

实验技术与方法

一次性纸杯中聚乙烯微塑料的检测方法研究

刘德晔¹,王勇²,王磊²,吉文亮¹

(1. 江苏省疾病预防控制中心,江苏南京 210009;2. 南京市公安局刑事科学技术研究所,江苏南京 210009)

摘要:目的 建立使用聚乙烯内涂层的一次性纸杯在使用过程中聚乙烯微塑料脱落的检测方法。方法 采用过氧化氢消解,碳酸氢钠溶液超声去除残留过氧化氢,乙醇分散,后利用银膜过滤,收集纸杯水样中的聚乙烯微塑料,使用显微拉曼光谱法对滤膜上的微塑料进行检测。采用扫描电镜和显微拉曼光谱研究样品前处理效果。结果 经优化,使用23%(v/v)过氧化氢消解可有效消除自来水中多种物质的干扰,加入量为5.0 g/L碳酸氢钠,辅以超声可有效分解消解液中残留的过氧化氢,在消解液中加入25%(v/v)的乙醇可有效分散体系中微塑料,使得过滤时微塑料能够均匀分散在银膜表面。本文定量检测一次性纸杯在正常使用过程中聚乙烯微塑料的脱落情况,方法检出限为1 877.7 p/L,相对标准偏差为9.7%~27.5%,回收率为98%~111%。结果表明使用聚乙烯内涂层的一次性纸杯饮水,在使用过程中释放出2 500~20 000 p/L大于2 μm的聚乙烯微塑料。结论 本文建立的聚乙烯微塑料前处理方法可解决传统方法存在的银膜腐蚀和微塑料分散不均匀难题,获得较好的精密度和回收率,能够用于实际样品的检验。检验结果表明,使用聚乙烯内涂层的一次性纸杯在使用过程中会带来微塑料健康风险。

关键词:聚乙烯微塑料;显微拉曼光谱;扫描电镜;前处理

中图分类号:R155

文献标识码:A

文章编号:1004-8456(2024)10-1147-06

DOI:10.13590/j.cjfh.2024.10.007

Study on detection method of polyethylene microplastics in disposable paper cup

LIU Deyue¹, WANG Yong², WANG Lei², JI Wenliang¹

(1. Jiangsu Provincial Center for Disease Control and Prevention, Jiangsu Nanjing, 210009, China;

2. Institution of Forensic Science and Technology of Nanjing Public Security Bureau,
Jiangsu Nanjing, 210009, China)

Abstract: Objective To establish a detection method for the detachment of polyethylene microplastics during the use of disposable paper cups with polyethylene inner coating. **Methods** The method employed hydrogen peroxide digestion, sodium bicarbonate solution ultrasonic removal of residual hydrogen peroxide, ethanol dispersion, and then silver membrane filtration to collect polyethylene microplastics from paper cup water samples. Micro-Raman spectroscopy was applied to detect the microplastics on the filter membrane. And scanning electron microscopy (SEM) and micro-Raman Spectroscopy were introduced to study the pre-treatment processes. **Results** After optimization, the concentration of 23% (v/v) hydrogen peroxide could eliminate the interference of matrix in samples. The addition of 5.0 g/L sodium bicarbonate, combined with ultrasound, could totally decompose the residual hydrogen peroxide in the digestion solution. Adding 25% (v/v) ethanol to the digestion solution could effectively disperse microplastics in the system, so that microplastics were then uniformly dispersed on the surface of the silver film during filtration. Further, the detachment of polyethylene microplastics from disposable paper cups was quantitatively detected. The detection limit was calculated as 1 877.7 p/L, the relative standard deviation was 9.7%~27.5%, and the recovery rate was 98%~111%. Results indicated that disposable paper cups coated with polyethylene could release 2 500~20 000 p/L (>2 μm) microplastics in water. **Conclusion** Compared with traditional pre-treatment processes, our method could solve the problems of silver film corrosion and uneven dispersion of microplastics. The results of real samples detection suggested that disposable paper cups coated with polyethylene can bring health risks by microplastics during use.

Key words: Polyethylene microplastics; micro-Raman spectroscopy; scanning electron microscope; pretreatment process

收稿日期:2024-05-11

基金项目:江苏省卫生健康委医学课题面上项目(H2023047);江苏省医学重点学科(实验室)(ZDXKA2016008)基金资助

作者简介:刘德晔 男 主任技师 研究方向为理化检验 E-mail:22929904@qq.com

通信作者:吉文亮 男 主任技师 研究方向为理化检验 E-mail:641827872@qq.com

聚乙烯是一类用途广泛的高分子材料,用于塑料制品制作、食品包装材料、薄膜制作等生产、生活领域。聚乙烯在存放、运输、使用过程中因物理、自然老化等因素发生撕裂、破碎,进而产生碎片,其中粒径小于5 mm的碎片颗粒物属于微塑料^[1]。微塑料比表面积大,易吸附有毒有害物质,会对生物体、环境造成伤害。一次性纸杯广泛使用聚乙烯作为内壁涂层^[2],在使用过程中聚乙烯涂层会因各种因素部分脱落、破碎,形成微塑料,被人饮用后造成健康风险。

评估一次性纸杯中聚乙烯微塑料脱落的健康风险应建立在准确检测微塑料的基础上。目前,针对聚乙烯微塑料的主流定量方法为显微计数法。使用显微计数法要求液体试样中微塑料富集在滤膜上,进而在各类显微镜下定性和定量。使用的仪器有普通光学显微镜^[3]、显微红外^[4]、显微拉曼^[5]、扫描电镜^[6]等。液体基质中微塑料的前处理方法主要有密度浮选法^[7-8]、湿法消解法^[9-12]等,以上方法处理后的液体试样过滤,微塑料颗粒富集于滤膜上,观察并计数。使用的滤膜种类主要有高分子聚合物滤膜、玻璃纤维滤膜、金属滤膜^[7,13-14]等。微塑料定量检测的核心在于合理选择样品前处理方法。一次性纸杯所盛的水为自来水,有大量其他颗粒物,影响镜下观察,在定性定量时造成干扰。因此,有必要对样品进行前处理,去除其他颗粒物,保留目标物。

每一类样品体系中每一种微塑料的检测都需进行针对性优化。因此,与微塑料检测相关的文献^[15-17]使用的前处理方法应更加细致地验证,确保真实可用。液体样品前处理方法主要有密度浮选法和湿法消解法。密度浮选法较温和,但不能消除有机颗粒物的干扰,在收集时易发生微塑料的损失,回收率不高。此外,密度浮选法大量使用氯化钠、氯化钙、氯化镁等无机盐,造成试剂浪费和环境污染。湿法消解法主要分为强碱消解、强酸消解、过氧化氢消解和混合消解法。使用强碱消解和强酸消解易导致微塑料的损失,使用过氧化氢消解相对温和,本文选用过氧化氢消解消除干扰。

本文聚焦聚乙烯微塑料的样品处理方法,解决微塑料定量检测过程中消解液影响、颗粒物团聚、回收率低等实际问题。本文采用湿法消解一次性纸杯浸泡的水样,银滤膜收集颗粒物,显微拉曼光谱定性定量检测聚乙烯微塑料,取得良好效果。本文的前处理方法对使用过氧化氢消解体系的微塑料检测有一定普适性,改进后可推广用于其他微塑料的准确检测。

1 材料与方法

1.1 仪器与试剂

inViaQontor 显微拉曼光谱仪(英国 Renishaw 公司);Quanta650 型扫描电镜(美国 FEI 公司);E180h 型恒温超声清洗仪器(德国 Elma 公司);SHB-IIIG 循环水真空泵(郑州长城科工贸有限公司);银滤膜,孔径 0.2 μm ,直径 47 mm(美国, Sterlitech);实验器皿为玻璃材质并用纯水充分洗涤。

分析纯过氧化氢、碳酸氢钠(南京化学试剂厂),色谱纯乙醇(德国默克公司);符合 GB/T 6682 的二级纯水,使用前用银膜过滤;取 20 mg 聚乙烯微塑料标准品(10~45 μm 粒径,美国 Sigma 公司)于玻璃试管中,25%(v/v)乙醇水溶液定容至 10 mL,临用现配。

1.2 仪器参考条件

使用显微拉曼光谱仪白光观察滤膜,观察到颗粒物使用激光拉曼光谱分析,条件为:激光波长 785 nm,拉曼光谱分析激光功率 10%,曝光时间 10 s,累积次数 1 次,波长范围 100~3 200 cm^{-1} 。

使用扫描电镜观察滤膜,加速电压 10 kV,放大倍数 50~1 000 倍,表面未镀导电层。

1.3 样品制备

收集内涂层为聚乙烯材质的一次性纸杯 8 种,每种 3 个平行样品,其中 4 种为近期生产,编号 1~4,另外 4 种存放时间超过两年,编号 5~8,测试前用纯水荡洗备用。将无聚乙烯微塑料本底的南京市自来水烧开,倒入纸杯至 2/3 处自然冷却,模拟日常使用。检测时采集纸杯中水样体积 20 mL,每次取样前摇匀。

1.4 样品处理

1.4.1 样品消解方法

考虑到一次性纸杯所盛的自来水基质相对简单,本文采用 23%(v/v)过氧化氢湿法消解待测样品。将上述 20 mL 水样加 6 mL 过氧化氢水浴消解,消解温度 45 $^{\circ}\text{C}$,时间 24 h。

1.4.2 祛除剩余过氧化氢条件选择

在消解后的样品溶液中加入碳酸氢钠,恒温超声可去除体系中过量过氧化氢。选择 5.0 g/L 碳酸氢钠加入量,超声温度 40 $^{\circ}\text{C}$,超声时长 3 h 可有效祛除过氧化氢。

1.4.3 微塑料的分散

采用乙醇作为分散剂分散消解后水样中团聚的微塑料。测试乙醇加入量 10%~40%(v/v),发现当加入量为 25%(v/v)时可取得较好的分散效果。

1.5 定性和定量分析

1.5.1 定性方法

使用显微拉曼光谱仪对观察到银滤膜上的颗

颗粒物进行光谱分析并与聚乙烯微塑料标准拉曼光谱进行比较,当光谱特征峰与标准品匹配则该颗粒物为聚乙烯微塑料。考虑到颗粒物粒径小于 $2\ \mu\text{m}$ 拉曼光谱不稳定,因此本实验对大于 $2\ \mu\text{m}$ 的颗粒物进行定性分析。

1.5.2 定量计数

显微拉曼光谱法对整张滤膜进行扫描耗时与选择的分辨率以及滤膜面积有关,普遍需数小时至几十小时,样品量较大时并不适用。考虑到经前处理,样品背景干扰低,颗粒物在滤膜上分散均匀,本文采用随机选择4个一定面积的视场,对视场内滤膜上聚乙烯微塑料计数,用泊松分布计算95%置信区间,进而计算出全滤膜待测物总数的方法。计数方法:在每张滤膜非边缘处随机选取3个 $5\ \text{mm}\times 5\ \text{mm}$ 区域,扫描电镜观察消解对聚乙烯微塑料形貌的影响,同时放大观察,对直径大于 $2\ \mu\text{m}$ 的微塑料计数。该方法极大地降低了样品检测时间,提高了检测效率。该定量方法参考了美国 EPA 测定水中石棉的方法^[18]。

1.5.3 方法检出限、精密度和回收率

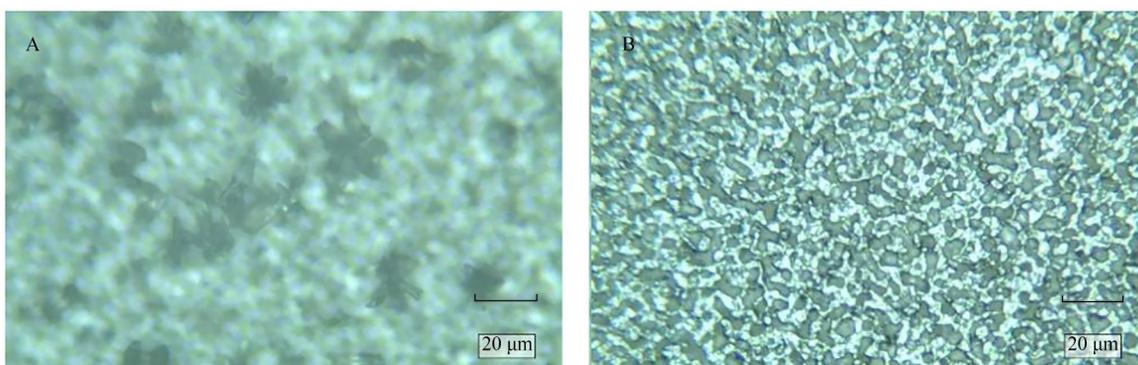
本方法为计数法,检出即计数。本方法检出限

为通过泊松分布计算而得,即在视野范围内未见到微塑料颗粒,则单边置信区间为 $0\sim 2.99$ 个^[18]。本方法取 $20\ \text{mL}$ 样品,采用的银滤膜直径 $47\ \text{mm}$,其有效直径 $40\ \text{mm}$,随机选择滤膜上 $5\ \text{mm}\times 5\ \text{mm}$ 的4个区域,则检出限为 $1\ 877.7\ \text{p/L}$ 。本方法精密度和回收率通过平行测定($n=6$)纯水加标样品获得。

2 结果和讨论

2.1 消解方式

本文采用过氧化氢湿法消解待测样品。在显微拉曼白光下观察滤膜,结果如图1所示。图1A可见,自来水若不经消解直接过滤,滤膜上残留大量颗粒物,影响检测。消解后干扰的颗粒物基本消失,有利于目标物的检测(图1B)。样品消解既要降低干扰,更要确保目标物不损失、不变性。很多氧化性的消解方式会导致微塑料损失,一是形貌改变,如原来不规则、有棱角变得圆润,或者原粒径较大,消解过程中发生碎裂;二是表面的化学基团改变,如颗粒物表面被氧化后主要的官能团消失或者增加新的官能团,此时拉曼光谱会发生显著改变。



注:A为自来水直接过滤;B为自来水消解,去除残留过氧化氢后过滤

图1 过氧化氢消解效果(100×)

Figure 1 Effect of elimination of hydrogen peroxide (100×)

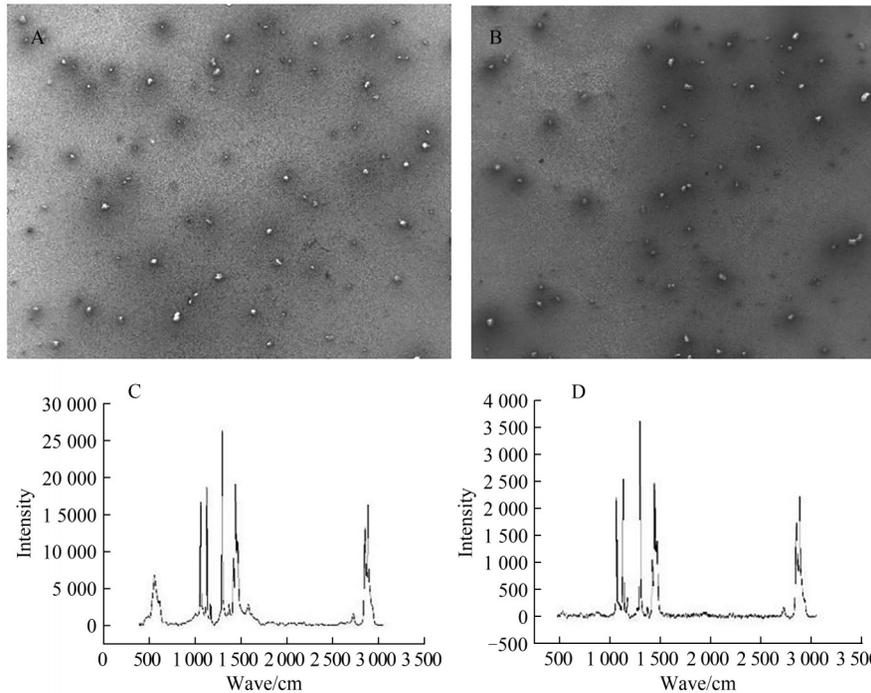
标准品特征形貌和拉曼光谱如图2所示,图2A~B可见,消解前后标准品形貌特点和大小几乎未发生改变,图2C~D可见消解前后标准品拉曼光谱未发生改变(消解前后共计20个聚乙烯微塑料拉曼光谱特征一致)。表1计数结果表明,消解前后滤膜各随机区域颗粒物分布均匀,平均回收率在合理范围内。证明本方法采用的消解方法温和、有效,能够在消除水中干扰物的同时确保待测物不变性、不损失。此外,由表1计算可得, $100\ \mu\text{L}$ 标准品母液分散在 $20\ \text{mL}$ 纯水中,大于 $2\ \mu\text{m}$ 聚乙烯微塑料计数浓度为 $260\ 194.4\ \text{p/L}$ 。

2.2 残留过氧化氢的消除

湿法消解后,消解液中存在大量残留的过氧化

氢,过滤时易在银膜表面发生催化分解,反应剧烈,使银膜表面变性,发生剥落、孔径变大、堵塞,最终使得过滤困难,颗粒物分布不均匀。样品溶液中残留的过氧化氢除了影响金属滤膜的过滤效果,亦会对部分高分子聚合物滤膜造成腐蚀,同样影响过滤效果。因此,有必要消除残留的过氧化氢提高微塑料检测准确度。本文在未加入微塑料标准品的前提下,选择 $5.0\ \text{g/L}$ 碳酸氢钠加入量,超声温度 $40\ ^\circ\text{C}$,超声时长 $3\ \text{h}$ 去除过量过氧化氢,对比测试效果,如图3所示。

图3A可见,体系中过量的过氧化氢在过滤时腐蚀银膜,造成形貌改变,部分区域发生剥落,孔径不均匀,普遍堵塞,极大影响过滤效果。图3B可



注:(A)标准品形貌电镜图,(B)消解后标准品形貌电镜图,(C)标准品典型的拉曼光谱图,(D)消解后标准品拉曼光谱图

图2 消解对聚乙烯微塑料影响

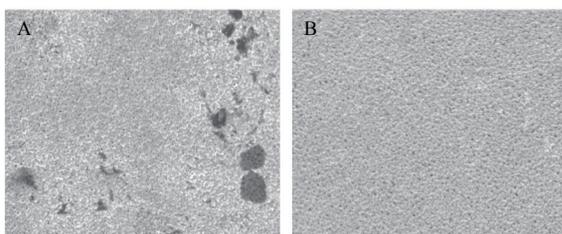
Figure 2 The influence of digestion on polyethylene microplastics

表1 随机区域聚乙烯微塑料计数

Table 1 Random area polyethylene microplastic counting

随机视场	1	2	3	单区域平均 计数	平均回 收率/%
未消解标准	标准1 88	标准2 78	标准3 102	103.7±13.1	104
	标准2 112	标准3 129	标准1 104		
	标准3 90	标准1 111	标准2 119		
消解后标准	标准1 109	标准2 121	标准3 92	108.4±10.7	
	标准2 129	标准3 125	标准1 105		
	标准3 97	标准1 90	标准2 108		

取得较好的分散效果。如图4所示,未加入乙醇分散的试管中微塑料大部分聚集在消解液上部,沿着试管壁团聚,在倾倒过滤时显然会发生大量损失。加入乙醇的消解液中微塑料标准品在混匀30 min内分散均匀,未发生团聚和分层,过滤时颗粒物均匀分布在银膜上,效果见图2A~B。此外,表1中各视场计数的均匀性亦可证明本实验使用乙醇分散的必要性。



注:(A)未去除过量过氧化氢,(B)去除过量过氧化氢

图3 过氧化氢消解后银滤膜表面形貌

Figure 3 SEM imagen (150×) of the surface morphology of silver filter membrane after filtration

见,在去除体系中过量过氧化氢后,滤膜表面完整,形貌不发生改变,不影响过滤效果。

2.3 微塑料的分散

聚乙烯微塑料憎水性强,易在消解液 中发生团聚、分层、贴试管壁,转移过滤时微塑料易残留在容器中,造成损失。在取聚乙烯微塑料标准品加入消解液中,充分摇匀后静置30 min,考察乙醇分散效果。结果表明,当溶液含有25%(v/v)乙醇时,即可



注:左比色管为未加入乙醇分散,右比色管为加入乙醇分散

图4 微塑料标准品在消解液中的赋存状态

Figure 4 The state of the PE microplastic standards in the digestion solution

2.4 精密度和回收率

取20 mL纯水,加入20、50、100 μL微塑料母液,按照上述方法前处理,过滤后上机,在滤膜上随机选择5 mm×5 mm的4个区域,使用显微拉曼对大于2 μm的颗粒物进行定性分析,若为聚乙烯材质则计

数。上述加标样分别平行测定 6 次,结果如表 2 所示,当加标溶液中微塑料计数浓度较低时,方法 RSD 较大,是因为当加标液体积为 20 μL 时,4 个随机视场

微塑料计数值低于中、高浓度体积加标。由泊松分布可得,计数个数越少其 95% 置信区间相对越大,因此相对标准偏差较大。

表 2 方法精密度和回收率($n=6$)
Table 2 Precisions and recoveries ($n=6$)

加标液体积/ μL	平均计数/(p/L)	精密度 RSD/%	回收率/% [*]
0	<1 877.7	/	/
20	51 077.3	27.5	98
50	136 485.3	15.2	105
100	289 298.7	9.7	111

注:*由表 1 可得,100 μL 标准品母液分散在 20 mL 纯水中,大于 2 μm 聚乙烯微塑料平均计数浓度为 260 194.4 p/L

2.5 实际样品检测

聚乙烯内涂层的一次性纸杯在使用过程中涂层发生剥落,产生微塑料,通过检测水样中的微塑料反映其脱落情况。8 种一次性纸杯($n=3$),加入 100 $^{\circ}\text{C}$ 热水后冷却,每个纸杯分别在 10、20、30 min 取样 20 mL。将水样按照上述步骤进行前处理,检测不同时间脱落聚乙烯微塑料数量。脱落的聚乙烯微塑料典型形貌如图 5 所示,拉曼光谱特征峰与图 2D 一致。

随机选择滤膜上 5 mm \times 5 mm 的 4 个区域,对大

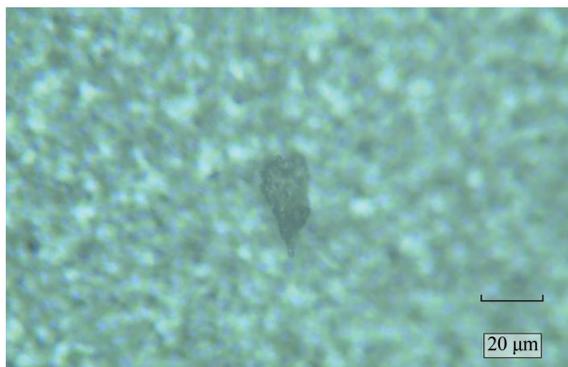


图 5 一次性纸杯脱落的聚乙烯微塑料

Figure 5 Polyethylene microplastics detached from a disposable paper cup

于 2 μm 的颗粒物进行定性分析,若为聚乙烯则计数,结果如表 3 所示。

表 3 可见,使用聚乙烯内涂层的一次性纸杯饮水,在使用过程中释放出 2 500~20 000 p/L 大于 2 μm 的聚乙烯微塑料。结果还表明,在一般使用条件下,纸杯中水存放 10~30 min 脱落的微塑料总数差别不大,证明开水倒入纸杯早期内涂层大量脱落微塑料,温度下降后基本无新增脱落。此外,长时间存放的一次性纸杯脱落的微塑料数量高于新近生产的纸杯,证明一次性纸杯在存放过程中自然老化,内涂层稳定性下降,使用中剥落出更多微塑料,因此使用存放时间长的一次性纸杯健康风险更大。

3 结论

本文建立了基于显微拉曼研究使用聚乙烯内涂层的一次性纸杯在使用过程中聚乙烯微塑料的脱落情况的定量检测方法,扫描电镜配合方法学研究。本文的方法解决了以往微塑料前处理过程中遇到的团聚、滤膜腐蚀等难题,提高了回收率,为微塑料的准确定量和后续研究奠定技术基础。该方法改进后还可用于其他种类和体系中微塑料的检测,具有推广价值。本文的研究结果表明,使用聚

表 3 一次性纸杯中脱落的聚乙烯微塑料平均计数($n=3$)

Table 3 The average count of polyethylene microplastics shed from disposable paper cups ($n=3$)

样品编号	10 min		20 min		30 min	
	计数 [*]	总数 [#]	计数 [*]	总数 [#]	计数 [*]	总数 [#]
1	12(6.2, 21.0)	7 536(3 894.2, 13 164.1)	9(4.1, 17.1)	5 652(2 584.2, 10 729.3)	16(9.1, 26.0)	10 048(5 743.6, 16 317.3)
2	4(1.1, 10.2)	2 512(6 84.5, 6 431.9)	7(2.8, 14.4)	4 396(1 767.1, 9 057.6)	4(1.1, 10.2)	2 512(684.5, 6 431.9)
3	9(4.1, 17.1)	5 652(2 584.2, 10 729.3)	6(2.2, 13.1)	3 768(1 382.8, 8 201.6)	12(6.2, 21.0)	7 536(3 894.2, 13 164.1)
4	17(9.9, 27.2)	10 676(6 219.7, 17 093.5)	11(5.5, 19.7)	6 908(3 448.3, 12 360.9)	7(2.8, 14.4)	4 396(1 767.1, 9 057.6)
5	55(41.4, 71.6)	34 540(26 019.9, 44 959.1)	45(32.8, 60.2)	28 260(20 612.8, 37 814.3)	61(46.7, 78.4)	38 308(29 301.2, 49 208.1)
6	27(17.8, 39.3)	16 956(11 174.0, 24 670.3)	18(10.7, 28.4)	11 304(6 699.5, 17 865.3)	22(13.8, 33.3)	13 816(8 658.8, 20 918.0)
7	8(3.5, 15.8)	5 024(2 169.1, 9 899.7)	14(7.7, 23.5)	8 792(4 806.7, 14 751.7)	8(3.5, 15.8)	5 024(2 169.1, 9 899.7)
8	31(21.1, 44.0)	19 468(13 227.5, 27 633.2)	27(17.8, 39.3)	16 956(11 174.0, 24 670.3)	42(30.3, 56.8)	26 376(19 008.9, 35 652.8)
平均计数总		6 594		5 181		6 123
数 No. 1~4						
平均计数总		18 997		16 328		20 881
数 No. 5~8						

注:*计数结果为 4 个随机视场所计数的聚乙烯微塑料总和,括号内为泊松分布 95% 置信区间;#总数结果为经换算每升水样中聚乙烯微塑料数量,括号内为计数的置信区间等比例放大

乙烯内涂层的一次性纸杯在使用过程中会脱落聚乙烯微塑料,主要发生在倒入热水的早期,且涂层的自然老化会进一步增加聚乙烯微塑料的剥落。

参考文献

- [1] THOMPSON R C, MOORE C J, VOMSAAL F S, et al. Our plastic age[J]. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series B: Biological Sciences*, 2009, 364(1526): 1973-1976.
- [2] MITCHELL J, VANDEPERRE L, DVORAK R, et al. Recycling disposable cups into paper plastic composites[J]. *Waste Management*, 2014, 34(11): 2113-2119.
- [3] ZIAJAHROMI S, NEALE PA, RINTOUL L, et al. Wastewater treatment plants as a pathway for microplastics: Development of a new approach to sample wastewater-based microplastics [J]. *Water Research*, 2017, 112, 93.
- [4] MURPHY F, EWINS C, CARBONNIER F, et al. Wastewater treatment works (WwTW) as a source of microplastics in the aquatic environment[J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(11): 5800-5808.
- [5] SCHYMANSKI D, GOLDBECK C, HUMPF HU, et al. Analysis of microplastics in water by micro-Raman spectroscopy: release of plastic particles from different packaging into mineral water [J]. *Water Research*, 2018, 129: 154-162.
- [6] ANDERSON PJ, WARRACK S, LANGEN V, et al. Microplastic contamination in Lake Winnipeg, Canada [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 225: 223-231.
- [7] LESLIE HA, BRANDSMA SH, VAN VELZEN MJ, et al. Discovery and quantification of plastic particle pollution in human blood [J]. *Environment International*, 2017, 101: 133-142.
- [8] LI J, LIU H, CHEN J P. Microplastics in freshwater systems: A review on occurrence, environmental effects, and methods for microplastics detection[J]. *Water Research*, 2018, 137: 362-374.
- [9] ERNI-CASSOLA G, GIBSON MI, THOMPSON PC, et al. Lost, but found with Nile red; a novel method to detect and quantify small microplastics (20 μm -1 mm) in environmental samples [J]. *Environmental Science & Technology*, 2017, 51(23): 13641-13648.
- [10] FAZEY FMC, RYAN PG. Biofouling on buoyant marine plastics: An experimental study into the effect of size on surface longevity [J]. *Environment Pollution*, 2016, 210: 354-360.
- [11] TAGG AS, HARRISION JP, JUNAM Y, et al. Fenton's reagent for the rapid and efficient isolation of microplastics from wastewater [J]. *Chemical Communication*, 2017, 53(2): 372-375.
- [12] TAGG AS, SAPP M, HARRISON JP, et al. Identification and Quantification of Microplastics in Wastewater Using Focal Plane Array-Based Reflectance Micro-FT-IR Imaging [J]. *Analytical Chemistry*, 2015, 87(12): 6032-6040.
- [13] SU L, XUE Y, LI L, et al. Microplastics in mussels along the coastal waters of China[J]. *Environment Pollution*, 2016, 216: 711-719.
- [14] 丁金凤, 李景喜, 孙承君, 等. 双壳贝类消化系统中微塑料的分离鉴定及应用研究[J]. *分析化学*, 2018, 46: 690-697.
- DING J F, LI J X, SUN C J, et al. Separation and identification of microplastics in digestive system of bivalves[J]. *Chinese Journal of Analytical Chemistry*, 2018, 46: 690-697.
- [15] KUTRALAM-MUNIASAMY G, PEREZ-GUEVARA F, ELIZALDE-MARTINEZ I, et al. First study of its kind on the microplastic contamination of soft drinks, cold tea and energy drinks - Future research and environmental considerations [J]. *The Science of the Total Environment*, 2020, 714, 136823.
- [16] JOVANOVI'CB. Ingestion of microplastics by fish and its potential consequences from a physical perspective[J]. *Integrated Environmental Assessment and Management*, 2017, 13(3): 510-515.
- [17] SATHISH MN, JEYASANTA I, PATTERSON J. Microplastics in Salt of Tuticorin, Southeast Coast of India [J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2020, 79: 111-121.
- [18] US-EPA Determination of Asbestos Structures over 10 μm in Length in Drinking Water[S], US, 1994.