



# 环境科学研究

Research of Environmental Sciences

## 环境中全氟和多氟烷基化合物来源、分析方法及分布特征研究进展

张苗苗 田芹 安子怡 许春雪

### Research Progress on the Sources, Analysis Methods and Occurrence Characteristics of Per- and Polyfluoroalkyl Substances in the Environment

ZHANG Miaomiao, TIAN Qin, AN Ziyi, XU Chunxue

在线阅读 View online: <https://www.hjkxyj.org.cn/article/doi/10.13198/j.issn.1001-6929.2025.01.04>

### 您可能感兴趣的其他文章

#### Articles you may be interested in

#### 洪泽湖水体全氟化合物的污染特征、来源及健康风险

Occurrence, Sources and Health Risk Assessment of Per- and Polyfluoroalkyl Substances in Surface Water of Hongze Lake  
环境科学研究. 2023, 36(4): 694-703. <https://doi.org/10.13198/j.issn.1001-6929.2022.12.09>

#### 土壤中全氟和多氟烷基化合物的污染现状及环境行为

Current Pollution Status and Environmental Behaviors of PFASs in Soil  
环境科学研究. 2021, 34(2): 468-478. <https://doi.org/10.13198/j.issn.1001-6929.2020.10.15>

#### 全氟和多氟烷基类物质在大气环境中的存在和行为研究进展

Research Progress on Existence and Behavior of Per- and Polyfluoroalkyl Substances in Atmosphere  
环境科学研究. 2022, 35(9): 2037-2046. <https://doi.org/10.13198/j.issn.1001-6929.2022.06.14>

#### 全氟和多氟烷基类化合物(PFASs)的环境转化与分类管控

Environmental Transformation and Classified Management of Per- and Polyfluoroalkyl Substances (PFASs)  
环境科学研究. 2022, 35(9): 2047-2057. <https://doi.org/10.13198/j.issn.1001-6929.2022.06.22>

#### 全氟/多氟烷基化合物淡水生物水质基准研究现状与展望

Research Status and Prospects of Water Quality Criteria for the Protection of Freshwater Organisms for Per- and Polyfluoroalkyl Substances  
环境科学研究. 2024, 37(7): 1592-1603. <https://doi.org/10.13198/j.issn.1001-6929.2024.03.15>

#### 上海市电镀企业周边地表水中全氟和多氟烷基物质(PFASs)的污染特征

Pollution Characteristics of Per- and Polyfluoroalkyl Substances (PFASs) in Adjacent Surface Water of Electroplating Industries in Shanghai  
环境科学研究. 2022, 35(9): 2067-2076. <https://doi.org/10.13198/j.issn.1001-6929.2022.06.12>



关注微信公众号，获得更多资讯信息

# 环境中全氟和多氟烷基化合物来源、分析方法及分布特征研究进展

张苗苗, 田芹\*, 安子怡, 许春雪

国家地质实验测试中心, 北京 100037

**摘要:** 近年来, 全氟烷基和多氟烷基物质 (PFAS) 在世界范围内大量生产和使用, 因其持久性、迁移性、生物蓄积性和毒性, 给生态环境和人体健康带来了潜在危害。本文综述了国内外近年来关于 PFAS 在环境中的来源、分布特征以及分析方法的研究进展, 阐述了非靶向分析的流程及应用。结果表明: ①环境中 PFAS 主要来源于含氟工业品的生产、含氟消费品的使用以及含氟废弃物的不当处理; 全球范围内 PFAS 在大气、水体、土壤中均有检出, 全氟辛酸 (PFOA) 和全氟辛烷磺酸 (PFOS) 是主要污染物。②比较了超声提取法、索氏提取法、固相萃取法等方法的特点与适用范围, 根据基体的复杂程度以及对准确性、效率的要求, 不同环境基体 PFAS 分析选择不同的提取和净化方法。③适用于靶向 PFAS 分析的液相色谱-质谱和气相色谱-质谱方法目前较为成熟, 而传感器技术和非靶向分析在 PFAS 快速分析和未知氟化物鉴定方面有较大潜力。未来应进一步开发更自动化、更准确的前处理与检测技术, 同时结合质谱谱库与机器学习, 以提高新型 PFAS 非靶向识别与分析的精准性和可靠性。

**关键词:** PFAS; 来源解析; 环境赋存; 样品前处理; 检测方法; 非靶向分析

中图分类号: X592

文章编号: 1001-6929(2025)03-0677-11

文献标志码: A

DOI: 10.13198/j.issn.1001-6929.2025.01.04

## Research Progress on the Sources, Analysis Methods and Occurrence Characteristics of Per- and Polyfluoroalkyl Substances in the Environment

ZHANG Miaomiao, TIAN Qin\*, AN Ziyi, XU Chunxue

National Research Center for Geoanalysis, Beijing 100037, China

**Abstract:** Perfluorinated and polyfluoroalkyl substances (PFAS) are a class of persistent organic pollutants of growing concern. In recent years, the large-scale production and use of PFAS worldwide, coupled with persistence, migration, bioaccumulation and toxicity, have posed significant potential risks to both the ecological environment and human health. This review summarizes recent research on the sources, distribution characteristics, and analysis methods of PFAS in the environment, both domestically and internationally, with a particular focus on the processes and applications of non-targeted analysis. PFAS in the environment primarily originate from the production of fluorinated industrial products, the use of fluorinated consumer products, and the improper disposal of fluorinated waste. These substances have been widely detected in atmosphere, water bodies, and soils globally, with perfluorooctanoic acid (PFOA) and perfluorooctane sulfonic acid (PFOS) identified as the main pollutants. The characteristics and application range of ultrasonic extraction, soxhlet extraction and solid phase extraction were compared. Different extraction and clean-up methods were selected for various environmental matrices based on the matrix complexity and the requirements for accuracy and efficiency. Currently, the most commonly used methods for targeted PFAS analysis include liquid chromatography-mass spectrometry (LC-MS) and gas chromatography-mass spectrometry (GC-MS). Sensor technology and non-targeted analysis show great potential for the rapid determination of PFAS and the identification of unknown fluorinated compounds. In the future, the development of more automated and accurate sample pretreatment and analysis techniques, combined with mass spectrometry libraries and machine learning, will be essential for improving the accuracy and reliability of novel PFAS non-targeted identification and analysis.

收稿日期: 2024-09-24

修订日期: 2024-12-22

作者简介: 张苗苗(2001-), 女, 河南驻马店人, [Zhang132648@163.com](mailto:Zhang132648@163.com)

\* 责任作者: 田芹(1981-), 女, 安徽淮北人, 正高级工程师, 博士, 主要从事有机分析技术及其应用研究, [tqname81@163.com](mailto:tqname81@163.com)

基金项目: 中国地质科学院基本科研业务费项目 (No.CSJ-2023-04); 中国地质调查局地质调查项目 (No.DD20242860)

**Supported by** Basal Research Fund for Chinese Academy of Geological Sciences, China (No.CSJ-2023-04); Research Program of the China Geological Survey (No.DD20242860)

**Keywords:** PFAS; source apportionment; environmental occurrence; sample pretreatment; detection method; non-targeted analysis

经济合作与发展组织 (OECD)2021 年修订了全氟烷基和多氟烷基物质 (PFAS) 的定义, PFAS 是指至少含有一个完全氟化甲基 ( $-\text{CF}_3$ ) 或氟化亚甲基 ( $-\text{CF}_2-$ , 且该碳原子上未连接 H/Cl/Br/I 原子) 的氟化物<sup>[1]</sup>。PFAS 可分为全氟烷基羧酸类 (PFCA)、全氟烷基磺酸类 (PFSA)、氟调聚醇类 (FTOH) 和全氟磺酰胺类 (FASA) 等<sup>[2]</sup>, 国际上最受关注的是全氟辛酸 (PFOA) 和全氟辛烷磺酸 (PFOS) 两个单体及其盐类。PFAS 强大的碳氟键赋予了其良好的性质, 如表面活性、化学稳定性和疏水疏油性等<sup>[3]</sup>。这些化学性质使 PFAS 自 20 世纪 40 年代开始广泛用于食品包装、化妆品、服装、消防泡沫等方面<sup>[4]</sup>。PFAS 的广泛应用及其具有的持久性、迁移性, 导致它们在多种基体中被检出, 并且可以通过食物链传递累积。多项研究<sup>[5-6]</sup>表明, PFAS 可通过饮用水、空气、母乳和食品包装等接触到人体, 进而对人类的大脑、生殖器官等产生不良影响, 造成生育能力下降、免疫反应降低甚至诱发肿瘤和癌症。PFAS 对人类和环境的危害已经引起许多国家与国际组织的广泛关注, 越来越多的 PFAS 被列入管控清单。PFOS 及其相关物质于 2009 年被列入《斯德哥尔摩公约》(简称“《公约》”) 附件 B, 限制生产和使用; PFOA 及其相关物质于 2019 年被列入《公约》附件 A, 禁止生产和使用; 2022 年《公约》将全氟己烷磺酸 (PFHxS) 及其相关物质纳入附件 A。2021 年, 持久性有机污染物审查委员会建议将长链全氟羧酸 ( $\text{C}_9\text{-C}_{21}$ ) 及其盐类和相关化合物纳入《公约》提案。2023 年我国将 PFOS 类、PFOA 类、PFHxS 类列入《重点管控新污染物清单 (2023 年版)》<sup>[7]</sup>。因此, 必须对环境中的 PFAS 进行精准监测与预警, 了解其来源和分布特征, 以降低人类暴露风险。本文综述了近 8 年来环境中 PFAS 的污染来源、分布特征和分析方法, 对目前研究现状、存在问题及研究缺口进行了梳理分析, 提出今后的研究方向, 以期为我国 PFAS 的精准监测及管控提供参考。

## 1 PFAS 的污染来源

PFAS 的来源多种多样, 环境中常见的 PFAS 来源可分为直接来源和间接来源, 其中, 直接来源主要是含氟工业生产 (化工生产、金属电镀、纺织造纸等)、消费品使用 (化妆品、消防产品、户外服装等), 间接来源主要是废弃物的处理 (垃圾填埋厂的渗滤液和废水处理厂的废水)。

### 1.1 含氟工业的生产

在工业生产过程中, 尤其是化工、纺织印染、电镀等行业会使用 PFAS 作为生产原料。这些行业未完全处理的废水流出成为 PFAS 进入水体的污染源; 由于 PFAS 的亨利常数、蒸气压和沸点一般较低, 排放的废气经过大气沉降又成为土壤的污染源。如 D'Ambro 等<sup>[8]</sup>研究了美国北卡罗来纳州一家含氟聚合物生产设施产生的 PFAS 的大气输送和归趋, 模型预测 5% 的 PFAS 和 2.5% 的六氟环氧丙烯二聚酸 (GenX) 在距离设施约 150 km 的范围内沉积, 其余的则被输送出去; 工厂附近空气中 GenX 含量可达  $24.6 \text{ ng/m}^3$ , PFAS 含量可达  $8\,500 \text{ ng/m}^3$ , 但在下风向 35 km 外分别降至 0.1 和  $10 \text{ ng/m}^3$ 。结果说明, 生产设施释放是空气中 PFAS 的主要来源, 大气传输与沉降是其主要迁移途径。Langberg 等<sup>[9]</sup>对挪威一个湖泊进行 PFAS 来源追踪发现, 一家造纸厂是该湖泊的主要污染源, 该设施附近的河流沉积物中 29 种 PFAS 的总浓度为  $2\,450 \mu\text{g/kg}$ , 下游湖泊沉积物中 PFAS 的总浓度为  $6.1\sim 207 \mu\text{g/kg}$ , 且浓度随着与造纸厂距离的增加而降低。PFAS 在电镀工业中经常被用作铬雾抑制剂, Qu 等<sup>[10]</sup>研究了杭州湾某电镀厂使用和排放的 PFAS, 发现 PFOS 和 6:2 氯代多氟醚基磺酸 (6:2 Cl-PFESA) 浓度较高, 随着与污水处理厂出口距离的增加, 其浓度降低。

### 1.2 含氟消费品的使用

PFAS 因其独特的性能, 已广泛用于消费品中, 如化妆品、不粘锅涂层、纺织品以及消防泡沫等, 这些消费品可能会释放挥发性的 PFAS 进入空气。在化妆品的使用过程中, 产品从皮肤上去除时, 残留物会流入水和土壤。Putz 等<sup>[11]</sup>研究了欧洲经济区因使用化妆品产生的 PFAS 排放, 发现聚四氟乙烯 (PTFE) 和  $\text{C}_9\text{-C}_{15}$  氟代醇磷酸酯是最常见的 PFAS 成分, 经检测年度总氟和可提取有机氟的氟排放量分别为  $17\sim 38\,000$  和  $37\sim 5\,100 \text{ kg}$ 。PFOA 作为合成 PTFE 的原料, 被用于不粘炊具涂层的生产, 在正常烹饪温度 ( $179\sim 233 \text{ }^\circ\text{C}$ ) 下, 每只不粘锅向气相释放的 PFOA 为  $7\sim 337 \text{ ng}$  ( $11\sim 503 \text{ pg/cm}^2$ )<sup>[12]</sup>。Morales-Mcdevitt 等<sup>[13]</sup>发现, 挥发性 FTOH 在铺有地毯的美国加利福尼亚州幼儿园教室以及铺有地毯的大学教室和分析实验室中均被检测到, 说明地毯是室内空气中 FTOH 的一个主要来源。PFAS 也可作为添加剂用于水成膜泡沫灭火剂 (Aqueous film-forming foam, AFFF), 消防员训练区反复使用含 PFAS 的水成膜泡沫, 导致

PFAS 直接释放到环境中。Adamson 等<sup>[14]</sup>发现,前消防员训练区存在的 PFAS 总质量约为 222 kg,其中 106 kg 为全氟烷基酸 (PFAA, 包括 PFCA 和 PFSA)。

### 1.3 含氟废弃物的处理

垃圾填埋场和污水处理厂被认为是 PFAS 的主要排放源。含氟废弃物经过各种物理、化学和微生物的处理,可能会产生或释放多种 PFAS,并随着雨水进入地表水和地下水<sup>[15]</sup>。Capozzi 等<sup>[16]</sup>测量了美国华盛顿 17 个垃圾填埋场渗滤液中 32 种 PFAS,结果表明,3-全氟戊基丙酸 (5:3 FtCA) 是渗滤液中的主要成分,总氧化前体 (Total Oxidizable Precursor, TOP) 氧化前、后样品的总 PFAS 浓度 ( $\sum_{32} \text{PFAS}$ ) 分别为 61~172 976、580~36 122 ng/L。Liu 等<sup>[17]</sup>发现,设施老化的垃圾填埋场渗滤液以 PFAA 为主,生活垃圾车辆的新鲜渗滤液中大部分为 PFAA 前体。多数污水处理厂的传统工艺在去除 PFAS 方面效率较低,当污水处理厂的常规处理不能有效去除 PFAS 时,将会以废水的形式释放到水环境中<sup>[18]</sup>。Gobelius 等<sup>[19]</sup>研究发现,污水处理厂中 26 种 PFAS 的排放量为 7 000 mg/d,短链 PFAS 在废水中占主导地位,而长链 PFAS 在污泥中占主导地位。纺织废水是 PFAS 主要工业来源之一,PFAS 在纺织印染工业中广泛用作表面活性剂、织物整理剂和功能性纺织品的防水或防油涂料。Jia 等<sup>[20]</sup>研究了 3 个大型纺织废水处理厂 27 种传统和新兴 PFAS 的赋存情况,进、出水中总 PFAS 分别为 630~4 268、436~755 ng/L,所得污泥中总 PFAS 为 91.5~1 182  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,其中,一个废水处理厂以传统的 PFCA (如 PFOA、全氟壬酸) 为主,另 2 个则以新兴的 PFAS [如 Cl-PFESA、全氟烷基醚羧酸 (PFECA) 和氟调不饱和羧酸 (FTUCA)] 为主。

## 2 PFAS 分布特征

大气由各类气体成分和固相颗粒物组成,大气气相和颗粒相中 PFAS 分别以中性和离子型 PFAS 为主。中性 PFAS 一般以 FTOH 为主,全氟烷基磺酰胺乙醇 (FASE) 和全氟烷基磺酰胺 (FASA) 也被检测到,而离子型 PFAS 的污染特征则因场所、地区等差异而有所不同<sup>[2,21]</sup>。北京大气中 9 种 PFAS 的总浓度为  $(166.75 \pm 101.67) \text{pg}/\text{m}^3$ ,气相 PFAS 浓度为  $(130.84 \pm 92.01) \text{pg}/\text{m}^3$ ,高于颗粒相 PFAS 浓度  $[(35.91 \pm 17.28) \text{pg}/\text{m}^3]$ ,占比最大的物质均为 PFOA,分别为 37.44% 和 36.70%<sup>[22]</sup>。在台湾省西部大气样品中 12 种 PFAS 的平均浓度为  $24 \text{pg}/\text{m}^3$ ,FTOH 占比为 76%;北冰洋西部平均浓度为  $6 \text{pg}/\text{m}^3$ ,其中全氟丁酸 (PFBA) 占比为 20%~26%;南冰洋平均浓度为  $3 \text{pg}/\text{m}^3$ ,以 PFBA、

全氟戊酸 (PFPeA) 和全氟己酸 (PFHxA) 等短链 PFCA 为主<sup>[23]</sup>。大气是流动性最强的环境介质,大气中的 PFAS 污染物可借助大气流动实现其在全球范围内的远距离传输。如 Wong 等<sup>[24]</sup>在北极 3 个站点均检测到 PFOA、PFOS、PFBA 和 FTOH 等化合物。

水体中赋存的 PFAS 主要包括全氟丁基磺酸 (PFBS)、PFOS、PFOA 等短链和中长链单体,世界各地的饮用水中也可普遍检出 PFOS 和 PFOA 单体<sup>[25]</sup>。2017—2019 年通过对全球 22 个国家 144 个地表水 (非洲 44 个,亚太地区 60 个,拉丁美洲和加勒比地区 40 个) 进行分析,PFOS 及其盐类、PFOA 和 PFHxS 的浓度范围分别为 0.03~6.23、0.05~4.02、0.03~3.51 ng/L;利用方差检验评估发现,这 3 个地区的 PFOS 及其盐类和 PFHxS 的平均浓度不存在显著差异,但 PFOA 平均浓度存在显著差异<sup>[26]</sup>。Wang 等<sup>[27]</sup>对中国九龙江水体和沉积物进行了分析,水体中  $\sum_9 \text{PFAS}$  浓度为 2.5~410 ng/L,沉积物中  $\sum_{13} \text{PFAS}$  浓度为 0.24~1.9 ng/g,PFHxA 是水中的优势化合物,而 PFOA 和 PFOS 是沉积物中的优势化合物。在人迹罕至的海洋地区, Miranda 等<sup>[28]</sup>测定了西热带大西洋中  $\sum_8 \text{PFAS}$  总浓度在 11~69 pg/L 之间,PFOA 占主导地位,含量为 67%。PFAS 分布模式 (即剖面 and 浓度) 在整个西热带大西洋纬度区域随深度而变化,沿海样品的垂直剖面显示,PFAS 浓度随着深度的增加而降低。Dai 等<sup>[29]</sup>研究了西北太平洋中的 29 种 PFAS,发现 PFOA 和 PFOS 是主要的化合物,占  $\sum_{29} \text{PFAS}$  浓度的 52.91%;另外 2 种全氟烷基磺酸 (PFBS 和 PFHxS) 的浓度也相对较高,占比分别为 7.91% 和 8.31%。西北太平洋 PFAS 的浓度分布与大西洋相似,均随海水深度的增加而下降。

土壤是由水、气和固体物构成的三相体系,对有机污染物具有较强的富集能力,是 PFAS 的一个重要的“汇”。Brusseau 等<sup>[30]</sup>汇总了世界各地 1 400 多个采样点约 5 700 个土壤样品,发现总 PFAS 浓度范围为 0.001~237  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,其中 PFOA 和 PFOS 被普遍检出。与 PFAS 在水环境和大气中的污染特征不同,土壤中 PFAS 污染通常呈现局部污染的特征,不同区域土壤中 PFAS 的种类和含量与该区域工业类型、大气沉降和人为活动密切相关<sup>[31]</sup>。Gan 等<sup>[32]</sup>研究了四川省什邡市不同区域土壤剖面 PFAS 的分布,发现农业活动密集的农田土壤中氟含量较高,表明受人为活动影响较大。所有土壤样品的总 PFAS 浓度范围为 0.187~1.852 ng/g,PFOA 为主要污染物;PFAS 在土壤剖面的浅层中含量最高,长链 PFAS (如全氟十一酸

和全氟十四酸)倾向于留在表层土壤中,而短链PFAS则在垂直土壤剖面中迁移至深层<sup>[32]</sup>。陈诗艳等<sup>[33]</sup>列出了我国土壤中PFOS、PFOA和PFAS含量的总体水平,发现多数非氟化工生产地区土壤中PFAS的含量在pg/g至ng/g水平;氟化工厂周围或一些使用含氟制品集中地区,土壤中PFAS浓度较高,如在淄博市桓台县氟化工厂附近农田土壤中PFAS浓度为402 ng/g<sup>[34]</sup>。总体上,我国土壤中PFAS浓度水平呈东部沿海地区高于西部地区的特点;工业区(尤其是氟化物制造厂)、垃圾填埋场等潜在PFAS排放源周边土壤中PFAS浓度较高;PFOA和PFOS是土壤中主要的PFAS,但新型PFAS(如PFBA、GenX等)的检出率及浓度不断升高,其环境风险不容忽视<sup>[35]</sup>。

### 3 PFAS的分析方法

当前,国际标准化组织(ISO)、美国环境保护局(US EPA)、美国材料与试验协会(ASTM)及日本标准化组织(JIS)等机构已发布了环境中有关PFAS的检测标准,如方法EPA 537.1、EPA 533、EPA 8327、ISO 25101、ASTM D7979、JIS K0450-70-10等给出了饮用水、地下水、地表水、工业水、废水等PFAS的分析标准,方法ASTM D7968、EPA 1633等给出土壤、沉积物、生物固体等分析标准。我国也很重视PFAS的环境问题,发布了国家标准《生活饮用水标准检验方法第8部分:有机物指标》(GB/T 5750.8—2023),生态环境部发布了行业标准《水质全氟辛基磺酸和全氟辛酸及其盐类的测定同位素稀释/液相色谱-三重四极杆质谱法》(HJ 1333—2023)和《土壤与沉积物全氟辛基磺酸和全氟辛酸及其盐类的测定同位素稀释/液相色谱-三重四极杆质谱法》(HJ 1334—2023),江苏省发布了地方标准《水质17种全氟化合物的测定高效液相色谱串联质谱法》(DB 32/T 4004—2021)。这些标准方法描述了关于PFAS的样品采集、前处理、检测、质量控制等各个环节的步骤和注意事项,多数方法在固相萃取净化的基础上采用液相色谱-串联质谱法测定PFAS。随着国际上对部分化合物的限用以及替代品的使用,受关注的PFAS种类越来越多,相关分析技术也在不断发展。

#### 3.1 样品采集

样品采集是分析测试中重要环节的第一步,采样必须具有代表性,能够反映被测样品的真实情况,同时要设法保持原有的目标成分,防止逸散或被污染。

##### 3.1.1 空气样品

空气样品的采集主要分为主动和被动两种采样方法。主动采样法是指通过一定的装置主动吸取和

收集空气中的颗粒物和气体,可以在更短的时间内对大量空气进行采样。通常使用多种过滤器和吸附剂,包括玻璃纤维过滤器(GFF)、石英纤维过滤器(QFF)、聚氨酯泡沫(Polyurethane Foam, PUF)、苯乙烯-二乙烯基苯共聚树脂(即XAD-2树脂)、PUF/XAD树脂组合、固相萃取(SPE)吸附<sup>[36]</sup>。大容量采样器是最常用的主动采集空气中PFAS的方法,使用前将GFF放入单独包裹的铝箔套中,在450℃下烘烤8h;采样结束时,样品用锡纸包裹,放入预先清洗过的聚丙烯(PP)袋中,保存在-20℃直至提取<sup>[37]</sup>。被动采样法是指通过自然扩散的方式收集空气中的颗粒物和气体。吸附剂浸渍聚氨酯泡沫(Sorbent-impregnated polyurethane foam, SIP)圆盘和简单聚氨酯泡沫(PUF)圆盘是PFAS采样中最常见的被动采样工具<sup>[38-39]</sup>,聚乙烯(PE)片等单相聚合物也已成功用于检测室内空气中中性和挥发性PFAS<sup>[13]</sup>,该方法不需要电力,结构简单、易于操作,但不能区分PFAS是来自气相还是颗粒相。近年来,SPE柱用于室内空气监测。Yao等<sup>[40]</sup>开发了一种混合吸附剂SPE柱,上层C<sub>18</sub>吸附剂(250 mg)用于捕获中性PFAS,下层弱阴离子交换吸附剂(250 mg)用于捕获离子型PFAS。

##### 3.1.2 水样品

水样品主要包括饮用水、地下水、地表水、废水和海水等。饮用水、地表水和废水样品的取样相对容易,使用预清洗桶或不锈钢水质取样器进行,如使用1L不锈钢Kemmerer水质采样器收集水样<sup>[41]</sup>。此外,研究者还开发了一些新型采样装置,如使用由一个扩散池和聚碳酸酯膜组成的平衡被动采样器<sup>[42]</sup>或将微孔PE管和阴离子交换吸附剂相结合构成被动采样器<sup>[43]</sup>收集水样。对于海水样品可以使用NISKIN瓶与电导率-温度-深度计(CTD)玫瑰花形采样器连接收集<sup>[28]</sup>。对于地下水的收集,使用手动螺旋钻挖孔到地下水位,再用专用的高密度聚乙烯(HDPE)管收集或用蠕动泵直接将地下水收集到预清洗的HDPE瓶中<sup>[44-45]</sup>。所用取样工具和容器(即瓶、管和小瓶)在使用前用甲醇清洗,采集的样品进行冷藏保存或运输。

##### 3.1.3 非生物固体基质

非生物固体样品一般包括土壤、尘土、沉积物等,其样品成分较为复杂。对于粉尘样品,通常用简单的家庭工具收集,如真空吸尘器<sup>[46]</sup>或刀片手动收集<sup>[47]</sup>。对于沉积物样品,使用甲醇预先清理过的铲子<sup>[48]</sup>或不锈钢抓取取样器<sup>[49]</sup>在接近表面(0~10 cm)处收集沉积物样品。土壤样品通常是由一系列子样混合而

成,从一个区域的中心和四个角落(约5 m×5 m)制备<sup>[50]</sup>。收集后,将样品单独储存在PP拉链袋中,直接带回实验室,保存在-20℃直到分析。在整个实验过程中都避免使用玻璃和含氟聚合物容器,玻璃很容易吸附PFAS,含氟聚合物容器会引入背景污染,导致分析不准确<sup>[51]</sup>。

### 3.2 样品前处理

环境样品基体复杂,干扰较多,不同基体中PFAS的含量不同,在分析测定前需要选择合适的提取方法使其最大限度保证目标物的提取效率,同时尽量减少杂质的干扰。对于样品的净化在于尽量减少复杂基体对提取液的影响,消除或减少仪器基质效应对检测结果的影响,确保定性定量的准确。

#### 3.2.1 大气样品

索氏提取是利用溶剂回流和虹吸原理使目标物每次都能被溶剂所萃取,该方法设备简单操作方便,但耗时较长。空气样品中PFAS可先被PUF、XAD和SIP吸附后用索氏提取,常用有机萃取溶剂如甲醇、二氯甲烷、乙酸乙酯、石油醚/丙酮(二者体积比为1:1)的混合物等<sup>[37-38,52]</sup>。Zhao等<sup>[37]</sup>使用大容量空气采样器收集渤海、黄海、长江口低空大气样品,空气柱用二氯甲烷进行索氏提取24 h,浓缩后直接进行分析。Tian等<sup>[38]</sup>分别用乙酸乙酯和甲醇索氏提取SIP盘,其中,乙酸乙酯提取液用于分析中性PFAS,回收率为68%~87%;甲醇提取液用于分析离子型PFAS,回收率为71%~100%。超声萃取应用超声波的搅动效应来搅拌溶液中的颗粒,与索氏提取相比,超声提取所需的时间更短、溶剂更少。Eichler等<sup>[53]</sup>对PFAS在室内空气-棉布上的分布特征进行研究,PUF-XAD2-PUF夹层柱用己烷/甲醇(二者体积比为3:1)的混合溶液超声提取2次,再经ENVI-Carb柱进一步萃取净化,中性PFAS的回收率为74%~108%。

#### 3.2.2 水样品

水中PFAS的含量较低,一般为pg/L或ng/L,比较注重对PFAS的浓缩富集<sup>[26]</sup>。在样品处理方面,水样品需预先过滤以去除固体杂质。从水中提取分析物的技术有液-液微萃取(LLME)<sup>[54]</sup>、SPE<sup>[55]</sup>、固相微萃取(SPME)<sup>[56]</sup>等。LLME具有溶剂用量少、萃取效率高的优点,适合中长链PFAS的萃取。Wang等<sup>[54]</sup>采用分散型LLME高选择性地提取水中的PFAS。这种基于氟亲和的萃取方法使用较少的萃取溶剂,同时最大限度地减少了水基质的影响,对选定的中链和长链PFAS( $-CF_2- >5$ )的回收率在70%以上。SPE既可以用于直接萃取PFAS,又可以在萃取后用于净

化样品。SPE是水样中提取PFAS最受欢迎的方法,常用的SPE柱有弱阴离子交换SPE柱(WAX)、亲水亲脂平衡柱(HLB)等,WAX柱是标准方法中使用的SPE柱,常在碱性条件下用甲醇洗脱目标物。HLB固相萃取柱在 $C_4$ ~ $C_{13}$ 的短链和长链PFAA中具有较高的回收率和较小的相对标准偏差<sup>[41,55]</sup>。SPME无需溶剂直接提取,适合挥发和半挥发性PFAS的提取,满足多种应用需求。Olomukoro等<sup>[56]</sup>采用SPME预浓缩水样中烷基链长为 $C_4$ ~ $C_{14}$ 的PFAS,在纤维萃取头外表面涂渍一层HLB-WAX/PAN吸附剂用于提取目标物,提取后用甲醇/水(二者体积比为80:20)解吸,该方法使用纤维和薄膜获得的线性动态范围分别为10~5 000和2.5~5 000 ng/L,具有可接受的准确度(70%~130%)和精度(RSD<15%)。此外,对于基体较干净的地表水和饮用水,Mottaleb等<sup>[57]</sup>开发并验证了一种无需富集净化直接测定水样中PFAS的方法,该方法对样品进行离心和膜过滤处理后,直接采用超高效液相色谱-质谱(UHPLC-MS/MS)测定。

#### 3.2.3 非生物固体基质

对于非生物固体基质中PFAS分析的前处理,通常在样品(土壤、沉积物等)收集时进行冷冻干燥、筛分、均质化,在HPLC-MS/MS分析前进行提取和浓缩<sup>[58]</sup>。常用的提取技术有加速溶剂萃取(ASE)<sup>[59]</sup>、振荡萃取<sup>[48]</sup>和超声萃取<sup>[49-50]</sup>。萃取后的提取液通过SPE柱(oasis WAX、oasis HLB、ENVI-Carb)进一步净化,以去除共洗脱的干扰物。ASE是利用高温高压显著提高溶剂渗透性和溶解能力从而提高效率的方法,该方法具有节约溶剂、快速高效的特点,但设备成本较高;振荡和超声萃取可以多个样品同时完成,所需时间更短,若振荡不充分易导致提取不完全,提取液需要离心或过滤处理。陈勇杰等<sup>[59]</sup>以乙腈为萃取剂,采用ASE萃取污泥中的20种PFAS,经过石墨化碳柱净化,加标回收率为71%~126%。Saleeby等<sup>[48]</sup>采用振荡提取法研究了美国北卡罗来纳州河流沉积物中新出现的PFAS及异构体,再用SPE(ENVI-Carb)柱进一步净化。Li等<sup>[49]</sup>研究安庆市城市湖泊沉积物样品中的PFAS,以甲醇为萃取剂采用超声萃取法提取3次,加入ENVI-Carb净化,加标回收率在88%~102%之间。Baqar等<sup>[60]</sup>分析电子垃圾回收站的土壤样品时,用含0.1%氨水的甲醇连续超声提取离心3次,用ENVI-Carb石墨化碳粉进一步净化,鉴定新出现的PFAS以及三氟乙酸的新前体。近年来有关环境样品(空气、水、土壤、沉积物等)中PFAS的前处理和检测方法如表1所示。

表 1 环境样品中 PFAS 检测方法

Table 1 Analytical procedures for determining PFAS in environmental samples

分析物种类	基质	萃取方法	萃取剂	检测方法	回收率	方法检出限	数据来源
FTOH、FOSA、FOSE			乙酸乙酯	GC-MS	68%~87%	0.03~0.22 pg/m <sup>3</sup>	
PFCA、PFSA、多氟烷基磷酸二酯(diPAP)	空气	SIP吸附索氏提取	甲醇	HPLC-MS/MS	71%~100%	0.02~0.12 pg/m <sup>3</sup>	文献[38]
FTOH、氟调聚物丙烯酸酯(FTAC)、FOSA、FOSE	空气	(PUF)/XAD-2 吸附索氏提取	二氯甲烷	GC-MS	68%~121%	0.1~1.5 pg/m <sup>3</sup> <sup>1)</sup>	文献[37]
FTOH、三氟乙酸、FOSA、FOSE	空气	PE片吸附溶剂提取	乙酸乙酯	GC-MS	81%~119%	0.25~2.82 ng/g	文献[13]
FTOH、FTAC、FOSA、FOSE	空气	PUF-XAD2-PUF 超声提取	己烷/甲醇	GC-MS	74%~108%	0.03~0.2 ng/m <sup>3</sup>	文献[53]
PFSA、PFCA、FOSA	水样	SPE(WAX)	氢氧化铵/甲醇	HPLC-MS/MS	12%~115% <sup>2)</sup>	15~49 pg/L <sup>1)</sup>	文献[37]
PFCA、PFSA	水样	SPE(HLB)	丙酮	LC-MS/MS	74.4%~122.8%	0.10~0.60 ng/L <sup>1)</sup>	文献[55]
PFCA、PFSA、多种前体物	水样	SPE(WAX)	氢氧化铵/甲醇	UHPLC-HRMS	49.0%~195% <sup>2)</sup>	0.009~0.1 ng/L	文献[61]
PFSA、PFCA	水样	SPE(WAX)	氢氧化铵/甲醇	UHPLC-MS/MS	69%~118%	2~10 pg/L <sup>1)</sup>	文献[23]
FASA、PFCA、PFSA	水样	SPE(WAX)	氢氧化铵/甲醇	UHPLC-MS/MS	60%~110%	0.50~6.88 pg/L	文献[28]
PFCA、PFSA、FOSA、FOSE	水样	PE片吸附溶剂萃取	甲醇	HPLC-MS/MS	30%~167%	0.15~1.5 ng/L	文献[43]
PFCA(C <sub>2</sub> -C <sub>14</sub> )	水样	SPE(WAX)	氢氧化铵/甲醇	GC-MS	83%~130%	0.06~14.6 pg/mL	文献[62]
PFCA、PFSA、FOSE、FOSA、FTOH	污水	SPE(WAX)	氢氧化铵/甲醇	LC-MS/MS	62%~130%	0.06~0.16 ng/L	文献[59]
PFSA、PFCA、FOSA、diPAP、氟调磺酸(FTSA)、FTUCA	粉尘	超声萃取	甲醇	LC-MS/MS	47%~118%	0.58~66.5 pg/g <sup>1)</sup>	文献[47]
PFCA、PFSA、PFECA	土壤	超声萃取	甲醇	UHPLC-MS	52%~167%	0.003~0.10 μg/kg (以干质量计)	文献[50]
PFCA、PFSA、FASA、FTSA、FTUCA、diPAP、PFESA	土壤	超声萃取	0.1%氨水甲醇	LC-MS/MS	76%~134%	0.002~0.15 ng/g (以干质量计)	文献[60]
PFECA、PFESA	沉积物	振荡萃取	氢氧化钠/甲醇	LC-MS/MS	—	—	文献[48]
FTUCA、FOSA、PFSA、PFCA	沉积物	超声萃取	甲醇	UHPLC-MS/MS	88%~102%	0.02~0.1 ng/g <sup>1)</sup>	文献[49]
PFCA、PFSA、FOSE、FOSA、FTOH	污泥	ASE	乙腈	LC-MS/MS	71%~126%	0.01~0.03 ng/g	文献[59]

注: 1) 表示方法定量限; 2) 表示内标回收率。—表示文献中未给出。

### 3.3 仪器分析

由于 PFAS 含量通常处于痕量水平, 目前主要采用基于色谱-质谱联用的分析方法。不同类型的质谱技术已经与气相色谱 (GC) 或液相色谱 (LC) 相结合来准确分析和鉴定 PFAS, 如三重四级杆检测器 (Triple Quad Detector, TQD)、飞行时间质谱 (Time-of-Flight Mass Spectrometer, TOF)、轨道阱质谱 (Orbitrap)<sup>[58]</sup>。

#### 3.3.1 液相色谱-质谱

对于中性和离子型 PFAS, 电喷雾电离 (ESI) 模式的 LC-MS/MS 成为其主要靶向检测方法, 通常采

用三重四级杆多反应监测 (MRM) 模式同时定量分析多个 PFAS。Tian 等<sup>[38]</sup> 使用 LC-MS/MS 分析了大气中 16 种离子型 PFAS, 方法检出限为 0.02~0.12 pg/m<sup>3</sup>。Mulabagal 等<sup>[41]</sup> 采用 UHPLC-MS/MS 对河口水体中 PFAS 进行痕量分析。对于海洋中 PFAS 的痕量分析, 样品一般需在没有过滤的情况下进行, 因为过滤器的吸附而造成目标物的损失。Yamazaki 等<sup>[23]</sup> 使用 WAX 固相萃取柱提取未过滤的表层海水样品, 采用 HPLC-MS/MS(TQD) 进行分析, 定量限为 2~10 pg/L。Baqar 等<sup>[60]</sup> 采用 LC-MS/MS(TQD) 测定了电子垃圾回收站中出现的 PFAS, 电喷雾离子源在

正负两种模式下分析,方法检出限为 0.002~0.15 ng/g。Zhu 等<sup>[50]</sup>采用 LC-MS/MS 测定土壤中 18 种 PFAS,方法检出限为 0.003~0.10 ng/g。

### 3.3.2 气相色谱-质谱

GC-MS 适用于分子量低、挥发性强的物质分析。对于中性和挥发性的 PFAS 分析物,采用 GC-MS 在电子轰击电离源 (EI) 模式<sup>[53]</sup>或在化学电离源 (CI) 模式<sup>[13,37]</sup>下测定。如 Eichler 等<sup>[53]</sup>使用 GC-MS 在 EI 模式下对 FTOH 和全氟辛烷磺酰胺乙醇 (FOSE) 等物质进行了分析。Morales-Mcdevitt 等<sup>[13]</sup>使用 GC-MS 在 CI 模式下分析了室内中性和挥发性的 PFAS,如 FTOH、FOSE 和 FOSE 等。对于难挥发的 PFAS,可以将分析物衍生化生成酯类化合物进行 GC-MS 测定。如 Ye 等<sup>[62]</sup>使用二苯基重氮甲烷衍生化,测定水体中 C<sub>2</sub>~C<sub>14</sub> PFCA,该方法可以保留和分离超短链 (C<sub>2</sub>/C<sub>3</sub>)PFCA 衍生物。此外衍生化 GC-MS 法还可用于分离 PFOA 异构体/对映体,Zhu 等<sup>[63]</sup>使用手性衍生化试剂 (S)-1-苯乙基氯与 PFOA 对映体反应生成 PFOA(R)-1-苯乙酯,分离分析了 3 m-PFOA、4 m-PFOA、3,5-dm-PFOA 对映体以及 L-PFOA、6 m-PFOA 异构体。一般来说,GC 分析的目标物是挥发性和中性 PFAS,不如 LC-MS/MS 使用范围广。

### 3.3.3 传感器

虽然色谱-质谱联用技术已经实现了高灵敏检测,但样品需多步预处理,检测周期较长,不具有现场检测能力。传感器技术具有快速、易操作的优点,可以将其应用于 PFAS 的检测上。根据使用的传感器类型分为电化学传感器、光学传感器和基于智能手机的传感器等。

电化学传感器具有操作简单、装置成本低等优点。Karimian 等<sup>[64]</sup>开发一种基于分子印迹聚合物的电化学传感器,可以检测水中痕量的 PFOS。这种传感器需要一种表征良好的单电子介质 (即二茂铁羧酸或二茂铁甲醇) 进行检测,自然水中缺乏丰富的二茂铁基化合物,这限制了此传感器在水体监测中的实用性。光学传感器将化学信息 (如浓度) 转换为可测量的光学信号。Li 等<sup>[65]</sup>构建了一个基于表面活性剂敏化纳米粒子 UCNPs@COFs 的超灵敏荧光平台,并将其应用于水和食品包装材料中超痕量 PFOS 的检测。传感器技术的一个趋势在基于智能手机的传感器中使用这些可用的光学特性。Fang 等<sup>[66]</sup>开发了一个基于智能手机应用程序的阴离子表面活性剂 (AS, 包括 PFOA 和 PFOS) 检测技术。该技术采用液相萃取将染料 (乙基紫)-AS 的疏水离子对提取到有机相

里,并使用智能手机相机和配套阅读软件读取有机相的颜色,色值与 AS 浓度相关联,通过这些数据拟合到校准曲线上得到稳定的浓度读数输出。

这些新兴传感器不仅显示了实现 PFAS 简单检测的可能方法,而且一些传感器还通过提供足够的灵敏度、选择性和可移动性证明了现场适用性。但 PFAS 传感器仍然是一个不成熟和不断发展的领域,如目前建立的传感器方法主要用于 PFOS 和 PFOA 的检测,而对其他种类 PFAS 的传感器检测较少,以及电化学传感器的电极制备较为繁琐等。同时,限制使用传感器技术连续监测水特性的主要挑战之一是污垢,水质监测是一个长期的活动,传感器极易受到污染,污垢会减少传感器的使用寿命和降低灵敏度<sup>[67]</sup>。

### 3.3.4 非靶向分析

目前常用的 GC/LC-MS 法对 PFAS 进行相对精确灵敏的定性、定量检测,这些检测方法需要标准物质,随着未知 PFAS 的不断出现,非靶向分析对鉴定未知 PFAS 具有重大意义。四级杆-飞行时间质谱 (QTOF-MS)、傅里叶变换离子回旋共振质谱 (FT-ICR MS) 和轨道阱高分辨率质谱 (Orbitrap-HRMS) 凭借超高的分辨能力被用于可疑性筛查和非靶向分析鉴定,不需要标准物质,但是需要非常昂贵的精密仪器和有经验的专业人员,其工作流程<sup>[68]</sup>: ①生成高分辨的全扫描谱图,揭示样品中所有可检测的离子; ②从全扫描数据中筛选 PFAS 特征离子; ③解析得出分子式; ④通过 MS<sup>n</sup>(n≥2) 碎片化实验,确认分子式并揭示结构信息; ⑤进一步验证结构或分子式。Young 等<sup>[69]</sup>使用 FT-ICR 与可疑分析、分子式分配、同位素体和 Kendrick 类似质量差网络相结合筛选 AFFF 中的 PFAS,研究分析出 AFFF 中 163 个已知和 134 个新型 PFAS,证明了 FT-ICR 质谱筛选复杂 AFFF 混合物中 PFAS 及其同位素的能力,特别是非靶向 PFAS 筛查的能力。Gonzalez 等<sup>[70]</sup>利用 UHPLC 与离子迁移-四极杆飞行时间-质谱 (IMS-QTOF-MS) 提供的漂移时间/碰撞截面 (CCS)、精确质量、质量缺陷和质量碎片等多维特征,对环境样品中的 PFAS 进行了靶向和非靶向分析。获取的 CCS 值和保留时间作为化合物特异性参数,可以区分 HRMS 通常无法区分的异构体。Tang 等<sup>[71]</sup>采用 LC-Orbitrap-HRMS 和数据处理算法,对含氟工业废水中的 PFAS 进行了靶向和非靶向分析。采用基于源内中性损失特征和碳、硫同位素分布特征的算法筛选和鉴定 PFAS,大量的 PFAS 分子式被鉴定并赋予了暂定或精确的化

学结构,并且发现了更多的同系物(包括异构体)。此外,机器学习法作为一种典型的人工智能技术,可以识别数据中的模式,破译数据之间的复杂关系,实现可预测的趋势。Han 等<sup>[72]</sup>编制了一个从非目标分析中获得的新兴 PFAS 数据库,并使用机器学习模型评估了它们的持久性、生物蓄积性和毒性,通过定性和定量相结合,共鉴定出 282 种同源物具有持久性、生物蓄积性和毒性。定性和定量相结合的机器学习模型可以为确定其他新兴有机污染物的优先级提供方法论工具。

非靶向 HRMS 法为环境科学家提供了强大的工具,目前科学界已经检测并提出了 1 000 多种新的 PFAS 分析物的结构<sup>[71]</sup>。虽然非靶向 HRMS 法在发现新 PFAS 方面极大加深了人们对当前环境和人体 PFAS 暴露的理解,但许多鉴定仍然是初步的,亟需化学标准合成来验证。这些新兴物质还需进一步的定量检测、毒理学研究以及全面风险评估。在众多 PFAS 中,需确定哪些应优先深入研究,哪些需合成标准品以确认和检测,在此之前,可先进行大规模的时空环境筛选,优先考虑高检测频率的 PFAS 进一步研究<sup>[2]</sup>。

#### 4 总结与展望

a) 环境中 PFAS 主要来源于含氟工业品的生产、含氟消费品的使用及废弃物处理。通过概述 PFAS 污染分布发现,PFAS 在世界范围内广泛存在,短链 PFAS 呈现出替代传统长链 PFAS 的趋势。建议完善对含氟产品的管控与处理方案,合成新兴 PFAS 标准品获取其公开信息。

b) 本研究讨论了不同环境基质适用的前处理方法及应用特点,并发现目前的前处理过程一般较复杂且耗时。LC-MS/MS(ESI-) 模式是 PFAS 分析中最常用的方法,而 GC-MS 主要用于挥发性 PFAS 分析。未来应对 PFAS 痕量及超痕量检测的要求,需开发更加高效快速的样品前处理和定性定量方法;同时,由于受标准品的限制,色谱质谱联用技术能够分析的 PFAS 比较有限,如何分析/表征复杂样品中的未知 PFAS 是极大的挑战。

c) 传感器技术可以实现低成本、快速、可现场部署的 PFAS 检测,未来将会开发更有效地分析和识别各种 PFAS 的传感材料。非靶向 HRMS 分析技术已被证明为鉴定新型 PFAS 的有效手段,但目前 PFAS 非靶向分析仍受限于不完整的 MS 数据库。此外,非靶向分析需处理海量谱图,因此将机器学习应用到 PFAS 分析中将成为未来研究的热点。开发一种能

全面自动化解析 HRMS 数据,用以鉴定已知和未知的 PFAS 技术,仍是未来的目标。

#### 参考文献 (References):

- [ 1 ] WANG Z Y,BUSER A M,COUSINS I T,et al.A new OECD definition for per- and polyfluoroalkyl substances[J]. *Environmental Science & Technology*,2021,55(23):15575-15578.
- [ 2 ] ANDROULAKAKIS A,ALYGIZAKIS N,BIZANI E,et al.Current progress in the environmental analysis of poly- and perfluoroalkyl substances (PFAS)[J]. *Environmental Science:Advances*,2022,1(5):705-724.
- [ 3 ] COUSINS I T,DEWITT J C,GLÜGE J,et al.The high persistence of PFAS is sufficient for their management as a chemical class[J]. *Environmental Science Processes & Impacts*,2020,22(12):2307-2312.
- [ 4 ] GLÜGE J,SCHERINGER M,COUSINS I T,et al.An overview of the uses of per- and polyfluoroalkyl substances (PFAS)[J]. *Environmental Science Processes & Impacts*,2020,22(12):2345-2373.
- [ 5 ] SUNDERLAND E M,HU X C,DASSUNCAO C,et al.A review of the pathways of human exposure to poly- and perfluoroalkyl substances (PFASs) and present understanding of health effects[J]. *Journal of Exposure Science & Environmental Epidemiology*,2019,29(2):131-147.
- [ 6 ] ANDERKO L,PENNEA E.Exposures to per-and polyfluoroalkyl substances (PFAS):potential risks to reproductive and children's health[J]. *Current Problems in Pediatric and Adolescent Health Care*,2020,50(2):100760.
- [ 7 ] 生态环境部.重点管控新污染物清单(2023 年版)[EB/OL].北京:生态环境部,(2022-12-29)[2024-12-30].[https://www.mee.gov.cn/gzk/gz/202212/t20221230\\_1009192.shtml](https://www.mee.gov.cn/gzk/gz/202212/t20221230_1009192.shtml).
- [ 8 ] D'AMBRO E L,PYE H O T,BASH J O,et al.Characterizing the air emissions,transport,and deposition of per- and polyfluoroalkyl substances from a fluoropolymer manufacturing facility[J]. *Environmental Science & Technology*,2021,55(2):862-870.
- [ 9 ] LANGBERG H A,ARP H P H,BREEDVELD G D,et al.Paper product production identified as the main source of per- and polyfluoroalkyl substances (PFAS) in a Norwegian lake:sources and historic emission tracking[J]. *Environmental Pollution*,2021,273:116259.
- [ 10 ] QU Y X,HUANG J,WILLAND W,et al.Occurrence,removal and emission of per- and polyfluorinated alkyl substances (PFASs) from chrome plating industry:a case study in Southeast China[J]. *Emerging Contaminants*,2020,6:376-384.
- [ 11 ] PÜTZ K W,NAMAZKAR S,PLASSMANN M,et al.Are cosmetics a significant source of PFAS in Europe?product inventories,chemical characterization and emission estimates[J]. *Environmental Science Processes & Impacts*,2022,24(10):1697-1707.
- [ 12 ] SAJID M,ILYAS M.PTFE-coated non-stick cookware and toxicity concerns:a perspective[J]. *Environmental Science and*

- Pollution Research International*,2017,24(30):23436-23440.
- [13] MORALES-MCDEVITT M E,BECANOVA J,BLUM A,et al.The air that we breathe:neutral and volatile PFAS in indoor air[J]. *Environmental Science & Technology Letters*,2021,8(10):897-902.
- [14] ADAMSON D T,NICKERSON A,KULKARNI P R,et al.Mass-based,field-scale demonstration of PFAS retention within AFFF-associated source areas[J]. *Environmental Science & Technology*,2020,54(24):15768-15777.
- [15] WEI Z S,XU T Y,ZHAO D Y.Treatment of per- and polyfluoroalkyl substances in landfill leachate:status,chemistry and prospects[J]. *Environmental Science:Water Research & Technology*,2019,5(11):1814-1835.
- [16] CAPOZZI S L,LEANG A L,RODENBURG L A,et al.PFAS in municipal landfill leachate:occurrence,transformation,and sources [J]. *Chemosphere*,2023,334:138924.
- [17] LIU Y L,ROBEY N M,BOWDEN J A,et al.From waste collection vehicles to landfills:indication of per- and polyfluoroalkyl substance (PFAS) transformation[J]. *Environmental Science & Technology Letters*,2021,8:66-72.
- [18] DASU K,XIA X Y,SIRIWARDENA D,et al.Concentration profiles of per- and polyfluoroalkyl substances in major sources to the environment[J]. *Journal of Environmental Management*,2022,301:113879.
- [19] GOBELIUS L,GLIMSTEDT L,OLSSON J,et al.Mass flow of per- and polyfluoroalkyl substances (PFAS) in a Swedish municipal wastewater network and wastewater treatment plant[J]. *Chemosphere*,2023,336:139182.
- [20] JIA Y Q,SHAN C,FU W Y,et al.Occurrences and fates of per- and polyfluoroalkyl substances in textile dyeing wastewater along full-scale treatment processes[J]. *Water Research*,2023,242:120289.
- [21] 史亚利,张博纳,郑哲,等.全氟和多氟烷基类物质在大气环境中的存在和行为研究进展 [J]. *环境科学研究*,2022,35(9):2037-2046.
- SHI Y L,ZHANG B N,ZHENG Z,et al.Research progress on existence and behavior of per-and polyfluoroalkyl substances in atmosphere[J]. *Research of Environmental Sciences*,2022,35(9):2037-2046.
- [22] 庄意如,吴婧,董冰琦,等.大气中部分全氟和多氟烷基化合物的污染特征、大气来源区域及健康影响 [J]. *环境化学*,2024.doi:10.7524/j.issn.0254-6108.2023120603.
- ZHUANG Y R,WU J,DONG B Q,et al.Pollution characteristics, atmospheric source regions,and health risks of partial perfluorinated and polyfluoroalkyl substances in the atmosphere [J]. *Environmental Chemistry*,2024.doi:10.7524/j.issn.0254-6108.2023120603.
- [23] YAMAZAKI E,TANIYASU S,WANG X H,et al.Per- and polyfluoroalkyl substances in surface water,gas and particle in open ocean and coastal environment[J]. *Chemosphere*,2021,272:129869.
- [24] WONG F,SHOEIB M,KATSOYIANNIS A,et al.Assessing temporal trends and source regions of per- and polyfluoroalkyl substances (PFASs) in air under the Arctic Monitoring and Assessment Programme (AMAP)[J]. *Atmospheric Environment*,2018,172:65-73.
- [25] 宋博宇,郑哲,吕继涛,等.全氟和多氟烷基类化合物 (PFASs) 的环境转化与分类管控 [J]. *环境科学研究*,2022,35(9):2047-2057.
- SONG B Y,ZHENG Z,LÜ J T,et al.Environmental transformation and classified management of per-and polyfluoroalkyl substances (PFASs)[J]. *Research of Environmental Sciences*,2022,35(9):2047-2057.
- [26] BAABISH A,SOBHANEI S,FIEDLER H.Priority perfluoroalkyl substances in surface waters:a snapshot survey from 22 developing countries[J]. *Chemosphere*,2021,273:129612.
- [27] WANG S Q,CAI Y Z,MA L Y,et al.Perfluoroalkyl substances in water,sediment,and fish from a subtropical river of China: environmental behaviors and potential risk[J]. *Chemosphere*,2022,288:132513.
- [28] MIRANDA D,LEONEL J,BENSKIN J P,et al.Perfluoroalkyl substances in the western tropical Atlantic Ocean[J]. *Environmental Science & Technology*,2021,55(20):13749-13758.
- [29] DAI Y H,TIAN G P,WANG H,et al.Distribution and bioaccumulation of per- and polyfluoroalkyl substances (PFASs) in the Kuroshio Extension region of Northwest Pacific Ocean[J]. *Water Research*,2024,265:122256.
- [30] BRUSSEAU M L,ANDERSON R H,GUO B.PFAS concentrations in soils:background levels versus contaminated sites [J]. *Science of the Total Environment*,2020,740:140017.
- [31] 刘浩然,邢静怡,任文杰.中国土壤中全氟和多氟烷基物质的分布、迁移及管控研究进展 [J]. *环境科学*,2024,45(1):376-385.
- LIU H R,XING J Y,REN W J.Research progress on distribution, transportation,and control of per- and polyfluoroalkyl substances in Chinese soils[J]. *Environmental Science*,2024,45(1):376-385.
- [32] GAN C D,PENG M Y,LIU H B,et al.Concentration and distribution of metals,total fluorine,per- and poly-fluoroalkyl substances (PFAS) in vertical soil profiles in industrialized areas [J]. *Chemosphere*,2022,302:134855.
- [33] 陈诗艳,仇雁翎,朱志良,等.土壤中全氟和多氟烷基化合物的污染现状及环境行为 [J]. *环境科学研究*,2021,34(2):468-478.
- CHEN S Y,QIU Y L,ZHU Z L,et al.Current pollution status and environmental behaviors of PFASs in soil[J]. *Research of Environmental Sciences*,2021,34(2):468-478.
- [34] LIU Z Y,LU Y L,SHI Y J,et al.Crop bioaccumulation and human exposure of perfluoroalkyl acids through multi-media transport from a mega fluorochemical industrial park,China[J]. *Environment International*,2017,106:37-47.
- [35] 朱清禾,钱佳浩,杨洁.中国土壤与地下水中全氟和多氟烷基化合物分布现状 [J]. *环境污染与防治*,2024,46(6):908-916.
- ZHU Q H,QIAN J H,YANG J.Current status of PFAS distribution in soil and groundwater across China[J]. *Environmental Pollution & Control*,2024,46(6):908-916.
- [36] WALLACE M A G,SMELTZ M G,MATTILA J M,et al.A review

- of sample collection and analytical methods for detecting per- and polyfluoroalkyl substances in indoor and outdoor air[J]. *Chemosphere*,2024,358:142129.
- [37] ZHAO Z,TANG J H,MI L J,et al.Perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances in the lower atmosphere and surface waters of the Chinese Bohai Sea,Yellow Sea,and Yangtze River estuary[J].*Science of the Total Environment*,2017,599:114-123.
- [38] TIAN Y,YAO Y M,CHANG S,et al.Occurrence and phase distribution of neutral and ionizable per- and polyfluoroalkyl substances (PFASs) in the atmosphere and plant leaves around landfills:a case study in Tianjin,China[J].*Environmental Science & Technology*,2018,52(3):1301-1310.
- [39] WHITE K B,KALINA J,SCHERINGER M,et al.Temporal trends of persistent organic pollutants across Africa after a decade of MONET passive air sampling[J].*Environmental Science & Technology*,2021,55(14):9413-9424.
- [40] YAO Y M,ZHAO Y Y,SUN H W,et al.Per- and polyfluoroalkyl substances (PFASs) in indoor air and dust from homes and various microenvironments in China:implications for human exposure[J].*Environmental Science & Technology*,2018,52(5):3156-3166.
- [41] MULABAGAL V,LIU L,QI J Y,et al.A rapid UHPLC-MS/MS method for simultaneous quantitation of 23 perfluoroalkyl substances (PFAS) in estuarine water[J].*Talanta*,2018,190:95-102.
- [42] MEDON B,PAUTLER B G,SWEETT A,et al.A field-validated equilibrium passive sampler for the monitoring of per- and polyfluoroalkyl substances (PFAS) in sediment pore water and surface water[J].*Environmental Science:Processes & Impacts*,2023,25(5):980-995.
- [43] KASERZON S L,VIJAYASARATHY S,BRÄUNIG J,et al. Calibration and validation of a novel passive sampling device for the time integrative monitoring of per- and polyfluoroalkyl substances (PFASs) and precursors in contaminated groundwater [J].*Journal of Hazardous Materials*,2019,366:423-431.
- [44] LIU M,MUNOZ G,DUY S V,et al.Per- and polyfluoroalkyl substances in contaminated soil and groundwater at airports:a Canadian case study[J].*Environmental Science & Technology*,2022,56(2):885-895.
- [45] SCHUMACHER B A,ZIMMERMAN J H,WILLIAMS A C,et al. Distribution of select per- and polyfluoroalkyl substances at a chemical manufacturing plant[J].*Journal of Hazardous Materials*,2024,464:133025.
- [46] SCHILDROTH S,RODGERS K M,STRYNAR M,et al.Per-and polyfluoroalkyl substances (PFAS) and persistent chemical mixtures in dust from U.S.colleges[J].*Environmental Research*,2022,206:112530.
- [47] YAMAZAKI E,LALWANI D,RUAN Y F,et al.Nationwide distribution of per- and polyfluoroalkyl substances (PFAS) in road dust from India[J].*Science of the Total Environment*,2023,892:164538.
- [48] SALEEBY B,SHIMIZU M S,SANCHEZ G R I,et al.Isomers of emerging per- and polyfluoroalkyl substances in water and sediment from the Cape Fear River,North Carolina,USA[J]. *Chemosphere*,2021,262:128359.
- [49] LI F S,HUANG H Y,XU Z B,et al.Investigation of perfluoroalkyl substances (PFASs) in sediments from the urban lakes of Anqing City,Anhui Province,China[J].*Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*,2017,99(6):760-764.
- [50] ZHU Q H,QIAN J H,HUANG S F,et al.Occurrence,distribution, and input pathways of per- and polyfluoroalkyl substances in soils near different sources in Shanghai[J].*Environmental Pollution*,2022,308:119620.
- [51] LENKA S P,KAH M,PADHYE L P.A review of the occurrence, transformation,and removal of poly- and perfluoroalkyl substances (PFAS) in wastewater treatment plants[J].*Water Research*,2021,199:117187.
- [52] ZHAO Z,CHENG X H,HUA X,et al.Emerging and legacy per- and polyfluoroalkyl substances in water,sediment,and air of the Bohai Sea and its surrounding rivers[J].*Environmental Pollution*,2020,263:114391.
- [53] EICHLER C M A,CHANG N Y,COHEN HUBAL E A,et al.Cloth-air partitioning of neutral per- and polyfluoroalkyl substances (PFAS) in north Carolina homes during the indoor PFAS assessment (IPA) campaign[J].*Environmental Science & Technology*,2023,57(40):15173-15183.
- [54] WANG J,SHI Y L,CAI Y Q.A highly selective dispersive liquid-liquid microextraction approach based on the unique fluorine affinity for the extraction and detection of per- and polyfluoroalkyl substances coupled with high performance liquid chromatography tandem-mass spectrometry[J].*Journal of Chromatography A*,2018,1544:1-7.
- [55] TRAN N T Y,TRAN V T K,NGUYEN M A,et al.Method development for analysis 13 per- and polyfluoroalkyl acids in tap water by HPLC-MS/MS[J].*Vietnam Journal of Chemistry*,2023,61(S2):118-123.
- [56] OLOMUKORO A A,DeROSA C,GIONFRIDDO E.Investigation of the adsorption/desorption mechanism of perfluoroalkyl substances on HLB-WAX extraction phases for microextraction [J].*Analytica Chimica Acta*,2023,1260:341206.
- [57] MOTTALEB M A,DING Q X,PENNELL K G,et al.Direct injection analysis of per and polyfluoroalkyl substances in surface and drinking water by sample filtration and liquid chromatography-tandem mass spectrometry[J].*Journal of Chromatography A*,2021,1653:462426.
- [58] AL AMIN M,SOBHANI Z,LIU Y J,et al.Recent advances in the analysis of per- and polyfluoroalkyl substances (PFAS):a review [J].*Environmental Technology & Innovation*,2020,19:100879.
- [59] 陈俊杰,张蓓蓓,陈国松,等.超高效液相色谱-串联质谱法测定污水和污泥基质中的20种全氟及多氟化合物[J].*分析化学*,2019,47(4):533-540.
- CHEN Y J,ZHANG B B,CHEN G S,et al.Analysis of 20 kinds of perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances in wastewater and sludge samples with ultra-high performance liquid

- chromatography-tandem mass spectrometry[J]. Chinese Journal of Analytical Chemistry, 2019, 47(4): 533-540.
- [ 60 ] BAQAR M, ZHAO M S, SALEEM R, et al. Identification of emerging per- and polyfluoroalkyl substances (PFAS) in E-waste recycling practices and new precursors for trifluoroacetic acid[J]. Environmental Science & Technology, 2024, 58(36): 16153-16163.
- [ 61 ] SADIA M, NOLLEN I, HELMUS R, et al. Occurrence, fate, and related health risks of PFAS in raw and produced drinking water [J]. Environmental Science & Technology, 2023, 57(8): 3062-3074.
- [ 62 ] YE R X, Di LORENZO R A, CLOUTHIER J T, et al. A rapid derivatization for quantitation of perfluorinated carboxylic acids from aqueous matrices by gas chromatography-mass spectrometry [J]. Analytical Chemistry, 2023, 95(19): 7648-7655.
- [ 63 ] ZHU J, HARADA K H, ZOU X L, et al. Investigating isomers/enantiomers of perfluorooctanoic acid in river water by gas chromatography-mass spectrometry with chiral derivatization[J]. Chemosphere, 2020, 238: 124617.
- [ 64 ] KARIMIAN N, STORTINI A M, MORETTO L M, et al. Electrochemosensor for trace analysis of perfluorooctanesulfonate in water based on a molecularly imprinted poly (o-phenylenediamine) polymer[J]. ACS Sensors, 2018, 3(7): 1291-1298.
- [ 65 ] LI J, ZHANG C Y, YIN M Y, et al. Surfactant-sensitized covalent organic frameworks-functionalized lanthanide-doped nanocrystals: an ultrasensitive sensing platform for perfluorooctane sulfonate [J]. ACS Omega, 2019, 4(14): 15947-15955.
- [ 66 ] FANG C, ZHANG X, DONG Z M, et al. Smartphone app-based/portable sensor for the detection of fluoro-surfactant PFOA [J]. Chemosphere, 2018, 191: 381-388.
- [ 67 ] RODRIGUEZ K L, HWANG J H, ESFAHANI A R, et al. Recent developments of PFAS-detecting sensors and future direction: a review [J]. Micromachines, 2020, 11(7): 667.
- [ 68 ] LIU Y N, D'AGOSTINO L A, QU G B, et al. High-resolution mass spectrometry (HRMS) methods for nontarget discovery and characterization of poly- and per-fluoroalkyl substances (PFASs) in environmental and human samples [J]. TrAC Trends in Analytical Chemistry, 2019, 121: 115420.
- [ 69 ] YOUNG R B, PICA N E, SHARIFAN H, et al. PFAS analysis with ultrahigh resolution 21T FT-ICR MS: suspect and nontargeted screening with unrivaled mass resolving power and accuracy [J]. Environmental Science & Technology, 2022, 56(4): 2455-2465.
- [ 70 ] GONZALEZ de VEGA R, CAMERON A, CLASES D, et al. Simultaneous targeted and non-targeted analysis of per- and polyfluoroalkyl substances in environmental samples by liquid chromatography-ion mobility-quadrupole time of flight-mass spectrometry and mass defect analysis [J]. Journal of Chromatography A, 2021, 1653: 462423.
- [ 71 ] TANG C M, LIANG Y T, WANG K, et al. Comprehensive characterization of per- and polyfluoroalkyl substances in wastewater by liquid chromatography-mass spectrometry and screening algorithms [J]. NPJ Clean Water, 2023, 6: 6.
- [ 72 ] HAN B C, LIU J S, BIZIMANA A, et al. Identifying priority PBT-like compounds from emerging PFAS by nontargeted analysis and machine learning models [J]. Environmental Pollution, 2023, 338: 122663.

(责任编辑: 刘 方)