## PET微纤维在双齿围沙蚕体内的摄入排出动力学研究

姜亦松<sup>1,2,3</sup>, 丛 艺<sup>3</sup>, 张明兴<sup>3</sup>, 李昭川<sup>3</sup>, 娄亚迪<sup>3</sup>, 靳 非<sup>3</sup>, 何 洁<sup>1,2</sup>, 王 莹<sup>3</sup>, 王菊英<sup>3</sup>

(1.大连海洋大学海洋科技与环境学院辽宁省高校近岸海洋环境科学与技术重点实验室,辽宁大连116023;2.辽宁省海洋生物资源恢复与生境修复重点实验室,辽宁大连116023;3.国家海洋环境监测中心国家环境保护近岸海域生态环境重点实验室,辽宁大连116023)

摘 要:海洋微塑料污染已成为全球性环境问题,纤维是我国近海微塑料的主要存在形态。然而,微纤 维对近海底栖生物的影响研究相对较少,底栖生物对微纤维的摄入和排出过程仍不明晰。本文采用近 海沉积物中的代表性物种——双齿围沙蚕(Perinereis aibuhitensis)作为受试生物,以长度(1.09± 0.21) mm、直径 100 um 的聚对苯二甲酸乙二醇酯 (PET) 纤维作为目标污染物,研究海水暴露途径下 沙蚕对接近环境相关浓度(50个/L、100个/L、200个/L)PET微纤维的72h摄入过程,以及暴露结束后 转移至干净海水中恢复 72 h 的排出动力学过程。摄入实验结果表明,对于整个 72 h 暴露过程而言,沙 蚕对 PET 微纤维的摄入量总体呈上升趋势,并且在暴露结束时沙蚕的摄入量均达到最大值(分别为 2.35 个/g、4.89 个/g 和 8.55 个/g),各浓度组对 PET 微纤维的摄入速率常数 K,分别在 6h、1h、3h达到 最大值(分别为1.70×10<sup>-4</sup> L/kg/d、1.60×10<sup>-4</sup> L/kg/d和1.40×10<sup>-4</sup> L/kg/d)。排出实验结果表明,沙蚕体 内 PET 微纤维残留量总体呈下降趋势,各处理组沙蚕体内 PET 微纤维残留量分别在恢复的 72 h、 24 h 和 48 h 达到最小值(分别为 1.17 个/g、2.05 个/g 和 2.98 个/g);低浓度组沙蚕对 PET 微纤维的排 出速率常数 K<sub>d</sub> 在恢复 3 h 达到最大值,为(4.81±1.95)/d,对应残留半衰期 t<sub>1/2</sub> 为(0.28±0.18)d;中、高 浓度组沙蚕的 K<sub>d</sub> 在恢复1h达到最大值,分别为(7.19±4.20)/d和(9.12±3.30)/d, 对应 t<sub>1/2</sub>达到最小 值,分别为(0.18±0.08)d和(0.11±0.05)d。恢复阶段结束后,PET微纤维主要残留在沙蚕体内,其次 是海水溶液中,粪便中最少。本研究表明,PET 微纤维浓度影响沙蚕摄食和排泄微纤维的数量和速 率。研究结果可为科学评估微塑料在底栖生物中的毒性效应和生态风险提供依据。 关键词:聚对苯二甲酸乙二醇酯;微纤维;底栖生物;生物累积;速率常数 中图分类号:X171.5 文献标识码:A 文章编号:1007-6336(2024)02-0243-09

### Study on the uptake and depuration kinetics of PET microfibers in the polychaete *Perinereis aibuhitensis*

JIANG Yisong<sup>1,2,3</sup>, CONG Yi<sup>3</sup>, ZHANG Mingxing<sup>3</sup>, LI Zhaochuan<sup>3</sup>, LOU Yadi<sup>3</sup>, JIN Fei<sup>3</sup>, HE Jie<sup>1,2</sup>, WANG Ying<sup>3</sup>, WANG Juying<sup>3</sup>

(1.Key Lab. of Nearshore Marine Environmental Science and Technology in Liaoning Province, School of Marine Technology and Environment, Dalian Ocean University, Dalian 116023, China; 2.Key Lab. of Marine Bio-resources Restoration and

收稿日期: 2023-12-05, 修订日期: 2024-01-24

作者简介:姜亦松(1999-),男,辽宁营口人,硕士,主要研究方向为海洋生态毒理学,E-mail:18241700310@163.com

通信作者:丛 艺(1983-),女,山东烟台人,博士,副研究员,主要研究方向为海洋生态毒理学和污染物海水水质基准, E-mail: ycong@nmemc.org.cn

基金项目:河口海岸学国家重点实验室开放基金资助课题(SKLEC-KF202212)

王 莹(1980-),女,辽宁沈阳人,博士,研究员,主要研究方向为海洋生态毒理学、污染物/营养物海水水质基准/标准 和生态风险评价,E-mail: wangying@nmemc.org.cn

Habitat Reparation in Liaoning Province, Dalian 116023, China; 3.State Environmental Protection Key Laboratory of Coastal Ecosystem, National Marine Environmental Monitoring Center, Dalian 116023, China)

Abstract: Microplastic (MP) pollution in marine environment has become a global concern. Fiber is reported to be the main form of MPs along the coastal water of China. However, guite few studies have been conducted to explore the impact of microfibers on marine benthic organisms, and the uptake and depuration processes of microfibers by benthic organisms are still unclear. In this study, using sediment-dwelling Perinereis aibuhitensis as model organism, we investigated the uptake and depuration kinetics of polyethylene terephthalate (PET) microfibers (100 µm in diameter and 1.09±0.21 mm in length) under approaching environmentally relevant concentrations (50, 100 and 200 items/L) in P. aibuhitensis through a seawater exposure pathway. The results of uptake experiment showed that for the whole 72 h of exposure process, the ingestion of PET microfiber generally increased and reached the maximum values of 2.35 items/g, 4.89 items/g and 8.55 items/g for the low, medium and high concentration exposure groups at the end of exposure, respectively. The uptake constant  $K_{\rm u}$  of PET microfibers for three concentration groups reached the maximum values of  $1.70 \times 10^{-4}$ ,  $1.60 \times 10^{-4}$  and  $1.40 \times 10^{-4}$  L/kg/d at 6 h, 1 h and 3 h after exposure, respectively. For the results of depuration experiment, the remaining amount of PET microfibers in P. aibuhitensis body showed a generally decreasing trend and reached the minimum value (1.17 items/g, 2.05 items/g and 2.98 items/g, respectively) in low, medium and high treatment at 72 h, 24 h and 48 h after recovery, respectively. The depuration constant  $K_{\rm d}$  of PET microfibers in the low concentration group reached the maximum value  $(4.81\pm1.95)/d$  at 3 h after recovery and the corresponding residual half-life  $t_{1/2}$  is  $(0.28\pm0.18)$  d; for the medium and high concentration groups,  $K_d$  reached the maximum values of  $(7.19\pm4.20)/d$  and  $(9.12\pm3.30)/d$ , respectively, corresponding to  $t_{1/2}$  reaching the minimum value of (0.18±0.08) d and (0.11±0.05) d at 1 h after recovery, respectively. At the end of recovery stage, PET microfibers mainly remained in the worm body, followed by seawater solution, and fecal distribution being the least. This study showed that the concentration of PET microfibers affected their uptake and depuration amounts and constant rates in P. aibuhitensis. Our results provide a basis for scientific assessment of the toxic effects and ecological risks of microplastics in benthos.

Key words: polyethylene terephthalate; microfiber; benthos; bioaccumulation; rate constant

塑料以其低成本和相对稳定性能,广泛应用 于工业、农业和日常生活中。预计到 2025 年,将 有 1.5 亿吨塑料垃圾排入海洋环境<sup>[1]</sup>。在海洋生 态系统中,这些塑料垃圾在机械作用、光辐射和 生物降解等过程中逐渐破碎分解成小的塑料微 粒<sup>[2]</sup>,其中尺寸小于 5 mm 的塑料微粒定义为微 塑料(microplastics, MPs),被科学家称为海洋中 的 PM<sub>2.5</sub><sup>[3]</sup>。Wang 等<sup>[4]</sup>报道我国渤海、黄海、东 海、南海海水中 MPs 总体污染水平最高可达 33.6 个/L,沉积物中 MPs 总体污染水平最高可 达 14712.0 个/kg,并且海水和沉积物中 MPs 形 态均以纤维为主,主要聚合物类型为聚丙烯 (PP)、聚乙烯(PE)、聚苯乙烯(PS)和聚对苯二 甲酸乙二醇酯(PET)。PET 又称涤纶,主要以纤 维形态存在于纺织品中,在洗涤过程中由于受到 机械作用 PET 纤维大量脱落<sup>[5]</sup>,并最终进入海洋环境。Zhang 等<sup>[6]</sup> 发现我国黄海和东海海域 MPs 中的 PET 纤维丰度占比高达 21.6%。PET 除了在海水中分布外,在沉积物中也有广泛分 布。Teng 等<sup>[7]</sup> 发现,我国莱州湾海域沉积物中 类型为 PET 的 MPs 的占比为 11%。

在海洋生态系统中,底栖生物作为食物链的 一个重要环节,能够混合沉积物促进基质氧化以 及营养物质和污染物的再悬浮和分配,在近海生 态系统的能量流动和物质循环中起重要作用。 底栖生物往往对 MPs 不具有分辨能力,会在摄 食过程中将 MPs 一并摄取。例如,王嘉旋等<sup>[8]</sup> 对我国海州湾潮滩沉积物中沙蚕体内 MPs 的丰 度和形态特征进行研究,发现体内检出 MPs 的 沙蚕占比为 77.78%~ 86.67%, MPs 平均丰度为

(6.68±2.21)个/g,其中纤维是最丰富的形态类 别, 材质以 PE 和 PET 为主。从艺等<sup>[9]</sup> 研究发 现,沙蚕能够在短期暴露时间内持续摄入海水 中的荧光 PS 微球, 在转移至干净海水中恢复 96 h 后体内 PS 残留百分比只有 2.2%。Wang 等<sup>[10]</sup> 发现,将腹足类光滑双脐螺(Biomphalaria glabrata)分别暴露在浓度为 5 mg/L 和 0.5 mg/L 的 PE 微粒中 48 h 和 21 d 后, 其对 PE 微粒的 48 h 和 21 d 平均吸收速率分别为 75 和 6.94 µg/g/h。 当南极磷虾(Euphausia superba)暴露于添加 20%PE的饲料中24h后,对PE的摄入速率常数 为 22 ng/mg/h, 排出速率常数为 0.22/h。Hao 等<sup>[11]</sup> 对罗非鱼的研究结果表明,在21d长期暴露条 件下,罗非鱼对 PS 纳米塑料的摄入和排出速率常 数分别为 2.70~378 L/kg/d 和 0.138~0.407 L/kg/d。 由于当前关于微纤维在海洋生物体内的摄入、 排出研究较少,因此,关注微纤维在生物体内的 摄入和排出动力学过程对于了解其生物有效性 尤为关键,对于 MPs 的生态风险评估也具有重 要意义。

沙蚕是底栖无脊椎动物中较为常见的海洋 沉积物环境污染评价的指示生物和毒理研究的 模型生物,对污染物具有较强的耐受性和指示作 用。目前关于 MPs 在海洋生物体内的摄入、排 出动力学研究主要集中在鱼类、腹足类和甲壳 类<sup>[10-12]</sup>,而在沙蚕等底栖多毛类体内的摄入和排 出动力学研究相对匮乏。基于以上研究背景,本 研究采用双齿围沙蚕(*Perinereis aibuhitensis*)作 为受试生物,以 PET 微纤维作为目标污染物,初 步研究了在海水暴露途径下沙蚕对 PET 微纤维 的摄入、累积和排出动力学过程,以期为深入探 讨 MPs 致毒机理及科学评估 MPs 的生态风险提 供依据。

### 1 材料与方法

### 1.1 材料与试剂

PET 纤维(产品编号:ES30-MT-000110,直径 100 μm,长度 200 m)购自上海顾特服贸易有限 公司,氢氧化钾(分析纯)购自科密欧化学试剂有 限公司,人工海盐购自中盐工程技术研究院有限 公司,Whatman 无黏合剂玻璃微纤维滤纸购自北 京默迪克生物科技有限公司。

### 1.2 受试生物及驯养

双齿围沙蚕(*P. aibuhitensis*)成体购自台州 沙蚕养殖基地,选取健康沙蚕用于实验室驯养。 沙蚕驯养所需的沉积物采自渤海干净海域 (119°41′E,38°10′N),在实验室内首先通过边晃 动筛网边加人工海水(pH8.1±0.1,盐度 20±1,溶 解氧 7.99±0.2 mg/L)的方式,使沉积物经过 1 mm 的筛网。取 3~5 g(3 个平行)筛滤后的沉积物样 品进行干湿重比(dw:ww)的测定。以 0.45  $\mu$ m 孔径滤膜过滤的人工海水作为上层水,驯养温度 为(10±2)℃,光暗比为 12 h:12 h,每 3 d 更换 2/3 上层海水。驯养期间沙蚕以沉积物中的有机 物为食,及时挑出死亡的沙蚕,以免污染水质,影 响其他沙蚕活力。沙蚕驯养 5~7 d 后用于暴露 实验。

1.3 微纤维制备与表征

微纤维的制备过程简要描述如下:首先剪取 一小段纤维制品,用解剖剪快速剪切,剪取的微 纤维越小越好,然后用 MilliQ 水(18.2 Ω)冲洗粘 附在解剖剪上的微纤维并收集于玻璃烧杯中。 实验前将微纤维过滤至滤膜上<sup>[13]</sup>。通过扫描电 子显微镜(SEM, Thermo Fisher:SU3500 型)对剪 取的微纤维形态和尺寸等进行表征,再对剪取 的 PET 微纤维随机抽取 200 个,分批次在体视显 微镜(Leica M205FA,德国)下测量尺寸范围,最 后利用傅里叶变换显微红外光谱仪(μ-FITR, Nicolet iN 10 MX)鉴定聚合物组成。

1.4 摄入和排出动力学实验

PET 微纤维在沙蚕体内的摄入和排出动力 学实验采取海水暴露途径<sup>[9]</sup>。参考我国海水中 MPs 的环境浓度<sup>[4]</sup>,将本实验浓度设定为 50 个/ L(低)、100 个/L(中)和 200 个/L(高)3 个浓度 组,实验浓度略高于环境浓度。依据《海洋生物 水质基准推导技术指南(试行)》(HJ 1260-2022)<sup>[14]</sup> 中环节动物多毛类的短期暴露实验时长要求 (24~96 h),设置摄入实验的暴露时间为 72 h。 排出实验的暴露时长同摄入实验,并相应设置 72 h 的恢复时长。摄入和排出实验均设置 3 个 平行,每个平行 1 只沙蚕成体。将沙蚕用滤纸吸 干水分称重,随机分配到 500 mL 烧杯中,每个烧

杯中装有 250 mL已过滤的含有不同浓度 PET 微纤维的人工海水(水质参数条件同驯养条件) 和1只沙蚕,暴露期间不喂食,暴露时间持续 72 h. 其间所有实验组均使用曝气石持续曝气, 并覆盖保鲜膜以减少水分蒸发,暴露结束后将沙 蚕取出称重并暂存于-80 ℃, 后续用 10%(w:v) 的 KOH 溶液按照 10 mL/g 组织湿重在 60 ℃ 水 浴消解 72 h(此方法对 PET 微纤维的回收率为 96.7%±11.5%), 真空过滤后于体视显微镜下对滤 膜上 PET 微纤维数量进行计数<sup>[15]</sup>。在排出实验 中,首先将沙蚕分别于低、中、高3个浓度组中 暴露 72 h. 暴露条件和平行设置与摄入实验一 致,暴露结束后,将沙蚕全部转移至干净海水中 恢复 72 h。于恢复后 1 h、3 h、6 h、12 h、24 h、 48h和72h每个实验组各取3只沙蚕并暂存于 -80 ℃,称重、消解,首先对沙蚕体内的 PET 微 纤维进行计数,然后再对海水溶液中单独存在 的 PET 微纤维和粪便包裹的 PET 微纤维分别计 数(即体外)。

1.5 摄入和排出速率常数计算

1.5.1 排出速率常数 Kd 及半衰期 t1/2

当沙蚕转移至干净海水中时,通过拟合一阶 模型确定的排出速率常数 K<sub>d</sub>及排出半衰期 t<sub>1/2</sub>分别按公式(1)和公式(2)计算:

$$C_t = C_0 \cdot e^{(-K_d \cdot t)}$$
(1)  
$$t_{1/2} = \ln 2/K_d$$
(2)

式中: *K*<sub>d</sub> 是排出速率常数(/d); *t* 是排出时间 (d); *C*<sub>t</sub>和 *C*<sub>0</sub>分别是在时间 *t*和转入干净海水时沙 蚕体内的 MPs 浓度(个/kg); *t*<sub>1/2</sub> 是排出半衰期(d)。 1.5.2 残留比

沙蚕体内微纤维的残留比按照公式(3)计算:

 $R = (C_t / C_0) \times 100\%$  (3)

式中: R 是残留比(residual rate);  $C_t$ 和  $C_0$ 分 别是在时间 t和转入干净海水时沙蚕体内的 MPs浓度(个/kg)。

1.5.3 摄入速率常数 Ku

吸收速率常数 K<sub>u</sub>利用非线性回归方程按照 公式(4)计算:

$$C_{\rm e} = \left(K_{\rm u} \cdot \frac{C_{\rm s}}{K_{\rm d}}\right) \left[1 - e^{(-K_{\rm d} \cdot t)}\right] \tag{4}$$

式中: K<sub>u</sub>为吸收速率常数(L/kg/d); C<sub>s</sub>为 t 时刻海水中 MPs 浓度(个/L); C<sub>e</sub>是 t 时刻沙蚕 体内 MPs 浓度(个/kg)。

1.6 统计分析

所有数据均以平均值±标准误差(mean± SEM)表示,使用 SPSS24.0 软件进行分析。利用 Kolmogorov-Smirnov 验证数据是否符合正态分 布,方差齐性分析采用 Levene 检验。采用比较 均值的单因素方差分析方法(One-way ANOVA test)进行统计学分析, P<0.05 考虑为差异显著。

### 2 结果与讨论

### 2.1 PET 微纤维的表征

SEM 结果表明, PET 微纤维呈圆柱形, 颜色透明(图 1a)。通过傅立叶变换显微红外光谱仪对 PET 微纤维进行鉴定(图 1b),匹配度达96.86%,证实聚合物类型为 PET。用于实验的PET 微纤维尺寸范围为(1.09±0.21)mm(图 1c)。







2.2 沙蚕对 PET 微纤维的摄入 随着暴露时间延长,沙蚕体内的 PET 微纤维

摄入量总体呈上升趋势(图 2)。在暴露 1 h 时, 中、高浓度组(0.53 个/g、0.84 个/g)沙蚕的 PET

微纤维摄入量与低浓度(0个/g)存在显著性差异 (P<0.05);在暴露 3h时,中、高浓度组沙蚕的 PET 微纤维摄入量(0.88 个/g、2.28 个/g)分别是 低浓度组沙蚕(0.41个/g)的 2.1 倍和 5.6 倍, 与低 浓度组存在显著性差异(P<0.05);在暴露6h时, 低、中、高浓度组沙蚕的 PET 微纤维摄入量分别 为 0.94 个/g、 2.41 个/g、 2.81 个/g, 各浓度组无显 著性差异;在暴露12h时,高浓度组沙蚕的 PET 微纤维摄入量(4.08个/g)分别是低、中浓度 组沙蚕(1.29个/g、1.57个/g)的 3.2 倍和 2.6 倍, 存在显著性差异(P<0.05);在暴露 24 h 时,高浓 度组沙蚕的 PET 微纤维摄入量(6.11 个/g)是低 浓度组沙蚕(2.41个/g)的 2.5倍,与低浓度组存 在显著性差异(P<0.05);在暴露48h时,高浓度 组沙蚕的 PET 微纤维摄入量(5.74 个/g)分别是 低、中浓度组沙蚕(1.26个/g、2.54个/g)的 4.6 倍 和 2.3 倍,存在显著性差异(P<0.05);在暴露结束 时(72 h),各浓度组沙蚕体内 PET 微纤维摄入量 均达到最大值,并且高浓度组沙蚕的 PET 微纤 维摄入量(8.55个/g)是低浓度组沙蚕(2.35个/g) 的 3.6 倍,存在显著性差异(P<0.05)。本实验结 果表明,沙蚕在72h暴露期间内摄入PET微纤 维的数量持续增加,因此摄入量有可能还没达到 峰值,后续也会考虑进一步延长暴露时间来探究 沙蚕对 PET 微纤维的摄入量达到峰值的时刻。



不同字母表示不同浓度暴露组之间差异显著(P<0.05)

# 图 2 不同浓度 PET 微纤维溶液暴露 72 h 沙蚕体内 PET 微纤维随时间的摄入情况

Fig. 2 The uptake of PET microfibers in *P. aibuhitensis* after exposure to different concentrations of PET microfiber solution for 72 h

MPs 进入复杂海洋环境中后,容易吸附一些 黏土颗粒、有机碎片、海藻、微生物等,这些过程 会增大 MPs 颗粒的密度或改变其表面特性,促 使其发生沉降,这就大大增加了活跃在水-沉积 物界面的底栖生物对其摄入的概率[16]。已有实 验结果显示,牡蛎和沙蠋(Arenicola marina)等底 栖动物能够非选择性地摄入 MPs<sup>[17-18]</sup>。对海州 湾沙蚕摄入体内的 MPs 尺寸的调查结果表明, 沙蚕能够摄入粒径范围为 0.12~4.59 mm 的 MPs, 其中<1 mm的 MPs 占比达到 55.29%, 超过 93.95% 的 MPs 的粒径 < 2.5 mm<sup>[8]</sup>。Wright 等<sup>[17]</sup> 研究表 明,长期(10d)暴露于含有5%(按重量计)未添 加塑化剂聚氯乙烯(UPVC)的沉积物中的沙蠋与 对照组和暴露于1% UPVC 相比,其摄食活性显 著降低,表明随着暴露时间延长,高浓度组沙蠋 摄入 MPs 总量很可能随着摄食活动的降低而减 少。由此可见,与本研究的短期暴露(72 h)相 比,长期慢性暴露可能会造成 MPs 在肠道的停 留时间延长,从而减缓了对 MPs 的摄入。丛艺 等<sup>[9]</sup>研究结果表明,沙蚕在暴露于含有直径为 10 μm PS 微粒的海水中 48 h 内可持续摄入 PS 微球,在暴露结束后 MPs 摄入量达到最大值, 约为163个/g。Besseling 等<sup>[19]</sup> 研究结果发现, 沙 蠋暴露于含有 0~7.4% PS 微球(干重)的沉积物 后, PS 微球浓度越高, 沙蠋摄食的 PS 微球越多, 这与本研究中 MPs 浓度对沙蚕的 PET 微纤维摄 入量影响的变化趋势一致。因此,上述 MPs 在 不同种类底栖生物体内的研究结果与本研究结 果的摄入量差异应主要归因于 MPs 种类、暴露 时间和暴露途径等。除了上述因素外,本实验结 果表明,微塑料浓度也是摄入的重要影响因素, 底栖生物沙蚕摄入 PET 微纤维的量与其暴露浓 度呈正相关关系(浓度依赖性)。

众多研究表明,不同受试生物由于暴露条件 (介质、浓度、时间等)不同,对 MPs 的摄入速率 常数在数量级上存在较大差异。本研究采用 PET 微纤维浓度,沙蚕在此浓度条件下对微纤维 的摄入情况更能体现环境相关性。表1列出了 不同浓度处理组沙蚕对 PET 微纤维的摄入速率 常数、残留半衰期和排出速率常数。结果表明, 低浓度组的摄入速率常数 K<sub>u</sub> 仅在暴露 1 h 时与 中、高浓度组存在显著性差异,此外,低、中、高浓度组的 $K_u$ 分别在暴露6h、1h、3h达到最大 值(分别为 $1.70 \times 10^{-4}$  L/kg/d、 $1.60 \times 10^{-4}$  L/kg/d和 $1.40 \times 10^{-4}$  L/kg/d),之后随着暴露时间延长, $K_u$ 逐渐减小,在暴露48h时各处理组的 $K_u$ 均达到最小(分别为 $2.60 \times 10^{-5}$  L/kg/d、 $2.60 \times 10^{-5}$  L/kg/d和 $2.80 \times 10^{-5}$  L/kg/d)。上述结果表明,不同浓度组的变 对 PET 微纤维的摄入速率存在差异,低浓度组沙蚕摄入速率呈现先升高后降低的趋势,中浓度组沙蚕摄入速率在暴露前6h较快,随后逐渐下降,而高浓度组沙蚕摄入速率在暴露前3h较快,随后逐渐下降。已有研究结果表明, 斑马鱼在暴露于不同浓度(5 mg/L、10 mg/L、

15 mg/L) PS 纳米塑料 50 d 后, 肠道、肝脏、鳃、 肌肉和大脑对 PS 纳米塑料的摄入速率常数变化 范围分别为 0.025 ~ 0.098(5 mg/L)、0.029 ~ 0.095 (10 mg/L)和 0.027 ~ 0.096 L/kg/d(15 mg/L)<sup>[20]</sup>; 罗非鱼暴露于海水中不同粒径(108 nm 和 203 nm) PS 纳米塑料 21 d 后, 对其摄入速率常数分别为 8.62 ~ 378 L/kg/d 和 2.70 ~ 60.7 L/kg/d<sup>[11]</sup>。以上 结果表明, 毒代动力学常数除了与 MPs 浓度有 关以外, 与 MPs 尺寸也存在一定联系。由于 MPs 对沙蚕的毒代动力学研究几近空白, 所以, 本研究结果对于科学评估 MPs 在底栖生物中的 毒性效应和生态风险具有重要意义。

表1 沙蚕对 PET 微纤维的摄入速率常数( $K_u$ )、排出速率常数( $K_d$ )和残留半衰期( $t_{1/2}$ )

Tab.1 The uptake rate constant  $(K_u)$ , depuration rate constant  $(K_d)$ , and residual half-life  $(t_{1/2})$  of PET microfibers by *P. aibuhitensis* 

t	$K_{\rm u} \times 10^{-5} \mathrm{L} \cdot \mathrm{kg}^{-1} \cdot \mathrm{d}^{-1}$			$K_{\rm d}/{ m d}^{-1}$			<i>t</i> <sub>1/2</sub> /d		
	50个/L	100个/L	200个/L	50个/L	100个/L	200个/L	50个/L	100个/L	200个/L
1 h	$0^{a}$	16.00±2.99 <sup>b</sup>	13.00±2.98 <sup>b</sup>	4.63±2.75	7.19±4.20	9.12±3.30	0.59±0.46	0.18±0.08	0.11±0.05
3 h	$10.00 \pm 5.06$	9.04±2.25	14.00±3.59	4.81±1.95	3.11±2.35	4.36±0.69	0.28±0.18	$0.80{\pm}0.47$	0.17±0.03
6 h	17.00±4.03	14.00±5.75	7.20±0.50	3.27±0.22 <sup>a</sup>	1.22±0.15 <sup>b</sup>	1.51±0.52 <sup>b</sup>	$0.21{\pm}0.02^{a}$	$0.59{\pm}0.07^{a}$	2.66±0.95 <sup>b</sup>
12 h	12.00±3.80	5.00±2.16	7.80±1.24	1.43±0.32	0.72±0.14	1.51±0.36	0.53±0.10	1.05±0.25	0.54±0.17
24 h	11.00±2.11	9.30±2.18	6.50±1.35	0.86±0.16	0.76±0.21	0.80±0.15	4.87±2.55	1.16±0.44	0.92±0.15
48 h	2.60±0.75	2.60±0.45	2.80±0.26	0.32±0.06	0.30±0.05	0.49±0.07	2.30±0.40	2.40±0.39	1.48±0.27
72 h	5.00±1.35	4.40±1.62	3.60±1.07	0.32±0.04	0.23±0.01	0.29±0.06	2.26±0.33	3.14±0.22	2.63±0.51

### 2.3 沙蚕对 PET 微纤维的排出

### 2.3.1 沙蚕体内 PET 微纤维残留量

在排出实验中, 沙蚕于含有 PET 微纤维的海 水中暴露 72 h 后转移至干净海水中恢复 72 h (图 3)。结果表明, 随着时间延长, 沙蚕体内 PET 微纤维残留量总体呈下降趋势, 低、中浓度 组和高浓度组分别在暴露 72 h、24 h 和 48 h 达 到最小值(分别为1.17 个/g、2.05 个/g 和 2.98 个/g); 高浓度组在恢复期 1 h 内即快速排出体内残留 的 PET 微纤维; 而低、中浓度组的沙蚕在整个 72 h 恢复过程中排出 PET 微纤维的趋势较为平缓。 研究发现<sup>[9]</sup>, 沙蚕对摄入体内的 PS 微粒具有一 定的回避或排斥作用, 这种快速排出机制可减少 大部分 MPs 在肠道的停留时间, 有利于沙蚕保 护自身免受或减轻 MPs 的有害影响。本实验结 果表明, 低、中、高浓度组沙蚕在恢复 48 h、48 h 和 72 h时体内 PET微纤维残留率分别为 51.32%、60.97%和 53.03%,表明沙蚕对 PET微 纤维也存在一种快速排出机制,这与上述研究一 致。统计学分析结果显示,在整个 72 h恢复过 程中,低浓度组与中浓度组沙蚕体内 PET 残留 量只在恢复 6 h和 72 h时存在显著性差异,与高 浓度组沙蚕体内 PET 残留量在所有时间点均存 在显著性差异,而中浓度组与高浓度组沙蚕体 内 PET 残留量只在恢复 1 h、6 h、24 h和 72 h存 在显著性差异,表明 PET 微纤维暴露浓度的高 低对沙蚕排泄 MPs 数量的能力存在不同影响。

由表1可知,低浓度组沙蚕的排出速率常数 和半衰期仅在恢复6h时与中、高浓度组存在显 著性差异。低浓度组的*K*<sub>d</sub>在3h达到最大值,为 (4.81±1.95)/d,对应残留半衰期*t*<sub>1/2</sub>较小,为 (0.28±0.18)d;中、高浓度组均在恢复1h达到最



不同字母表示不同浓度暴露组之间差异显著(P<0.05)

### 图 3 不同浓度 PET 微纤维溶液暴露 72 h 并转移至干净 海水后沙蚕体内 PET 微纤维随时间排出情况

Fig. 3 The depuration of PET microfiber in *P. aibuhitensis* after exposure to different concentrations of PET microfibers for 72 h and transfer to clean seawater

大值,分别为(7.19±4.20)/d和(9.12±3.30)/d,对 应 t<sub>1/2</sub> 也达到最小值,分别为(0.18±0.08) d和 (0.11±0.05)d。当沙蚕快速排出体内高浓度的 MPs 后,随着时间的延长, Kd 逐渐减小, t12 逐渐 增大,在恢复72h时各处理组的Kd均达到最小, 分别为(0.32±0.04)/d、(0.23±0.01)/d和(0.29± 0.06)/d, 对应 t1/2 达到最大, 分别为(2.26±0.33)d、 (3.14±0.22)d和(2.63±0.51)d。已有研究表明, 罗非鱼暴露于海水中不同粒径(108 nm 和 203 nm) PS 纳米塑料 21 d后, 排出速率常数分别为 0.246~0.407/d和0.138~0.299/d<sup>[11]</sup>,与本研究中 沙蚕恢复48h、72h的排出速率常数较为接近, 而斑马鱼在暴露于不同浓度(5 mg/L、10 mg/L、 15 mg/L)PS 纳米塑料 50 d 后, 排出速率常数分 别为 0.051~ 0.32/d、0.081~ 0.37/d 和 0.055~ 0.35/d<sup>[20]</sup>, 其中在肠道(0.32~0.37/d)、肝脏 (0.29~0.32/d)和鳃(0.27~0.31/d)中的排出速率 常数与本研究恢复48h、72h的排出速率常数较 为接近。

2.3.2 沙蚕粪便中的 PET 微纤维

在排出实验中, 在沙蚕粪便中也观察到了 PET 微纤维的存在。如图 4 所示, 恢复 12 h 内各 浓度组的粪便中 PET 微纤维个数几乎为 0, 恢复 12 h 后, 各暴露组粪便中 PET 微纤维数量均开始 上升, 于恢复 48 h 均达到最大值(分别为 2.00 个、2.67个和4.00个),在恢复72h时,高浓度组 沙蚕粪便中的 PET 微纤维个数仍为 4 个, 而低、 中浓度组粪便中 PET 微纤维数量均显著下降至 0.67个,分别占各处理组 PET 微纤维排出总量 的 57.26%、57.26% 和 33.33%。统计学分析结果 表明,在恢复12h内,各处理组粪便中PET微纤 维个数均无显著性差异,在恢复24h、48h和72h 时,低浓度组与中浓度组粪便中 PET 微纤维个 数无显著性差异(P>0.05),而与高浓度组存在显 著性差异(P<0.05),中浓度组与高浓度组粪便中 PET 微纤维个数也存在显著性差异(P<0.05)。 粪便是海洋生物将摄入体内的 MPs 排出体外 的一种重要载体。日本虎斑猛水蚤(Tigriopus japonicus)暴露于10 µm 荧光 PS 微粒 48 h 后,也 在排出的粪便颗粒中发现了 PS 微粒的存在<sup>[21]</sup>。 Wang 等<sup>[10]</sup> 将腹足类动物——光滑双脐螺暴露 在浓度为5mg/L的PE微粒24h后,有(2.9±1.2)mg 的微珠通过粪便排出,占该处理组中微珠排出总 数的 28.7%±12.7%。以上摄入、排出的研究大多 集中在微球形态,对于纤维形态研究较少,本研 究选取纤维作为目标污染物,对于现实海洋环境 中 MPs 的生态风险评估具有重要意义。



不同字母表示不同浓度暴露组之间差异显著(P<0.05)

- 图 4 不同浓度 PET 微纤维溶液暴露 72 h 并转移至干净 海水后沙蚕粪便中 PET 微纤维随时间排出情况
- Fig. 4 The depuration of PET microfibers in feces of *P. aibuhitensis* after exposure to different concentrations of PET microfibers for 72 h and transfer to clean seawater
- 2.4 PET 微纤维在不同介质中的占比 比较 PET 微纤维在不同介质中的占比情况

(图 5),可以看出,不同处理组在不同介质的占 比均为组织>海水溶液>粪便。Wang等<sup>[10]</sup>研究 结果表明,当腹足类动物——光滑双脐螺暴露在 海水 PE 微珠 48 h 后, MPs 在各个介质占比情况 为粪便>组织>海水溶液,与本研究结果的差异表 明,暴露时间、MPs种类、受试物种等均会影响 MPs 在不同介质中的占比情况。有研究表明,北 大西洋的多种浮游动物能够摄入粒径为1.7~ 30.6 µm 的 PS 微粒, 并通过"假粪"将 PS 微粒 排出体外<sup>[22]</sup>: Wegner 等研究表明, 底栖生物也能 产生"假粪",即将摄入体内的 MPs 直接排出 体外,当贻贝(Mvtilus edulis)暴露在含有不同浓 度(0、0.1 g/L、0.2 g/L 和 0.3 g/L)PS 微粒的海水 中(30 nm)8h后,在所有处理组中均观察到粪便 尤其是"假粪"的存在<sup>[23]</sup>。在本研究中,在恢 复72h时,相比于中、高浓度处理组(体外占比 分别为 31% 和 47%), 低浓度处理组的 PET 微纤 维在粪便和海水溶液(即体外)中的占比更高(体 外占比为48.7%),表明低浓度组沙蚕倾向于将 PET 微纤维排出体外,除了少数以粪便(8.5%)形 式排出外,大部分 PET 微纤维是以上述表述中 "假粪"(48.2%)的形式直接将 MPs 排到海水

溶液中,但这种形式需要消耗额外能量,会造成 能量的损耗<sup>[23]</sup>。相比于低浓度处理组(体内占比 为49%),中、高浓度处理组PET微纤维在生物 组织(即体内)中的占比较高(占比分别为 69% 和 53%), 表明当 MPs 浓度升高时生物体不 易于将其排出体外。Wright等<sup>[17]</sup>通过一个概念 模型得出结论: 高浓度的 MPs 会导致沙镯摄食 活性抑制、肠道停留时间延长,从而很可能导致 底栖生物排出 MPs 的速率减缓。这与本实验观 察到的高浓度暴露组沙蚕的排出速率常数逐渐 降低,以及中、高浓度暴露组沙蚕体内的 PET 微 纤维残留百分比较高的结果一致。关于 MPs 摄 入后在生物体的排出情况,现有研究多局限于分 析 MPs 的体内残留量和粪便中的排出量, 通过 MPs 在各个介质中占比情况分析 MPs 的排出方 式、残留/排出倾向的研究相对较少。本研究统 计了恢复阶段结束后不同暴露浓度下 PET 微纤 维在体内和体外环境介质中的占比情况,结果表 明,中、高浓度 PET 微纤维暴露很可能增加其随 食物链传递的风险,对于基于 MPs 浓度评估其 在海洋环境中的生态风险具有重要意义。







### 3 结论

(1)在摄入实验中,沙蚕能够摄入 PET 微纤 维,且体内 PET 微纤维累积量与暴露浓度呈正 相关关系;对于沙蚕对 PET 微纤维的摄入速率 常数,低浓度暴露组呈现先升高后降低的趋势, 中、高浓度暴露组总体呈下降趋势。

(2)在排出实验中,沙蚕体内 PET 残留量与

暴露浓度呈正相关关系;对于沙蚕对 PET 微纤 维的排出速率常数,各浓度组随时间均呈现降低 趋势;对于半衰期,各浓度组间无显著差异。恢 复阶段 PET 微纤维在各介质中的占比顺序为组 织>海水溶液>粪便。与低浓度暴露组相比,中、 高浓度暴露组沙蚕体内的 PET 微纤维更不易排 出体外(体内>体外),表明中、高浓度 PET 微纤 维暴露时沙蚕体内 PET 微纤维随食物链传递的 可能性更高,进而增加 MPs 在海洋环境中的生态风险。

### 参考文献:

- JAMBECK J R, GEYER R, WILCOX C, et al. Plastic waste inputs from land into the ocean[J]. Science, 2015, 347(6223): 768-771.
- [2] DA COSTA J P, SANTOS P S M, DUARTE A C, et al. (Nano)plastics in the environment - Sources, fates and effects[J]. Science of the Total Environment, 2016, 566-567: 15-26.
- [3] PENG G Y, ZHU B S, YANG D Q, et al. Microplastics in sediments of the Changjiang Estuary, China[J]. Environmental Pollution, 2017, 225: 283-290.
- [4] WANG Q, GUAN C Y, HAN J, et al. Microplastics in China Sea: Analysis, status, source, and fate[J]. Science of the Total Environment, 2022, 803: 149887.
- [5] MAC NAMARA C, GABRIELE A, AMADOR C, et al. Dynamics of textile motion in a front-loading domestic washing machine[J]. Chemical Engineering Science, 2012, 75: 14-27.
- [6] ZHANG C F, ZHOU H H, CUI Y Z, et al. Microplastics in offshore sediment in the Yellow Sea and East China Sea, China[J]. Environmental Pollution, 2019, 244: 827-833.
- [7] TENG J, ZHAO J M, ZHANG C, et al. A systems analysis of microplastic pollution in Laizhou Bay, China[J]. Science of the Total Environment, 2020, 745: 140815.
- [8] 王嘉旋, 宋可心, 孙一鑫, 等. 海州湾潮间带沙蚕对沉积物微 塑料的指示作用[J]. 环境科学, 2021, 42(9): 4341-4349.
- [9] 丛 艺,周建行,孙粒钧,等.荧光聚苯乙烯微粒在沙蚕体内的摄入、排出及其毒性效应[J].海洋环境科学,2019,38(2): 161-166.
- [10] WANG Y, BAYNES A, RENNER K O, et al. Uptake, Elimination and Effects of Cosmetic Microbeads on the Freshwater Gastropod *Biomphalaria glabrata*[J]. Toxics, 2022, 10(2): 87.
- [11] HAO T W, GAO Y, LI Z C, et al. Size-Dependent Uptake and Depuration of Nanoplastics in Tilapia (*Oreochromis niloticus*) and Distinct Intestinal Impacts[J]. Environmental Science & Technology, 2023, 57(7): 2804-2812.
- [12] XIA B, ZHANG J, ZHAO X, et al. Polystyrene microplastics increase uptake, elimination and cytotoxicity of decabromo-

diphenyl ether (BDE-209) in the marine scallop *Chlamys farreri*[J]. Environmental Pollution, 2020, 258: 113657.

- [13] 李陵云. 微塑料的制备及其在暴露实验中的应用[D]. 上海: 华东师范大学, 2011: 43.
- [14] HJ 1260-2022. 海洋生物水质基准推导技术指南(试行)[S].
- [15] ROCHMAN C M, TAHIR A, WILLIAMS S L, et al. Anthropogenic debris in seafood: Plastic debris and fibers from textiles in fish and bivalves sold for human consumption[J]. Scientific Reports, 2015, 5: 14340.
- [16] WOODALL L C, SANCHEZ-VIDAL A, CANALS M, et al. The deep sea is a major sink for microplastic debris[J]. Royal Society Open Science, 2014, 1(4): 140317.
- [17] WRIGHT S L, ROWE D, THOMPSON R C, et al. Microplastic ingestion decreases energy reserves in marine worms [J]. Current Biology, 2013, 23(23): R1031-1033.
- [18] SUSSARELLU R, SUQUET M, THOMAS Y, et al. Oyster reproduction is affected by exposure to polystyrene microplastics[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2016, 113(9): 2430-2435.
- [19] BESSELING E, WEGNER A, FOEKEMA E M, et al. Effects of microplastic on fitness and PCB bioaccumulation by the lugworm *Arenicola marina* (L.)[J]. Environmental Science & Technology, 2013, 47(1): 593-600.
- [20] HABUMUGISHA T, ZHANG Z X, FANG C, et al. Uptake, bioaccumulation, biodistribution and depuration of polystyrene nanoplastics in zebrafish (*Danio rerio*)[J]. Science of the Total Environment, 2023, 893: 164840.
- [21] 刘全斌, 张明兴, 丁光辉, 等. 微塑料在日本虎斑猛水蚤 (*Tigriopus japonicus*)体内的摄入、排出及对其摄食行为的 影响[J]. 生态毒理学报, 2020, 15(4): 184-191.
- [22] COLE M, LINDEQUE P, FILEMAN E, et al. Microplastic ingestion by zooplankton[J]. Environmental Science & Technology, 2013, 47(12): 6646-6655.
- [23] WEGNER A, BESSELING E, FOEKEMA E M, et al. Effects of nanopolystyrene on the feeding behavior of the blue mussel (*Mytilus edulis* L.)[J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2012, 31(11): 2490-2497.

(本文编辑:胡莹莹)