

论述与研究

DOI: 10. 19853/j. zgjsps. 1000-4602. 2024. 01. 001

混凝对附着生物膜的微塑料的去除效能

项晓方, 谢显传, 刘振中

(南昌大学资源与环境学院 鄱阳湖环境与资源利用教育部重点实验室, 江西南昌 330031)

摘要: 作为一种新污染物,微塑料进入水体后其表面会逐渐形成生物膜。微塑料携带的污染物及生物膜中潜在的致病菌加重了微塑料的环境危害,且微塑料可能随原水进入水厂影响水质安全,因此对水中附着生物膜的微塑料的去除显得尤为重要。以聚合氯化铝(PAC)为混凝剂,以微塑料去除率作为评价指标,考察了混凝法对在自然水体中滞留一段时间的聚苯乙烯(PS)微塑料的去除效能。结果表明,当PAC投加量为60 mg/L、pH为7时,对滞留9 d的PS微塑料达到58.4%的最佳去除率。此外,生物量在一定程度上影响微塑料的去除效率。微生物表面所带的负电荷有利于微塑料与混凝剂水解的金属离子结合形成团聚体,从而促进沉淀。Zeta电位表明混凝过程中发生了电荷中和,傅里叶红外光谱表明PS微塑料与混凝剂在混凝过程中形成了新的化学键。研究混凝去除附着生物膜的微塑料的效果及机理对保证供水安全、保障人体健康具有重要的现实意义。

关键词: 微塑料; 混凝; 生物膜; 聚苯乙烯

中图分类号: TU991 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-4602(2024)01-0001-07

Effect of Coagulation on the Removal of Microplastics Attached to Biofilm

XIANG Xiao-fang, XIE Xian-chuan, LIU Zhen-zhong

(Key Laboratory of Poyang Lake Environment and Resource Utilization <Ministry of Education>, College of Resources and Environment, Nanchang University, Nanchang 330031, China)

Abstract: As a kind of emerging contaminants, microplastics are widely distributed in water. The pollutants carried by microplastics and the potential pathogenic bacteria in biofilm aggravate the environmental hazards of microplastics, and microplastics may enter the water treatment plant with raw water to affect the safety of water quality. Therefore, the removal of microplastics attached to biofilm in water is particularly important. The coagulation was used to remove polystyrene (PS) microplastics that had stayed in natural water for a period of time, polyaluminum chloride (PAC) was used as the coagulant, and the removal rate of microplastics was used as an index to evaluate the coagulation performance. The results showed that when the dosage of PAC was 60 mg/L and pH was 7, the best removal rate of 58.4% was achieved for PS microplastics retained for 9 days. In addition, it was also found that biomass affected the removal efficiency of microplastics to a certain extent. The negative charge on the surface of

基金项目: 南昌大学鄱阳湖环境与资源利用教育部重点实验室开放基金资助项目(2022Y04); 江西省研究生创新专项资金资助项目(YC2022-s113)

通信作者: 刘振中 E-mail: liuzz79@126.com

microorganisms was conducive to the combination of microplastics and metal ions hydrolyzed by the coagulant to form aggregates, thereby promoting precipitation. Zeta potential indicated that charge neutralization occurred during coagulation, and Fourier transform infrared spectroscopy indicated that new chemical bonds were formed between PS microplastics and coagulant during coagulation. It is of great practical significance to study the removal effect and mechanism of microplastics attached to biofilm by coagulation to ensure the safety of water supply and human health.

Key words: microplastics; coagulation; biofilm; polystyrene

微塑料(MPs)是尺寸小于5 mm的塑料颗粒,由于其分布广泛并且有潜在的生态风险而成为全球问题^[1]。塑料制品的大量使用、其在环境中的持久性以及不当处理易导致微塑料在各种水体中积累^[2]。微塑料的粒径通常很小,容易被水生生物误食而影响其生长发育,并可能通过食物链在人体内富集^[3-4]。微塑料表面具有疏水性,易吸附水中有机物促进微生物定植,进而形成生物膜。相比原始微塑料,微生物的附着会导致微塑料疏水性增强、密度增大,更有利于沉积。微塑料在环境中具有持久存在性,其可能作为有害微生物长期定植的场所,使有害物种进一步扩散。已有的研究表明,附着生物膜的微塑料增强了有毒物质的转移,如Bhagwat等^[5]研究发现生物膜的存在增强了微塑料纤维对有毒污染物全氟辛酸磺酸的吸附,因此对微塑料的控制研究显得尤为重要。

河流和湖泊是淡水系统的重要组成部分,与人类的生活息息相关,在这类水体中也发现了微塑料的存在^[6]。作为饮用水源的地表水及地下水中同样存在微塑料。目前,已有许多技术被用于微塑料的去除,如磁分离^[7]、磁性碳纳米管^[8]、TiO₂纳米颗粒薄膜^[9],但鲜见混凝和过滤去除微塑料的研究报道。Wang等人^[10]研究了饮用水厂各处理单元对微塑料的去除性能,发现混凝沉淀的去除率为40.5%~54.5%,且塑料颗粒越大,去除率越高。Ma等^[11]使用氯化铝和三氯化铁作为混凝剂去除聚乙烯(PE)颗粒,结果表明对于粒径<0.5 mm的微塑料,需要投加270~405 mg/L的氯化铝才能达到最佳去除效果。然而,较小的粒径和较高的混凝剂用量会增加污泥产量^[12]。研究中还发现,当Fe³⁺投加量为110~280 mg/L时,PE微塑料的去除率通常小于15%。

由于上述研究所使用的微塑料都是原始微塑料,而进入水厂的微塑料由于暴露在自然环境中,

表面附着有微生物,这会对微塑料的理化性质以及混凝去除效果产生影响,因此有必要进一步研究混凝对附有生物膜的微塑料的去除性能。聚苯乙烯(PS)塑料在日常生活中使用广泛,且其密度与天然水相似,更容易进入人类生活,造成潜在的威胁。所以选择PS微塑料作为研究对象,通过模拟其在自然水体中滞留形成生物膜,进一步研究混凝对微塑料的去除性能,为饮用水中附有生物膜的微塑料的去除提供理论和技术支撑。

1 材料与方法

1.1 试剂和材料

聚合氯化铝(PAC)、结晶紫购自阿拉丁试剂公司,氯化钠、碳酸氢钠、酒石酸钾钠、草酸铵、乙醇、硫酸、硝酸购自西陇科学股份有限公司,硫酸钠、氯化铵购自上海麦克林生化科技有限公司。聚苯乙烯(PS)微塑料购自美国3M公司,粒径为150~300 μm,密度为1.05 g/cm³。0.45 μm微孔滤膜购自北京百灵威科技有限公司。微塑料避光保存,实验前用无水乙醇对微塑料表面进行冲洗,之后再用纯水清洗三遍,以去除吸附的物质。所有储备液均在4℃的黑暗环境中保存。

1.2 生物膜培养及生物量测定

培养生物膜的原水取自南昌大学前湖校区润溪湖,氨氮为0.015 mg/L, pH为7.8, COD为45.2 mg/L,磷为0.02 mg/L。

用电子分析天平称取250 mg PS微塑料于250 mL锥形瓶中,取200 mL原水于锥形瓶中进行生物膜的培养。每隔12 h摇晃锥形瓶使微塑料与原水充分接触,以利于生物膜生长。

生物量采用结晶紫染色法测定,具体如下:用无菌镊子取一定量的微塑料于无菌培养皿中,用灭菌水清洗微塑料表面3次以清除松散的附着物,以购买的微塑料作空白对照组,将清洗过的样品自然

风干45 min。干燥后的样品用1%的结晶紫溶液染色45 min,并用灭菌水清洗3次,将清洗好的样品自然风干45 min。然后将样品浸入含有2 mL体积分数为95%的乙醇溶液中进行倒转混合脱色10 min,将脱色液转移至比色皿中,使用紫外分光光度计于595 nm下测量吸光度。用吸光度值代替生物总量,吸光度值越高,表明附着的生物越多。

1.3 混凝实验及定量方法

混凝实验采用85-2数显恒温磁力搅拌器,搅拌程序设定为:500 r/min持续1 min,再150 r/min持续15 min,最后静置沉淀30 min。混凝沉淀后,收集上清液通过0.45 μm 的微孔滤膜进行过滤,然后干燥并称质量。收集沉淀后的微塑料和絮体进行表征。

将微塑料在原水中放置一定天数后进行混凝实验,首先选取在原水中停留7 d和14 d的微塑料为研究对象,通过混凝实验确定最佳混凝剂投加量,微塑料浓度为500 mg/L,混凝体系的初始pH为7。在研究pH对混凝效果的影响时,采用HCl和NaOH来调节溶液的pH,调节完成后再加入微塑料及混凝剂。在探究离子对混凝效果的影响时,先将离子加入水中搅拌至完全溶解后再进行混凝实验。实验采用去离子水。

采用混凝前微塑料的质量与混凝后上清液中微塑料的质量作差计算得到微塑料去除率。由于微塑料表面附着有生物膜,对称质量会有影响,因此在进行微塑料停留原水固定天数之后,单独进行烘干称质量以确定微塑料表面生物膜所占的比例,方便后续进行去除率计算。混凝沉淀后取上清液进行过滤,在60 $^{\circ}\text{C}$ 下烘干12 h,再小心取出微塑料进行称质量、计算去除率。所有实验均进行3次,取平均值作为实验结果。

1.4 微塑料及混凝后絮体的表征

取培养一定天数的PS微塑料以及混凝后下层沉淀的微塑料和絮体进行表征。将收集的微塑料放入恒温干燥箱中干燥。使用Nicolet 5700傅里叶变换红外光谱(FTIR)检测混凝前后微塑料表面的官能团,检测范围为350~7 800 cm^{-1} ,检测精度优于0.01 cm^{-1} ,分辨率优于0.09 cm^{-1} 。使用Zeta电位仪测量微塑料的Zeta电位。

2 结果与讨论

2.1 PAC投量对混凝效率的影响

选取在原水中停留7 d和14 d的PS微塑料进行

混凝实验。进行混凝实验之前,先对附有生物膜的微塑料进行沉降实验,结果如图1所示。停留7 d和14 d的微塑料沉降率分别为25.7%和21.4%。当PAC投量为20 mg/L时,停留7、14 d的微塑料去除率分别为43.2%、37.6%。随着混凝剂投量的增加,去除率提高,这与之前的研究结果类似^[13]。当PAC投量为60 mg/L时,停留7 d的微塑料去除率达到53.2%,此时若继续增大PAC的投加量,则去除率有所下降。这可能是因为当混凝剂投量较大时,形成的絮体较为松散,在搅拌下容易破裂,进而导致混凝效果下降。停留14 d的微塑料表现出相同的去除效果变化趋势,但去除率降幅较小。

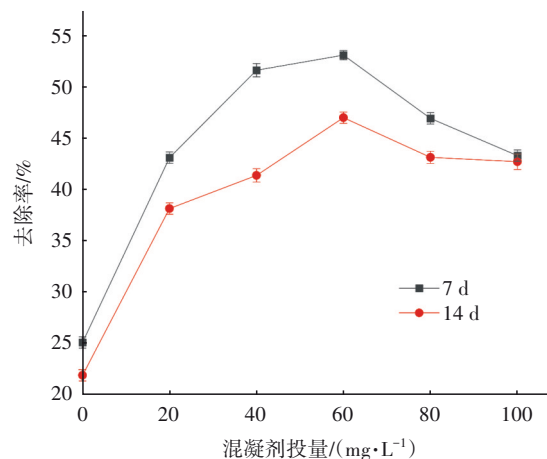


图1 混凝剂投加量对附有生物膜的PS微塑料混凝效率的影响

Fig.1 Effect of coagulant dosage on coagulation efficiency of PS microplastics with biofilm

2.2 微塑料与原水接触时间对混凝效率的影响

生物膜附着之初,进行了原始PS微塑料的混凝实验,结果表明,即使混凝剂投量较高(300 mg/L),PS微塑料的去除率也不足10%。因此进一步研究了定植生物膜的微塑料去除情况。当微塑料与原水的接触时间为0、3、5、7、9、11、14 d时,去除率分别为8.20%、41.27%、48.33%、53.97%、58.00%、52.33%和47.47%,即随着接触时间的延长,PS微塑料的去除率先不断提高再有所下降,在第9天时去除率达到最高。可能是由于生物膜成熟后,一部分生物膜会从微塑料表面脱落^[14],使得生物膜的量减少从而影响对微塑料的去除率。

为了验证上述猜想,对微塑料表面的生物膜进行定量分析,结果如图2所示。初始阶段随着停留时间的增加,微塑料表面生物膜的负载量增多,且

初始阶段生物膜定植速度较快,第9天时生物膜的量达到峰值。生物膜是由微生物附着微塑料表面逐渐演变而来的,微生物表面通常带负电荷,随着表面生物膜的不断增长,表面所带的负电荷使得微塑料与混凝剂水解的正电荷产物结合作用增强,提高了微塑料的去除率。此外,由于微生物附着微塑料表面后会分泌胞外聚合物,一方面使微塑料表面变得黏稠,使得微塑料在混凝搅拌过程中更易于黏附在一起,从而形成聚集和沉降。另一方面,表面附着物会影响PS微塑料的密度,使其更容易在水中沉降,这可以在实验数据中得到反映,原始PS微塑料的混凝去除率不足10%,而附着微生物后,在不投加混凝剂时沉降率就达到了20%左右。同时,Zhang等人^[15]研究也发现,生物膜的形成使得混凝沉淀对微塑料的去除率从不足2%提高到16.5%。生物量的变化与微塑料的去除效果基本一致,说明生物膜的量对微塑料的去除效果有一定影响。

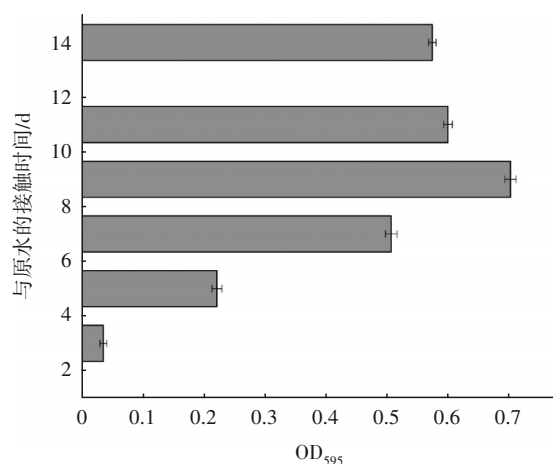


图2 生物膜的量和微塑料与原水接触时间的关系

Fig.2 Relationship between the amount of biofilm and the contact time between microplastics and raw water

2.3 微塑料及絮体的表征

根据现有研究,混凝的主要机理通常分为压缩双电层、吸附电中和、吸附架桥以及网捕卷扫。金属混凝剂的水解产物很容易与带负电的微塑料结合,中和微塑料表面的原始电荷,减少静电斥力,使水中微塑料不稳定。带正电的混凝剂水解单体可以吸附周围带负电的微塑料,形成絮状物。随着絮体的粒径和密度增大,在混凝过程中形成强烈的网捕卷扫,最终形成无定形沉淀。为了进一步揭示微塑料的混凝机理,对Zeta电位等进行了测定。

2.3.1 Zeta电位

胶体颗粒表面对带有异号电荷的颗粒具有强烈的吸附作用,在吸附过程中中和了粒子所带电荷,减小了颗粒间的静电斥力,使得胶体颗粒易于脱稳聚集。为研究这一机理在混凝过程的作用程度,对微塑料表面的初始Zeta电位进行了测定。当微塑料在水中的停留时间为0、3、5、7、9、11、14 d时,微塑料表面Zeta电位分别为-12.17、-12.47、-13.23、-14.00、-15.27、-15.77、-16.40 mV。原始微塑料表面带负电荷,随着停留时间的延长,微塑料表面Zeta电位的绝对值逐渐增大,其原因可能是微生物的附着改变了微塑料表面的物理化学性质,因为细菌一般带负电荷,从而增大了微塑料表面所带的负电荷。此外,原水中的大分子有机质通过影响微塑料表面官能团的去质子化过程而影响其表面电荷,并影响静电斥力^[16]。与原水初始接触阶段,主要吸附水中的有机物,微生物尚未适应定植;随着接触时间的延长,微生物快速增殖,Zeta电位也进一步降低。在生物膜完全成熟后,一部分会从微塑料表面脱落,电位变化速度较缓^[14]。微塑料表面的Zeta电位降低使其更易与混凝剂的水解产物结合,从而提高微塑料的去除效果。

混凝剂投量对絮体Zeta电位的影响见图3。

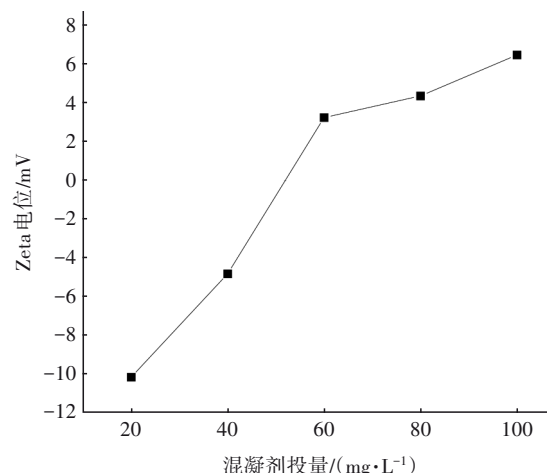


图3 不同混凝剂投加量下的Zeta电位

Fig.3 Zeta potential under different coagulant dosage

原始微塑料表面的Zeta电位在-12 mV左右,随着混凝剂的加入,PAC水解产生的金属阳离子中和了微塑料表面的负电荷,使得微塑料表面所带负电荷的绝对值降低。在此过程中,微塑料的双电层结构被压缩,更容易形成颗粒的碰撞和沉降^[13]。图3

显示,在混凝剂投加量为60 mg/L左右时,混凝体系达到零电位,此时颗粒间的斥力最小,凝聚和絮凝效果最好。继续增大混凝剂的投加量,Zeta电位继续升高并转变为正值,颗粒会发生再稳定现象,将不利于微塑料的混凝去除^[17]。可见,混凝过程存在电荷中和。

2.3.2 傅里叶红外光谱表征

傅里叶红外光谱(FTIR)可用于样品的定性分析,通过分析傅里叶红外光谱中的吸收峰,可以推断样品的成分。图4显示了原始PS微塑料、定植生物膜的PS微塑料(B-PS)以及PAC体系中沉淀物(B-PS+PAC)的FTIR光谱。

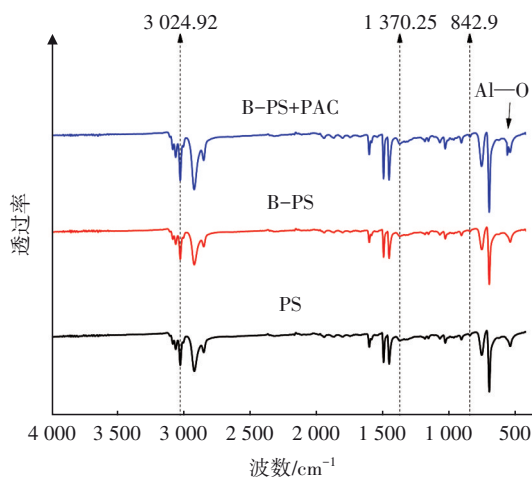


图4 PS微塑料及絮体的FTIR

Fig.4 FTIR of PS microplastics and flocs

在原始PS微塑料的红外光谱中,2 848.24~3 081.5 cm^{-1} 范围内的峰归因于C—H键的拉伸振动及羟基—OH的拉伸振动,1 600.39 cm^{-1} 处源于C=O键的伸缩振动,在1 370 cm^{-1} 处可能是由于C—H键的弯曲振动,842.9 cm^{-1} 处是由于苯环基的取代。由图4可知,定植生物膜的PS微塑料(B-PS)的吸收峰与原始PS微塑料的相比未见明显差异,说明生物膜的定植并未对PS微塑料产生较大影响。与混凝前的微塑料相比,混凝后的微塑料在560 cm^{-1} 处出现了新的吸收峰,这可能是混凝过程中形成的Al—O键,说明存在化学吸附过程。

2.4 水质条件对混凝效率的影响

2.4.1 初始pH对混凝效率的影响

相较于实际水厂进水pH范围,实验选取了pH为3~11,以探究在较大pH范围内实验结果的适用性。当pH为3、5、7、9、11时,对微塑料的去除率分

别为39.80%、47.33%、58.37%、53.13%和53.77%,即去除率在初始pH为7时最大,较低的pH下去除率也较低,这与Zhou等人^[18]的研究结果一致。碱性条件下的去除率略高于酸性条件下的去除率,这是由于混凝剂的水解反应是铝离子结合氢氧根离子的反应,溶液中的氢氧根离子含量决定了水解反应是否完全。因此,在较低pH下微塑料去除率降低可能与酸性条件抑制了PAC的水解有关。此外pH较低时,铝基混凝剂主要以 Al^{3+} 形式存在,多核配合离子占主要地位,无法起到吸附架桥作用,混凝效果较差。当水体碱性偏强时,氢氧化铝胶体会与 OH^- 反应生成 $[\text{Al}(\text{OH})_4]^-$,失去吸附架桥与电荷中和等作用。当水样的pH在6~8之间时,处于凝胶状态的聚合物可以吸附水中的微塑料使其沉淀,此时处理效果较好。有研究表明,碱性条件下絮体的平均尺寸大于酸性条件下的,这更有利于微塑料的沉淀^[19]。然而,Ma等^[12]在采用铝基混凝剂去除聚乙烯(PE)微塑料时发现,在低pH条件下,尤其是高剂量 $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 时,PE颗粒的去除效率较高;Garvasis等^[20]发现溶液的pH在3~9之间并不影响硫酸铝纳米颗粒的脱色效率。研究之间的差异可能是由于微塑料种类、粒径、实验条件等不同所致。

2.4.2 典型离子及有机物对混凝效率的影响

在无离子以及 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 HCO_3^- 等典型离子浓度均为200 mg/L的条件下,对微塑料的去除率分别为58.2%、56.5%、49.2%、66.2%。可见, Cl^- 对混凝去除PS微塑料的影响不大,Ma等人^[11]也得出了相似的结论。 SO_4^{2-} 的存在可以显著降低PAC水解产物的正电荷,不利于水解产物与微塑料的结合。此外, SO_4^{2-} 会引起金属混凝剂的不稳定性^[21],因此水中存在 SO_4^{2-} 会对微塑料的去除产生一定的抑制作用。然而,Zhang等^[13]在采用PAC混凝剂时,由于 SO_4^{2-} 的桥接作用,显著提高了聚对苯二甲酸乙二醇酯(PET)微塑料的去除率。本研究所使用的PS微塑料粒径为150~300 μm ,而Zhang等^[13]所使用的是粒径为100~400 μm 的PET,不同的实验结果可能归因于微塑料成分和尺寸不同。而当溶液中存在 HCO_3^- 时,微塑料去除率较高。这可能是因为 HCO_3^- 使溶液呈碱性,促进了混凝剂水解。

DOM是指存在于各种天然水体中可以通过0.45 μm 滤膜的有机质混合体,在环境中普遍存在,

因此选择腐殖酸(HA)来探究其对混凝去除PS微塑料的影响。在HA浓度为5 mg/L条件下PS去除率为60.5%,即HA的存在对于微塑料的去除效果影响不明显。这与Zhang等^[22]的研究结果一致。然而也有研究指出^[23],HA能增强网捕卷扫和吸附架桥作用,造成不同结果的原因可能是本实验所添加的HA浓度较低,起到的网捕卷扫和吸附架桥作用有限,也可能是微生物的附着使微塑料之间的黏附增强,使HA的作用效果不显著。

2.4.3 初始水质条件对混凝效率的影响

环境微生物对微塑料的初始定植发生在数分钟到数小时内。在水环境与微塑料表面第一次接触的数秒内,微塑料就会吸附有机和无机物质形成“调节膜”。细菌利用多种胞外细胞器和蛋白质感知和附着在物质表面,初始“调节膜”可以通过改变材料的特定表面性质来影响定植群落。水体富营养化主要是氮、磷等营养物质的含量超标引起的,因此通过模拟微塑料在氮、磷水体中的停留考察其对混凝效果的影响。

参考《地表水环境质量标准》(GB 3838—2002)以及湖泊环境富营养化检测情况,使用磷酸二氢钾和硝酸钾配制含不同浓度磷酸盐(0.1、0.3、0.5、1.0、1.5 mg/L)及硝酸盐氮(1、2、3、5、10 mg/L)的原水进行实验,结果表明在5种不同水质条件下,对磷和氮的去除率分别为58.90%、61.35%、63.41%、66.29%、67.73%和58.17%、58.65%、60.34%、62.61%、63.24%。相比常规水体中的微塑料,氮、磷水体中的微塑料的混凝去除率有所升高。由以上结果可知,随着磷浓度的升高,微塑料的去除率也随之升高,当磷浓度为1.5 mg/L时,微塑料的去除率为67.73%。对于含氮水体来说,氮浓度达到最高10 mg/L时,去除率为63.24%。实验结果表明,氮、磷水体条件下对混凝去除微塑料有促进作用,这可能是由于微生物将氮、磷作为营养源进行增殖,从而提高了对微塑料的去除率。

3 结论

① 进入水环境的微塑料可作为微生物定植的载体,并在其表面形成生物膜。混凝沉淀作为水处理过程中一种常见工艺,对微塑料的去除起着重要作用,且定植生物膜的微塑料相较于原始微塑料的混凝去除效果有较大提升。

② 随着PS微塑料表面生物量的增加,微塑料的密度变大,更易于沉降。由于附着的生物膜使微塑料表面变得黏稠,增强了微塑料的碰撞聚集,从而提高了微塑料的去除率。

③ 在本实验中,水中的Cl⁻对微塑料的去除影响较小,而SO₄²⁻和HCO₃⁻分别具有抑制和促进作用,腐殖酸对于微塑料的去除几乎没有影响。氮、磷促进了微塑料表面微生物的增殖,使其对混凝去除PS微塑料有促进作用。

④ 微塑料表面的Zeta电位随着停留时间的延长而逐渐降低,在混凝过程中发生了吸附电中和。PS微塑料与混凝剂相互作用过程中生成了新的化学键,伴有化学吸附过程。

参考文献:

- [1] DE SOUZA M, KLOAS W, ZARFL C, *et al.* Microplastics as an emerging threat to terrestrial ecosystems[J]. *Global Change Biology*, 2018, 24(4): 1405-1416.
- [2] GRBIĆ J, HELM P, ATHEY S, *et al.* Microplastics entering northwestern Lake Ontario are diverse and linked to urban sources [J]. *Water Research*, 2020, 174: 115623.
- [3] XU S, MA J, JI R, *et al.* Microplastics in aquatic environments: occurrence, accumulation, and biological effects [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 703:134699.
- [4] 桑稳姣,张文斌,卢伟,等. 聚苯乙烯微塑料对自来水厂混凝絮体的影响[J]. *中国给水排水*, 2022, 38(11): 32-37.
SANG Wenjiao, ZHANG Wenbin, LU Wei, *et al.* Effects of polystyrene microplastics on flocs formed in coagulation process of waterworks [J]. *China Water & Wastewater*, 2022, 38(11): 32-37 (in Chinese).
- [5] BHAGWAT G, TRAN T K A, LAMB D, *et al.* Biofilms enhance the adsorption of toxic contaminants on plastic microfibers under environmentally relevant conditions [J]. *Environmental Science & Technology*, 2021, 55(13): 8877-8887.
- [6] 吴香香,李大鹏,贾海峰,等. 江南地区缓流水体中微塑料的表现规律[J]. *中国给水排水*, 2022, 38(3): 62-66.
WU Xiangxiang, LI Dapeng, JIA Haifeng, *et al.* Microplastic pollution characteristic in slow-flowing

- water in the south region of the Yangtze River[J]. China Water & Wastewater, 2022, 38(3): 62–66 (in Chinese).
- [7] GRBIC J, NGUYEN B, GUO E, *et al.* Magnetic extraction of microplastics from environmental samples [J]. Environmental Science & Technology Letters, 2019, 6(2): 68–72.
- [8] TANG Y, ZHANG S, SU Y, *et al.* Removal of microplastics from aqueous solutions by magnetic carbon nanotubes [J]. Chemical Engineering Journal, 2021, 406: 126804.
- [9] NABI I, LI K, CHENG H, *et al.* Complete photocatalytic mineralization of microplastic on TiO₂ nanoparticle film [J]. iScience, 2020, 23(7): 101326.
- [10] WANG Z, LIN T, CHEN W. Occurrence and removal of microplastics in an advanced drinking water treatment plant (ADWTP) [J]. Science of the Total Environment, 2020, 700: 134520.
- [11] MA B, XUE W, DING Y, *et al.* Removal characteristics of microplastics by Fe-based coagulants during drinking water treatment [J]. Journal of Environmental Sciences, 2019, 78: 267–275.
- [12] MA B, XUE W, HU C, *et al.* Characteristics of microplastic removal via coagulation and ultrafiltration during drinking water treatment [J]. Chemical Engineering Journal, 2019, 359: 159–167.
- [13] ZHANG Y, ZHOU G, YUE J, *et al.* Enhanced removal of polyethylene terephthalate microplastics through polyaluminum chloride coagulation with three typical coagulant aids [J]. Science of the Total Environment, 2021, 800: 149589.
- [14] RENNER L D, WEIBEL D B. Physicochemical regulation of biofilm formation [J]. MRS Bulletin, 2011, 36(5): 347–355.
- [15] ZHANG Y, DIEHL A, LEWANDOWSKI A, *et al.* Removal efficiency of micro- and nano-plastics (180 nm–125 μm) during drinking water treatment [J]. Science of the Total Environment, 2020(720): 137383.
- [16] 王月. 混凝-沉淀工艺去除水中微塑料颗粒的研究 [D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2020.
- WANG Yue. Study on Removal of Microplastic Particles in Water by Coagulation–Precipitation Process [D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2020 (in Chinese).
- [17] HU P, SU K, SUN Y, *et al.* Efficient removal of nano- and micro-sized plastics using a starch-based coagulant in conjunction with polysilicic acid [J]. Science of the Total Environment, 2022, 850: 157829.
- [18] ZHOU G, WANG Q, LI J, *et al.* Removal of polystyrene and polyethylene microplastics using PAC and FeCl₃ coagulation: performance and mechanism [J]. Science of the Total Environment, 2021, 752: 14183.
- [19] SILLANPÄÄ M, NCIBI M C, MATILAINEN A, *et al.* Removal of natural organic matter in drinking water treatment by coagulation: a comprehensive review [J]. Chemosphere, 2018, 190: 54–71.
- [20] GARVASIS J, PRASAD A R, SHAMSHEERA K O, *et al.* Efficient removal of Congo red from aqueous solutions using phyto-genic aluminum sulfate nano coagulant [J]. Materials Chemistry and Physics, 2020, 251: 123040.
- [21] DUAN J, GREGORY J. Coagulation by hydrolysing metal salts [J]. Advances in Colloid and Interface Science, 2003, 100: 475–502.
- [22] ZHANG Y, ZHAO J, LI W, *et al.* Coagulation properties of magnetic magnesium hydroxide for removal of microplastics in the presence of kaolin and humic acid [J]. Environmental Technology, 2022. DOI: 10.1080/09593330.2022.2144766.
- [23] 孙鹏, 童庆, 象豫, 等. 水中腐殖酸对 Al₁₃ 混凝除氟的影响 [J]. 环境工程学报, 2022, 16(1): 143–153.
- SUN Peng, TONG Qing, XIANG Yu, *et al.* Effect of humic acid in water on fluoride removal by coagulation of Al₁₃ [J]. Journal of Environmental Engineering, 2022, 16(1): 143–153 (in Chinese).

作者简介: 项晓方 (1998–), 男, 河南信阳人, 硕士研究生, 主要研究方向为水处理理论与技术。

E-mail: xiangxf98@126.com

收稿日期: 2023-03-30

修回日期: 2023-05-10

(编辑: 李德强)