via an electro-Fenton-like system with a TiO₂/graphite cathode [J]. *J Hazard Mater*, 2020, **399**: 123023
 - 71 Wei R, Zimmermann W. Microbial enzymes for the recycling of recalcitrant petroleum-based plastics: how far are we? [J]. *Microb Biotechnol*, 2017, **10** (6): 1308-1322
 - 72 Danso D, Chow J, Streit WR. Plastics: environmental and biotechnological perspectives on microbial degradation [J]. *Appl Environ Microbiol*, 2019, **85** (19): e01095-19
 - 73 Ariza-Tarazona MC, Villarreal-Chiu JF, Barbieri V, Siligardi C, Cedillo-González EI. New strategy for microplastic degradation: green photocatalysis using a protein-based porous N-TiO₂ semiconductor [J]. *Ceram Int*, 2019, **45** (7): 9618-9624
 - 74 Tofa TS, Kunjali KL, Paul S, Dutta J. Visible light photocatalytic degradation of microplastic residues with zinc oxide nanorods [J]. *Environ Chem Lett*, 2019, **17** (3): 1341-1346
 - 75 Ariza-Tarazona MC, Villarreal-Chiu JF, Hernandez-Lopez JM, Rivera De la Rosa J, Barbieri V, Siligardi C, Cedillo-Gonzalez EI. Microplastic pollution reduction by a carbon and nitrogen-doped TiO₂: Effect of pH and temperature in the photocatalytic degradation process [J]. *J Hazard Mater*, 2020, **395**: 122632
 - 76 Nabi I, Bacha AU, Li K, Cheng H, Wang T, Liu Y, Ajmal S, Yang Y, Feng Y, Zhang L. Complete photocatalytic mineralization of microplastic on TiO₂ nanoparticle film [J]. *iScience*, 2020, **23** (7): 101326
 - 77 Kawai F, Kawabata T, Oda M. Current knowledge on enzymatic PET degradation and its possible application to waste stream management and other fields [J]. *Appl Microbiol Biotechnol*, 2019, **103** (11): 4253-4268
 - 78 Fujisawa M, Hirai H, Nishida T. Degradation of polyethylene and nylon-66 by the laccase-mediator system [J]. *J Polym Environ*, 2001, **9** (3): 103-108
 - 79 Das MP, Kumar S. An approach to low-density polyethylene biodegradation by *Bacillus amyloliquefaciens* [J]. *3 Biotech*, 2015, **5** (1): 81-86
 - 80 Yang Y, Yang J, Wu WM, Zhao J, Song Y, Gao L, Yang R, Jiang L. Biodegradation and mineralization of polystyrene by plastic-eating mealworms: Part 1. Chemical and physical characterization and isotopic Tests [J]. *Environ Sci Technol*, 2015, **49** (20): 12080-12086
 - 81 Yang Y, Yang J, Wu WM, Zhao J, Song Y, Gao L, Yang R, Jiang L. Biodegradation and mineralization of polystyrene by plastic-eating mealworms: Part 2. Role of gut microorganisms [J]. *Environ Sci Technol*, 2015, **49** (20): 12087-12093
 - 82 Auta HS, Emenike CU, Fauziah SH. Screening of *Bacillus* strains isolated from mangrove ecosystems in Peninsular Malaysia for microplastic degradation [J]. *Environ Pollut*, 2017, **231** (Pt 2): 1552-1559
 - 83 Tian L, Kolvenbach B, Corvini N, Wang S, Tavanaie N, Wang L, Ma Y, Scheu S, Corvini PF, Ji R. Mineralisation of (14)C-labelled polystyrene plastics by *Penicillium variable* after ozonation pre-treatment [J]. *New Biotech*, 2017, **38** (Pt B): 101-105
 - 84 Wu WM, Yang J, Criddle CS. Microplastics pollution and reduction strategies [J]. *Front Env Sci Eng*, 2017, **11** (1): 6
 - 85 Jeyakumar D, Chirsteen J, Doble M. Synergistic effects of pretreatment and blending on fungi mediated biodegradation of polypropylenes [J]. *Bioresour Technol*, 2013, **148**: 78 - 85
 - 86 Santo M, Weitsman R, Sivan A. The role of the copper-binding enzyme – laccase – in the biodegradation of polyethylene by the actinomycete *Rhodococcus ruber* [J]. *Int Biodeter Biodegr*, 2013, **84**: 204-210
 - 87 Yoshida S, Hiraga K, Takehana T, Taniguchi I, Yamaji H, Maeda Y, Toyohara K, Miyamoto K, Kimura Y, Oda K. A bacterium that degrades and assimilates poly(ethylene terephthalate) [J]. *Science*, 2016, **353** (6278): 1196-1199
 - 88 Müller R-J, Schrader H, Profe J, Dresler K, Deckwer WD. Enzymatic degradation of poly(ethylene terephthalate): rapid Hydrolyse using a hydrolase from *T. fusca* [J]. *Macromol Rapid Comm*, 2005, **26**: 1400 - 1405
 - 89 Sulaiman S, Yamato S, Kanaya E, Kim JJ, Koga Y, Takano K, Kanaya S. Isolation of a novel cutinase homolog with polyethylene terephthalate-degrading activity from leaf-branch compost by using a metagenomic approach [J]. *Appl Environ Microbiol*, 2012, **78** (5): 1556-1562
 - 90 Tournier V, Topham CM, Gilles A, David B, Marty A. An engineered PET depolymerase to break down and recycle plastic bottles [J]. *Nature*, 2020, **580** (7802): 216-219
 - 91 Moog D, Schmitt J, Senger J, Zarzycki J, Maier UG. Using a marine microalga as a chassis for polyethylene terephthalate (PET) degradation [J]. *Microb Cell Fact*, 2019, **18**: 171
 - 92 Yan F, Wei R, Cui Q, Bornscheuer UT, Liu YJ. Thermophilic whole - cell degradation of polyethylene terephthalate using engineered *Clostridium thermocellum* [J]. *Microb Biotechnol*, 2020: doi 10.1111/1751-7915.13580