

DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2020.0067

田媛 涂晨 周倩,等.2020.环渤海海岸大气微塑料污染时空分布特征与表面形貌[J].环境科学学报,40(4):1401-1409

Tian Y , Tu C , Zhou Q , et al. 2020.The temporal and spatial distribution and surface morphology of atmospheric microplastics around the Bohai Sea[J]. Acta Scientiae Circumstantiae,40(4):1401-1409

## 环渤海海岸大气微塑料污染时空分布特征与表面形貌

田媛<sup>1,3</sup> 涂晨<sup>1</sup> 周倩<sup>1,3</sup> 张晨捷<sup>1,3</sup> 李连祯<sup>1</sup> 田崇国<sup>1</sup> 宗政<sup>1</sup> 骆永明<sup>1,2,3,\*</sup>

1. 中国科学院烟台海岸带研究所,中国科学院海岸带环境过程与生态修复重点实验室,烟台 264003
2. 中国科学院南京土壤研究所,中国科学院土壤环境与污染修复重点实验室,南京 210008
3. 中国科学院大学,北京 100049

**摘要:** 微塑料污染已成为国内外的热点环境问题.目前,针对大气环境中微塑料污染的研究仅在少数地区开展.为比较环渤海沿海城市大气微塑料污染的长周期分布特征,本研究以烟台、天津和大连 3 个城市为例,于 2018 年 6 月—2019 年 5 月进行大气沉降样品的采集,经体视显微镜、扫描电子显微镜和显微傅里叶红外光谱仪观察,分析了大气微塑料的类型、颜色、粒径、成分、微观形貌及主要成分等特征,并计算了微塑料的大气沉降通量.结果表明,在 3 个采样点大气沉降样品中共同存在纤维、薄膜、碎片和颗粒 4 种类型的微塑料,其中绝大部分为纤维类(>90%).大气沉降微塑料的颜色主要包括透明、蓝色、红色、黑色等;粒径大多<1 mm.大气沉降样品中的微塑料主要成分为赛璐玢(>50%)和聚对苯二甲酸乙二醇酯(>30%),且微塑料表面存在明显风化特征.烟台、天津和大连地区单位面积微塑料年沉降量分别为  $2.7 \times 10^4$ 、 $8.9 \times 10^4$  和  $7.2 \times 10^4$  粒·m<sup>-2</sup>.研究结果可为环渤海海岸城市大气微塑料污染与防控研究提供科学依据.

**关键词:** 微塑料; 大气沉降; 时空分布; 沉降通量; 渤海

文章编号: 0253-2468(2020)04-1401-09

中图分类号: X51, X831

文献标识码: A

## The temporal and spatial distribution and surface morphology of atmospheric microplastics around the Bohai Sea

TIAN Yuan<sup>1,3</sup>, TU Chen<sup>1</sup>, ZHOU Qian<sup>1,3</sup>, ZHANG Chenjie<sup>1,3</sup>, LI Lianzhen<sup>1</sup>, TIAN Chongguo<sup>1</sup>, ZONG Zheng<sup>1</sup>, LUO Yongming<sup>1,2,3,\*</sup>

1. CAS Key Laboratory of Coastal Environmental Processes and Ecological Remediation, Yantai Institute of Coastal Zone Research, Chinese Academy of Sciences, Yantai 264003
2. CAS Key Laboratory of Soil Environment and Pollution Remediation, Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008
3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049

**Abstract:** Microplastic pollution has become a key environmental issue. At present, research on microplastic pollution in the atmospheric environment has been carried out only in limited regions. Here, the long-term variation in atmospheric microplastic pollution in different coastal cities around the Bohai Sea was compared by selecting three coastal cities (Yantai, Tianjin and Dalian) as case studies. Atmospheric deposition samples were collected from June 2018 to May 2019. The particle size, color, micro-morphology and components of atmospheric microplastics were characterized by stereomicroscopy, scanning electron microscopy and  $\mu$ -Fourier transform infrared spectrometry, and the atmospheric deposition flux of microplastics was also calculated. Four types of microplastics comprising fibers, films, fragments and granules were found in the atmospheric deposition samples at the three sampling sites and were dominated by fibers (>90%). The colors of microplastics were mainly transparent, blue, red, and black. Most microplastics were < 1 mm in size and the main components of the identified microplastics were cellophane (>50%) and polyester terephthalate (>30%). All the atmospheric microplastics showed definite surface weathering characteristics. The annual atmospheric deposition flux of microplastics at Yantai, Tianjin and Dalian were  $2.7 \times 10^4$ ,  $8.9 \times 10^4$  and  $7.2 \times 10^4$  particles per square meter, respectively. The results may provide a scientific basis for investigation of atmospheric microplastic pollution and control in the coastal cities around the Bohai Sea.

**Keywords:** atmospheric fallout; deposition flux; microplastics; temporal and spatial distribution; Bohai Sea

收稿日期: 2019-12-21 修回日期: 2020-02-19 录用日期: 2020-02-19

基金项目: 国家重点研发计划(No.2016YFC1402202);中国科学院国际合作局对外合作重点项目(No.133337KYSB20160003);中国科学院前沿科学重点研究项目(No.QYZDJ-SSW-DQC015)

作者简介: 田媛(1994—),女,E-mail: ytian@yic.ac.cn; \* 责任作者,E-mail: ymluo@issas.ac.cn

## 1 引言( Introduction)

自 20 世纪 50 年代塑料大规模生产以来,其应用在全球范围内呈上升趋势.随着人们对塑料需求的不断增长,环境中的塑料累积量也急剧增加(Rodrigues *et al.*, 2018).研究表明,塑料在环境中受到光降解、生物降解等作用会破碎成更小的塑料碎片(Rochman *et al.*, 2013).目前,通常将粒径小于 5 mm 的塑料称为微塑料(Thompson *et al.*, 2004).微塑料根据来源不同可分为“原生”微塑料和“次生”微塑料,其中,原生微塑料是指直接被生产成微观尺寸的、用于塑料生产或其他应用的塑料微粒;次生微塑料是指大型塑料经裂解产生的微塑料(Hidalgo-Ruz *et al.*, 2012).微塑料粒径小、密度低,可以在河流、洋流、风等外力作用下发生迁移,并作为有毒有害污染物的载体而带来环境生态危害(刘沙沙等, 2019).目前,针对海洋、潮滩、沉积物、土壤、河流和生物体中微塑料污染的研究和报道日益增多(Gago *et al.*, 2018; 简敏菲等, 2018; 骆永明等, 2018; 包旭辉等, 2019; 刘启明等, 2019; Li *et al.*, 2019), 而有关大气环境中微塑料污染的研究相对较少.

近年来,国内研究人员在中国上海(Liu *et al.*, 2019b)、东莞(Cai *et al.*, 2017)和烟台(周倩等, 2017)等地的大气样品中发现了微塑料的存在.其中,纤维类微塑料为大气微塑料的主要类型,鉴定出包括聚对苯二甲酸乙二醇酯(Polyester terephthalate, PET)、聚乙烯(Polyethylene, PE)等在内的多种微塑料.Liu 等(2019a)检测了中国 39 个主要城市的室内外降尘样品,通过分析 PET 和聚碳酸酯(Polycarbonate, PC)的质量浓度发现室内 PET 的质量浓度明显高于室外,而室内 PC 的质量浓度与室外差别不明显(Wang *et al.*, 2017).国外研究人员在法国巴黎(Dris *et al.*, 2015)、法国比利牛斯山区(Allen *et al.*, 2019)和德国汉堡(Klein *et al.*, 2019)的大气沉降样品中同样发现了微塑料的存在.除在巴黎地区的微塑料主要类型为纤维类外,比利牛斯山区和汉堡地区以碎片类微塑料为主.此外,微塑料还可通过大气传输至偏远地区,目前已在海冰、青藏高原的河流、湖泊、冰川等偏远地区均发现了微塑料污染的存在(Peng *et al.*, 2018; Xiong *et al.*, 2018; Jiang *et al.*, 2019).Allen 等(2019)在比利牛斯山区大气沉降微塑料样品中发现了碎片、薄膜、

纤维类微塑料,对气团运动轨迹的分析显示,微塑料通过大气传输的距离达 95 km.因此,大气环境中的微塑料污染通过大气传输,已成为陆海环境微塑料污染的一个重要来源.

目前,已有的大气环境中微塑料污染研究主要基于单区域或多区域的短周期采样调查,缺少针对多区域、长周期的大气微塑料污染比较研究.海岸带是受全球气候变化和人类活动双重影响的重要区域,研究海岸带城市大气中微塑料污染的时空分布特征具有重要的科学意义.鉴于此,本研究以环渤海 3 个沿海城市烟台、天津和大连为采样点,开展了为期一年的大气沉降微塑料样品采集与分析,比较研究环渤海不同海岸城市大气沉降样品中微塑料类型、颜色、粒径、成分、表面形貌和沉降通量等特征,探讨导致不同海岸城市大气微塑料沉降通量差异的潜在因素.以期为环渤海海岸城市的大气微塑料污染与防控研究提供科学依据.

## 2 材料与方法( Materials and methods)

### 2.1 采样区域及采样方法

本研究于 2018 年 6 月—2019 年 5 月在烟台(37°59′N, 121°43′E)、天津(38°84′N, 117°44′E)和大连(38°87′N, 121°53′E) 3 个采样点采集大气沉降微塑料样品.按季节分为夏季(2018 年 6—8 月)、秋季(2018 年 9—11 月)、冬季(2018 年 12 月—2019 年 2 月)和春季(2019 年 3—5 月)进行采集,每个采样点采集 2 个样品,采样点设置如图 1 所示.

大气沉降微塑料样品采用不锈钢采样瓶进行连续被动采样(包括干、湿沉降),其中,夏季和秋季采样瓶尺寸为 35 cm×φ7 cm,体积为 2.5 L,冬季和春季采样瓶尺寸为 35 cm×φ5.5 cm,体积为 2.0 L.烟台、天津和大连采样点距海岸线距离分别为 0.1、6 和 1 km,海拔分别为 5、30 和 25 m.

### 2.2 样品前处理

向大气沉降微塑料采集瓶内加入 1000 mL 超纯水,静置 10 h.将样品用 5 μm 硝酸纤维素滤膜(Whatman AE98, 德国)过滤,再将样品用 30%过氧化氢溶液进行消解(80 °C、10 h),至无明显杂质(动植物残体等)后过滤至 5 μm 硝酸纤维素滤膜上.将样品全部冲洗至 250 mL 的 CaCl<sub>2</sub> 溶液( $\rho = 1.35 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ )中密度浮选静置 48 h,再将样品用 5 μm 硝酸纤维素滤膜过滤并用 100 mL 超纯水冲洗滤膜 3 次,然后将滤膜放入清洁的膜盒中,编号、风干.

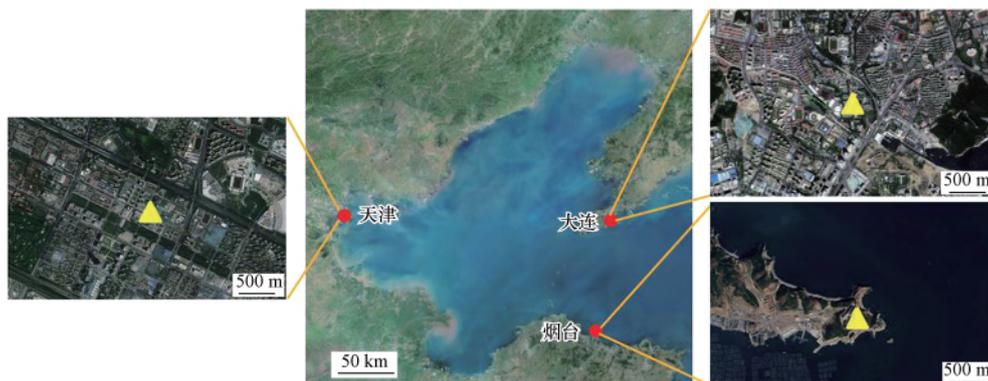


图1 烟台、天津、大连采样点位置图

Fig.1 Map of sampling sites in Yantai , Tianjin and Dalian

### 2.3 微塑料样品挑选及成分鉴定

将风干的滤膜置于体视显微镜 ( Nikon SMZ1270 ,日本) 下观察和统计 ,对疑似微塑料样品按其颜色和形貌类型分类、拍摄图像留存并测量粒径。将粒径小于 5 mm 的疑似微塑料样品分为纤维类、薄膜类、碎片类和颗粒类 4 种类型 ( 周倩等 , 2017; Liu *et al.* , 2019b) .

挑选约 25% 的典型疑似微塑料样品 ,采用显微傅里叶红外光谱仪 ( PerkinElmer Spotlight 400 ,美国) 进行聚合物成分鉴定。在透射模式下对疑似微塑料样品进行扫描获得光谱 ,采用波长范围 750~4000  $\text{cm}^{-1}$  ,扫描次数 32 次。在分析前校正环境中二氧化碳和水蒸气的背景干扰。结合标准谱图库 ( Hummel Polymer Sample Library) 进行匹配分析 ,鉴定微塑料的聚合物成分 ( 周倩等 2017) .

### 2.4 扫描电子显微镜的观察

选择具有代表性的不同类型的微塑料样品 ,将微塑料镀铂金后 ,采用扫描电子显微镜 ( Hitachi S-4800 ,日本) 观察和分析表面微观形貌 ,包括微塑料整体微观形貌、微塑料表面局部微观形貌及微塑料微孔特征等 ( Cole *et al.* , 2014) .

### 2.5 微塑料的大气沉降通量计算

采用每天每平方米通过大气沉降的微塑料数量表示微塑料沉降通量 (  $\eta$  ) ( 周倩等 ,2017) ,计算公式见式 ( 1) .

$$\eta = \frac{n}{s \times t} \times 10^4 \quad (1)$$

式中  $n$  为样品中微塑料数量 ( 粒) ;  $s$  为装置收集口面积 (  $\text{cm}^2$  ) ;  $t$  为收集时间 ( d) .

### 2.6 质量控制与数据统计

在实验过程中 ,为避免背景污染 ,实验人员穿

着防止衣服纤维脱落的实验服 ,所有实验仪器均经超纯水冲洗并用铝箔包裹 ,同时进行空白对照试验 ( Dris *et al.* , 2016) . 利用 Microsoft Excel 2013 和 Origin 2017 统计不同粒径的微塑料和微塑料数目 ,绘制饼图、柱状图。采用单因素方差分析进行统计处理 ,当  $p < 0.05$  时 ,表示存在显著差异。

## 3 结果与讨论 ( Results and discussion)

### 3.1 大气沉降微塑料的类型、颜色和粒径特征

通过对采集的微塑料样品进行形貌和粒径分析发现 ,大气沉降样品中存在纤维、薄膜、碎片和颗粒 4 种类型的微塑料 ,如图 2~3 所示 ,在 3 个研究区域中 ,纤维类微塑料均占绝大部分 ( >90% ) ,薄膜类、碎片类和颗粒类微塑料所占比重较少。在 3 个研究区域的每个季度样品中都存在纤维类微塑料 ,但并不都存在薄膜类、碎片类和颗粒类微塑料 ,如烟台 4 个季度的大气沉降样品中均不存在颗粒类微塑料。

如图 4 所示 ,大气沉降微塑料具有透明、红色、蓝色、黑色、灰色等多种颜色 ,其中以透明微塑料的比例最高。在烟台 ,透明微塑料占总微塑料样品的 35% 左右 ;而在天津和大连 ,透明微塑料均占微塑料总数的 70% 以上。此外 ,纤维类微塑料以透明、蓝色、黑色为主 ,薄膜类微塑料以透明为主 ,碎片类微塑料以蓝色、绿色为主 ,颗粒类微塑料以蓝色、红色为主。

将大气沉降微塑料的粒径按 <1 mm、1~2 mm、2~3 mm、3~4 mm 及 4~5 mm 进行划分。由图 5 可知 ,粒径 <1 mm 的微塑料在 3 个研究区域 4 个季度的样品中所占比重最大 ( 37%~76% ) ;其次为粒径 1.0~2.0 mm 的微塑料。总的来说 ,微塑料数量随着

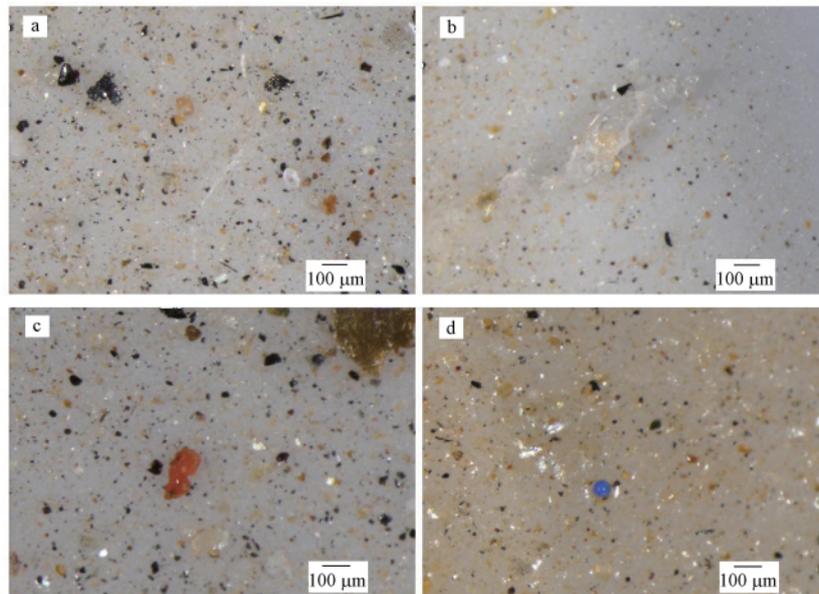


图 2 大气沉降微塑料的类型( a.纤维 b.薄膜 c.碎片 d.颗粒)

Fig.2 Microplastic types in atmospheric deposition ( a. fiber , b. film , c. fragment , d. granule)

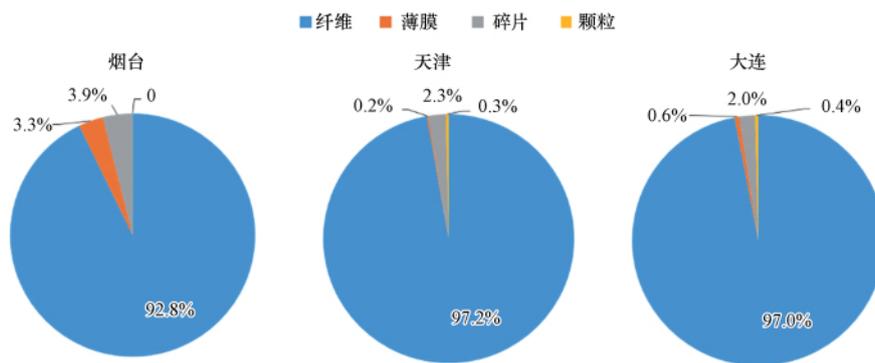


图 3 大气沉降微塑料类型的比例

Fig.3 Composition of microplastic types in atmospheric deposition

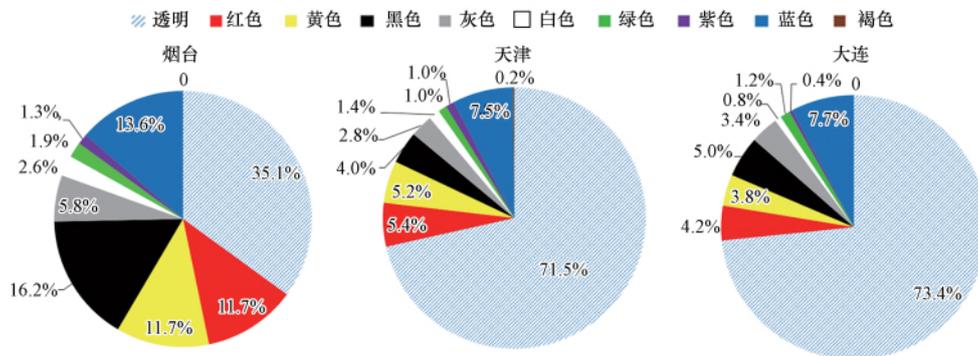


图 4 大气沉降微塑料颜色比例

Fig.4 Composition of microplastics colors in atmospheric deposition

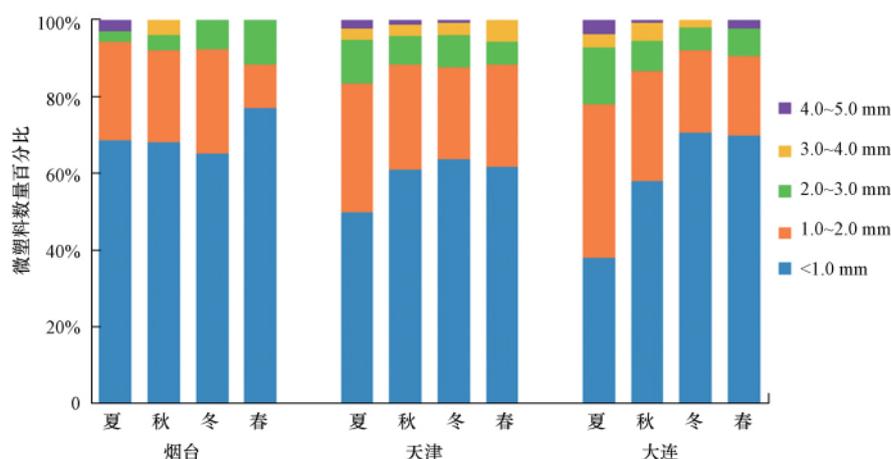


图5 不同采样点不同季度的微塑料粒径分布

Fig.5 The abundance percentage of various microplastic sizes from different seasons at different sampling sites

微塑料粒径的增大而快速递减.但由于微塑料检测方法的局限性,粒径 $<100\ \mu\text{m}$ 的微塑料和透明颜色的微塑料难以被辨别鉴定,由此可能会产生统计误差,导致粒径 $<100\ \mu\text{m}$ 微塑料和透明微塑料的数量被低估.

已有研究显示,在巴黎市区与郊区大气沉降样品中只观察到纤维类微塑料(Dris *et al.*, 2016),而在中国上海、东莞、烟台的大气沉降样品和中国39个主要城市的大气降尘样品中,纤维类微塑料占大部分(67%~95%)(Cai *et al.*, 2017; 周倩等, 2017; Liu *et al.*, 2019a; 2019b),这与本研究的结果相似.但Klein等(2019)在汉堡地区的研究中发现碎片类微塑料占绝大部分( $>90\%$ ),导致这种差异的主要原因可能是不同区域的微塑料来源不同.不同类型微塑料的聚合物成分不同,其来源也广泛而多样(Wang *et al.*, 2019; 赵新月, 2019).汉堡地区的微塑料以碎片类为主,其聚合物成分主要为聚乙烯和乙烯-乙酸乙烯酯共聚物,这类微塑料一般主要来源于塑料薄膜、薄片及电器配件的风化碎片(金世龙等, 2017).而本研究的微塑料中占比最高的类型为纤维类,其主要成分为赛璐玢和聚对苯二甲酸乙二醇酯,这类微塑料一般主要来源于包装纸和纺织纤维(Browne *et al.*, 2010).此外,大气微塑料样品的分析鉴定方法不同也是导致不同地区微塑料类型产生差异的原因之一.本研究和巴黎、东莞的研究都是采用体视显微镜观察后进行显微傅里叶红外光谱仪鉴定(Dris *et al.*, 2016; Cai *et al.*, 2017),由于碎片类微塑料粒径明显小于纤维类微塑料粒径,不易观察,可能导致对纤维类微塑料比例的高估.而

汉堡的研究方法是对滤膜进行尼罗红试剂染色后用荧光显微镜进行观察,有机物呈现明显的橙、红色,该实验方法对发现小粒径微塑料有明显优势.

Liu等(2019b)在上海的大气微塑料样品中观察到黑色、蓝色、红色、透明、棕色、绿色、黄色和灰色等多种颜色,且以蓝色(37%)和黑色(33%)为主.本研究在环渤海的3个城市大气样品中除了发现有上述透明、蓝色、黑色、红色、黄色、褐色、绿色、灰色等颜色的微塑料以外,还发现有白色和紫色微塑料,且3个城市大气中的微塑料颜色均以透明为主.这可能是因为不同研究区域的微塑料聚合物成分不同而导致.在上海的研究中发现微塑料以PET为主(49%),而本研究中的微塑料以赛璐玢为主( $>50\%$ ).

目前已有的文献报道表明,大气沉降微塑料的粒径以 $<1\ \text{mm}$ 为主,且微塑料的数量随着粒径增加明显减少,大粒径的微塑料较为罕见.这与本研究的微塑料粒径范围大致相同,提示小粒径的微塑料更容易在大气环境中漂浮和传输.

### 3.2 微塑料的聚合物成分分析

结合显微傅里叶红外光谱仪对3个研究区4个季度的微塑料样品进行聚合物成分鉴定,结果如图6所示.由图可知,超过半数(55.7%)的微塑料样品为赛璐玢,其次为PET,占35%以上,这两种聚合物占微塑料样品总数的90%以上,剩余部分由聚丙烯(PP)、乙烯-丙烯-二烯三元共聚物(Ethylene-propylene-diene, EPDM)、聚氨酯(Polyurethane, PU)、聚酰胺(Polyamide, PA)、聚丙烯酸乙酯(Polyethyl acrylate, PEA)、聚酯树脂(Alkyd resin, ALK)和聚醋酸乙烯酯(Polyvinyl acetate, PVAc)等组成.

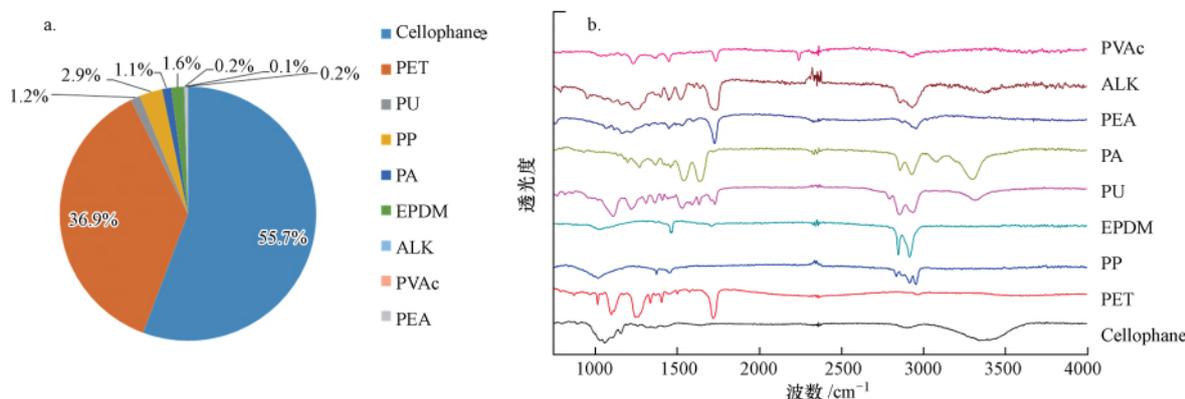


图 6 大气沉降微塑料的聚合物成分比例 (a) 和红外光谱图 (b)

Fig.6 Composition of polymer composition of atmospheric deposition microplastics (a) and FTIR spectrum of atmospheric deposition microplastics (b)

纤维类微塑料主要由赛璐玢和 PET 组成。赛璐玢又称玻璃纸,是一种是以棉浆、木浆等天然纤维为原料,用胶黏法制成的薄膜,广泛应用于商品的内衬纸和装饰性包装用纸。大块的赛璐玢在生产、运输、使用和废弃的过程中,可能发生破损、开裂的物理变化和光降解、生物降解等化学变化,进而形成微塑料并进入大气环境中。PET 又称涤纶,因具有高回弹性和耐磨性而广泛运用于纺织业和家具制造业,当产生机械磨损或纺织品衣服和床上用品损坏时可能会形成微塑料纤维。已有研究表明,衣物的家庭洗涤可能产生相当多的微塑料污染 (Browne *et al.*, 2010)。此外,当晾晒纺织品时,合成纺织品将暴露于紫外线照射和热环境中,由此产生的光氧化和热效应 (Song *et al.*, 2017),易促使纺织品分解和降解成纤维类微塑料,从而进入大气环境中造成微塑料污染。

碎片类微塑料主要由 EPDM 组成。EPDM 因具有良好的耐化学性和电绝缘性等,被广泛应用于汽车部件、建筑用防水材料、电线电缆护套等领域 (崔小明, 2018)。因其磨损和损耗产生的微塑料碎片可从地表灰尘或垃圾填埋场的表面被风吹走而进入大气环境中 (Prata *et al.*, 2018)。

### 3.3 微塑料的表面形貌特征

大气沉降微塑料具有复杂的表面形貌,且与微塑料的类型密切相关。纤维类微塑料总体仍呈丝状 (图 7a),顶端较为平滑,边缘未出现明显老化痕迹 (图 7b),但其表面存在明显裂纹和孔隙 (图 7c)。颗粒类微塑料的边缘则出现较明显老化痕迹,表面风化程度明显,以孔隙为主 (图 7d)。

环境中的微塑料由于长时间受到环境风化、侵

蚀等作用,其表面发生裂化、老化等变化,主要表现特征是表面纹理粗糙,并伴有不规则孔隙。微塑料由于颗粒小、疏水性强、比表面积大,导致表面可容纳较多的其他粒子,比表面积、表面形貌、孔隙度等是影响其吸附有毒有害污染物的主要因素。微塑料可吸附持久性有机污染物 (Persistent Organic Pollutants, POPs)、多环芳烃、重金属和病原体等有毒有害物质 (Antunes *et al.*, 2013; Cole *et al.*, 2014; Tan *et al.*, 2019)。大气环境中小粒径的微塑料纤维和颗粒易被人体吸入呼吸道并沉积在肺部 (Pauly *et al.*, 1998),或通过沉降至地面灰尘并经口摄入而进入人体,从而引发潜在的人体健康风险。

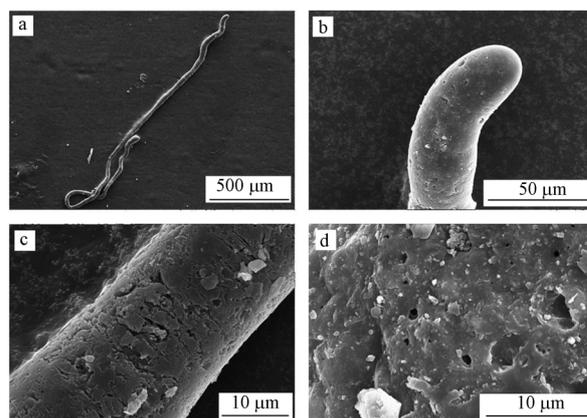


图 7 大气沉降微塑料的表面微观形貌 (a, b, c. 纤维类微塑料, d. 颗粒类微塑料)

Fig.7 Micro-morphology of the surface of microplastics in atmospheric deposition samples (a, b, c. fibers microplastics, d. granules microplastics)

### 3.4 大气微塑料沉降通量的时空分布特征

根据不同研究区的微塑料丰度,采用式 (1) 计

算可知,烟台、天津和大连 3 个海岸城市大气微塑料的沉降通量分别为 35.7~154.4、119.0~327.1 和 98.4~391.4 粒·m<sup>-2</sup>·d<sup>-1</sup>,其中,最大值出现在 2018 年大连的夏季样品,为 391.4 粒·m<sup>-2</sup>·d<sup>-1</sup>,最小值出现在 2018 年烟台的秋季样品,为 35.7 粒·m<sup>-2</sup>·d<sup>-1</sup>.烟台、天津、大连 4 个季度的微塑料平均沉降通量分别为 74.8、244.9 和 197.7 粒·m<sup>-2</sup>·d<sup>-1</sup>,其中,天津的微塑料沉降通量显著高于烟台 ( $p < 0.05$ );天津和大连的微塑料沉降通量差异不显著;大连的微塑料沉降通量相对高于烟台,但差异不显著.由图 8 所知,秋季、冬季和春季微塑料最大沉降通量发生在天津,而夏季微塑料最大沉降通量发生在大连.3 个研究区的微塑料沉降通量的季节性分布并不规律,具体表现为:烟台:冬>春>夏>秋;天津:夏>冬>秋>春;大连:夏>秋>冬>春.

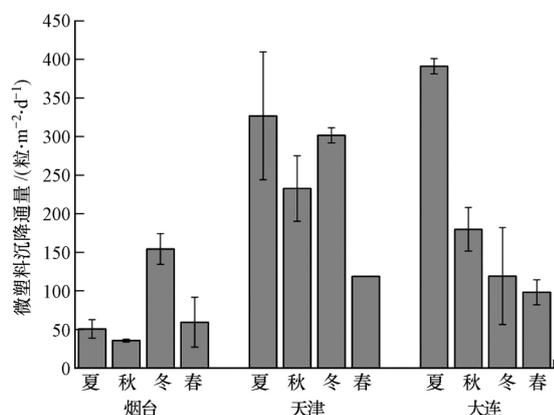


图 8 烟台、天津、大连不同季度的微塑料沉降通量

Fig.8 Deposition fluxes of microplastics in Yantai, Tianjin and Dalian in different seasons

目前大气微塑料污染研究尚无统一可对比的方法,不同方法可能会对微塑料污染特征产生影响.研究表明,采样点的位置对大气微塑料的类型和沉降通量有较大影响(Liu *et al.*, 2019b).由图 1 可知,天津和大连的采样点设置于市区,建筑密度和道路密度大致相同;烟台的采样点设置于郊区,建筑密度和道路密度明显低于天津和大连.由于人类活动、道路灰尘和轮胎磨损等均会影响微塑料的沉降通量(Magnusson *et al.*, 2016; Boucher *et al.*, 2017),因此,市区采样点(天津、大连)的微塑料沉降通量大于郊区采样点(烟台).东莞(Cai *et al.*, 2017)和巴黎(Dris *et al.*, 2015)不同研究区的大气微塑料污染特征调查结果同样表明,市区微塑料沉降通量高于郊区,这与本研究所得结果相同.但汉堡的研究结果

显示,位于森林的郊区采样点的微塑料沉降通量高于市区,主要因为滞尘效应的影响(Klein *et al.*, 2019).植物叶片表面的特性和本身的湿润性决定了植物具有较强的滞尘能力,在重力和风的作用下,通过其枝叶对微塑料的截留和吸附作用,微塑料可沉降在植物表面,然后被降水冲刷下来,进而影响微塑料沉降通量.此外,本研究的 3 个采样点的海拔虽然也有所差异,但 Liu 等(2019b)研究表明,当采样点位于对流层时,气流对流混合效果明显,可使大气环境中的微塑料均匀垂直分布,对微塑料沉降通量无显著影响.采样设备的口径会影响所收集到的微塑料数量,但由于本研究在计算和比较微塑料沉降通量时是以单位面积为标准,故采样设备的口径对微塑料的沉降通量不会产生较大影响.

周倩等(2017)研究发现,烟台大气微塑料沉降通量具有显著的季度差异,导致微塑料沉降通量季节差异的因素主要包括风速、风向、降水、温度等(Liu *et al.*, 2019b).本研究不同季度的微塑料沉降通量间存在着相对差异,但也有研究表明,降水量与大气微塑料沉降通量之间并不存在显著相关性(Klein *et al.*, 2019; 周倩等, 2017).本研究中,天津和大连的大气微塑料沉降通量在降水量最多的夏季最大,而烟台的大气微塑料沉降通量在降水量相对较少的冬季最大.这一方面可能与冬季降雪增大了大气微塑料沉降有关;另一方面,春节期间大量燃放烟花爆竹向空气中输送了大量的颗粒态物质,这可能进一步加速了大气微塑料的沉降(Tandon *et al.*, 2008).

大气环境中微塑料通过传输和沉降成为陆海环境中微塑料的一个重要来源(Liu *et al.*, 2019b).本研究的 3 个采样点离海岸线的距离分别为 0.1、6 和 1 km,基本上反映了大气微塑料沉降至渤海海面的状况.以本研究所观察到的微塑料污染特征为基准,烟台、天津和大连研究区域单位面积微塑料年沉降数量分别为  $2.7 \times 10^4$ 、 $8.9 \times 10^4$  和  $7.37 \times 10^4$  粒·m<sup>-2</sup>.经扫描电子显微镜图像观察,纤维类微塑料近似截面面积为 100 μm<sup>2</sup>,薄膜类微塑料近似截面面积为 500 μm<sup>2</sup>,碎片类微塑料宽度为 1500 μm,颗粒类微塑料厚度为 10 μm.结合微塑料粒径长度、截面面积和密度,可计算出单个微塑料质量.以 100 km<sup>2</sup>为研究面积,可估算出烟台、天津和大连 3 个城市每年通过大气沉降进入渤海中的微塑料总质量分别为 0.23、1.0 和 0.73 t.周倩等(2017)估算了

烟台地区(160 km<sup>2</sup>)每年通过大气沉降的微塑料质量为0.9~1.4 t,这与本研究存在差异.这一方面是由于周倩等的采样点设置于市区,而本研究采样点设置于郊区,由于人类活动、道路灰尘和轮胎磨损等均会影响微塑料的沉降通量,进而导致微塑料沉降通量产生不同;另一方面是由于周倩等假设微塑料类型均为纤维类,按照广泛应用于纺织业聚酰胺和聚酯的密度进行估算(Dris *et al.*, 2016),而本研究按照实际采集的微塑料类型、粒径和成分进行估算,可以更加准确地估算出大气环境中微塑料的沉降对渤海环境中微塑料污染的贡献.

#### 4 结论(Conclusions)

1) 烟台、天津和大连的大气沉降样品中存在纤维、薄膜、碎片和颗粒4种类型的微塑料,以纤维类微塑料为主;微塑料主要颜色为透明、蓝色、红色、黑色,以透明微塑料为主;大部分微塑料粒径小于1 mm;微塑料主要成分为赛璐玢和聚对苯二甲酸乙二醇酯.大气沉降微塑料表面存在明显的裂缝和孔隙,表面风化程度明显.

2) 烟台、天津和大连的大气微塑料沉降通量存在差异,微塑料沉降通量季节性变化规律不明显.烟台、天津和大连研究区域单位面积微塑料年沉降数量分别为 $2.7 \times 10^4$ 、 $8.9 \times 10^4$ 和 $7.37 \times 10^4$ 粒·m<sup>-2</sup>.

3) 大气环境中的微塑料是海岸及近海区域微塑料的重要来源,未来仍需加强采样点动态数据的观测,并进一步加强大气环境中微塑料的人体呼吸暴露与健康风险研究.

责任作者简介: 骆永明(1962—),男,博士,中国科学院南京土壤研究所研究员,博士生导师,主要从事土壤污染与修复,环境微塑料污染与管控等方面的研究.

#### 参考文献(References):

- Allen S, Allen D, Phoenix V R, *et al.* 2019. Atmospheric transport and deposition of microplastics in a remote mountain catchment [J]. *Nature Geoscience*, 12: 339-344
- Antunes J C, Frias J G L, Micaelo A C, *et al.* 2013. Resin pellets from beaches of the Portuguese coast and adsorbed persistent organic pollutants [J]. *Estuarine Coastal and Shelf Science*, 130(4): 62-69
- 包旭辉, 闫振华, 陆光华. 2019. 我国淡水中微塑料的污染现状及生物效应研究 [J]. *水资源保护*, 35(6): 115-123
- Boucher J, Friot D. 2017. Primary Microplastics in the Oceans: A Global Evaluation of Sources [M]. Gland, Switzerland: IUCN
- Browne M A, Galloway T S, Thompson R C. 2010. Spatial patterns of plastic debris along estuarine shorelines [J]. *Environmental Science & Technology*, 44(9): 3404-3409
- Cai L Q, Wang J D, Peng J P, *et al.* 2017. Characteristic of microplastics in the atmospheric fallout from Dongguan city, China: preliminary research and first evidence [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 24: 24928-24935
- Cole M, Webb H, Lindeque P K, *et al.* 2014. Isolation of microplastics in biota-rich seawater samples and marine organisms [J]. *Scientific Reports*, 4(4528): 1-8
- 崔小明. 2018. 国内外乙丙橡胶市场分析 [J]. *中国橡胶*, 34(2): 34-39
- Dris R, Gasperi J, Rocher V, *et al.* 2015. Microplastic contamination in an urban area: a case study in Greater Paris [J]. *Environmental Chemistry*, 12(5): 592-599
- Dris R, Gasperi J, Saad M, *et al.* 2016. Synthetic fibers in atmospheric fallout: A source of microplastics in the environment? [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 104: 290-293
- Gago J, Carretero O, Filgueiras A V, *et al.* 2018. Synthetic microfibers in the marine environment: A review on their occurrence in seawater and sediments [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 127: 365-376
- Hidalgo-Ruz V, Gutow L, Thompson R C, *et al.* 2012. Microplastics in the marine environment: A review of the methods used for identification and quantification [J]. *Environmental Science & Technology*, 46(6): 3060-3075
- 简敏菲, 周胤隆, 余厚平, 等. 2018. 鄱阳湖-饶河入湖段湿地底泥中微塑料的分离及其表面形貌特征 [J]. *环境科学学报*, 38(2): 579-586
- Jiang C B, Yin L S, Li Z W, *et al.* 2019. Microplastic pollution in the rivers of the Tibet Plateau [J]. *Environmental Pollution*, 249: 91-98
- 金世龙, 郝斌茹, 厉娜, 等. 2017. 乙烯-乙酸乙烯酯共聚物接枝聚合物的合成、表征及应用新进展 [J]. *化工进展*, 36(10): 3757-3764
- Klein A, Fischer E K. 2019. Microplastic abundance in atmospheric deposition within the metropolitan area of Hamburg, Germany [J]. *Science of the Total Environment*, 685: 96-103
- Li L Y, Su L, Cai H W, *et al.* 2019. The uptake of microfibers by freshwater Asian clams (*Corbicula fluminea*) varies based upon physicochemical properties [J]. *Chemosphere*, 221: 107-114
- Liu C G, Li J, Zhang Y L, *et al.* 2019a. Widespread distribution of PET and PC microplastics in dust in urban China and their estimated human exposure [J]. *Environment International*, 128: 116-124
- Liu K, Wang X H, Fang T, *et al.* 2019b. Source and potential risk assessment of suspended atmospheric microplastics in Shanghai [J]. *Science of the Total Environment*, 675: 462-471
- 刘启明, 梁海涛, 锡桂莉, 等. 2019. 厦门湾海滩微塑料污染特征 [J]. *环境科学*, 40(3): 1217-1221
- 刘沙沙, 付建平, 郭楚玲, 等. 2019. 微塑料的环境行为及其生态毒性研究进展 [J]. *农业环境科学学报*, 38(5): 957-969
- 骆永明, 周倩, 章海波, 等. 2018. 重视土壤中微塑料污染研究 防范生态与食物链风险 [J]. *中国科学院院刊*, 33(10): 1021-1030
- Magnusson K, Eliasson K, Fråne A, *et al.* 2016. Swedish sources and pathways for microplastics to the marine environment [R]. C183. Sweden: IVL Swedish Research Institute. 73
- Pauly L J, Stegmeier S J, Allaart H A, *et al.* 1998. Inhaled cellulosic and plastic fibers found in human lung tissue [J]. *Cancer Epidemiology*

- Biomarkers & Prevention 7( 5) : 419-428
- Peng X ,Chen M ,Chen S ,*et al.* 2018. Microplastics contaminate the deepest part of the world's ocean [J]. *Geochemical Perspectives Letters* 9: 1-5
- Prata ,Correia J. 2018. Airborne microplastics: Consequences to human health? [J]. *Environmental Pollution* 234: 115-126
- Rochman C M ,Browne M A ,Halpern B S ,*et al.* 2013. Policy: Classify plastic waste as hazardous[J]. *Nature* 494( 7436) : 169-171
- Rodrigues M O ,Gonçalves A M M ,Gonçalves F J M ,*et al.* 2018. Effectiveness of a methodology of microplastics isolation for environmental monitoring in freshwater systems [J]. *Ecological Indicators* 89: 488-495
- Song Y K ,Hong S H ,Jang M ,*et al.* 2017. Combined Effects of UV Exposure Duration and Mechanical Abrasion on Microplastic Fragmentation by Polymer Type [J]. *Environmental Science and Technology* 51( 8) : 4368-4376
- Tan X L ,Yu X B ,Cai L Q *et al.* 2019. Microplastics and associated PAHs in surface water from the Feilaixia Reservoir in the Beijing River , China[J]. *Chemosphere* 221: 834-840
- Tandon A ,Yadav S ,Attri A K. 2008. City-wide sweeping a source for respirable particulate matter in the atmosphere [J]. *Atmospheric Environment* 42( 5) : 1064-1069
- Thompson R C ,Olsen Y ,Mitchell R P *et al.* 2004. Lost at sea: Where is all the plastic? [J]. *Science* 304( 5672) : 838-838
- Wang L ,Zhang J J ,Hou S G *et al.* 2017. A simple method for quantifying polycarbonate and polyethylene terephthalate microplastics in environmental samples by liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. *Environmental Science and Technology* ,4( 12) : 530-534
- Wang T ,Zou X Q ,Li B J ,*et al.* 2019. Preliminary study of the source apportionment and diversity of microplastics: Taking floating microplastics in the South China Sea as an example [J]. *Environmental Pollution* 245( 2019) : 965-974.
- Xiong X ,Zhang K ,Chen X C ,*et al.* 2018. Sources and distribution of microplastics in China's largest inland lake-Qinghai Lake [J]. *Environmental Pollution* 235: 899-906
- 赵新月. 2019. 海岸带环境中大塑料和微塑料的组成、鉴别及来源研究[D]. 烟台: 中国科学院大学(中国科学院烟台海岸带研究所)
- 周倩 ,田崇国 ,骆永明. 2017. 滨海城市大气环境中发现多种微塑料及其沉降通量差异[J]. *科学通报* 62( 33) : 3902-3909