

doi: 10.12452/j.fxcxb.26052004

机器学习算法在全氟和多氟烷基物质质谱分析中的应用进展

丁超¹, 叶呈富¹, 赵精琦¹, 赵琳琳¹, 熊曼馨¹, 裴聪聪², 张岩皓¹,
彭子芳^{3*}, 张书胜^{2*}

(1. 郑州大学 生态与环境学院, 河南 郑州 450001; 2. 郑州大学 化学学院, 河南 郑州 450001; 3. 郑州大学 公共卫生学院, 河南 郑州 450001)

摘要: 全氟和多氟烷基物质 (PFAS) 作为全球性持久性新污染物, 对生态系统和人类健康存在风险, 准确检测其含量对污染防控至关重要。质谱检测因高灵敏度、高特异性等优势, 成为PFAS检测的主流技术, 但单一的质谱检测在复杂基质干扰、未知物识别、海量数据处理方面存在不足。针对上述问题, 将机器学习算法与质谱技术进行深度融合, 引入机器学习与深度学习模型对高维质谱数据进行特征自学习与碎片谱图预测, 可有效提升PFAS检测的精准度与效率。该文系统梳理了质谱检测PFAS中机器学习算法的应用, 分析了算法提升检测性能的作用原理与实现路径, 并对未来应用前景进行展望, 为PFAS污染研究与治理提供了方法支撑。

关键词: PFAS; 质谱检测; 机器学习; 深度学习; 算法

中图分类号: O657.63; O613.41 **文献标识码:** A **文章编号:** 1004-4957(XXXX)XX-0001-12

Progress in the Application of Machine Learning Algorithms in Mass Spectrometry Analysis of Per- and Polyfluoroalkyl Substances

DING Chao¹, YE Cheng-fu¹, ZHAO Jing-qi¹, ZHAO Lin-lin¹, XIONG Man-xin¹, PEI Cong-cong², ZHANG Yan-hao¹, PENG Zi-fang^{3*}, ZHANG Shu-sheng^{2*}

(1. College of Ecology and Environment, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China; 2. College of Chemistry, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China; 3. School of Public Health, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China)

Abstract: Per- and polyfluoroalkyl substances (PFAS), as global persistent emerging contaminants, pose risks to ecosystems and human health. Accurate detection of their concentrations is critical for pollution prevention and control. Mass spectrometry (MS) has become the mainstream technique for PFAS detection due to its high sensitivity and specificity. However, standalone MS detection suffers from limitations in complex matrix interference, unknown compound identification, and massive data processing. To address these issues, deep integration of machine learning algorithms with MS technology, which employs machine learning and deep learning models for automatic feature learning and fragment spectrum prediction on high-dimensional MS data, can effectively improve the accuracy and efficiency of PFAS detection. This paper systematically reviews the applications of machine learning algorithms in MS-based PFAS analysis, analyzes the underlying mechanisms and implementation pathways through which these algorithms enhance detection performance, and discusses future application prospects, providing methodological support for PFAS pollution research and remediation.

Key words: PFAS; mass spectrometry (MS) detection; machine learning; deep learning; algorithm

“分析测试青年创新大赛”专栏

收稿日期: 2026-05-20; 修回日期: 2026-08-28

基金项目: 国家自然科学基金 (项目编号: 22506187)

* 通讯作者: 彭子芳, 博士, 副研究员, 研究方向: 基于功能材料的污染物分析、环境污染与健康, E-mail: zifang_peng@zzu.edu.cn;
张书胜, 教授, 研究方向: 色谱分离与分析, E-mail: zsszz@126.com

#该文为 2026 分析测试青年创新大赛决赛优秀参赛成果

全氟和多氟烷基物质 (PFAS) 是一类烷基链中与碳原子相连的氢全部或部分被氟原子取代且具有末端功能基团的人造脂肪族化合物。由于分子中碳-氟键 (C-F) 键能极高, 使得这类化合物具有极高的化学稳定性、热稳定性以及独特的疏水疏油特性, 被广泛应用于纺织、造纸和包装等工业和民用领域^[1-3]。PFAS 种类繁多, 根据美国环境保护署 (EPA) 2025 年 7 月 9 日更新的官方报告, 其计算毒理学与暴露中心 (CCTE) 识别出的 PFAS 化合物共计 14 735 种^[4]。依据分子结构, PFAS 可分为非聚合物与聚合物两大类 (图 1)。其中, 非聚合物根据碳链氟化程度, 进一步细分为全氟烷基物质和多氟烷基物质: 前者主要包括全氟羧酸 (PFCAs)、全氟磺酸 (PFSA)s 及全氟膦酸/次膦酸 (PFPA)s、PFPIA)s 等, 后者则涵盖全氟磺酰胺及其衍生物 (FASA)s、FASE)s、氟调聚物类物质 (FTOH)s、FTAC)s、FTSA)s 等。聚合物类 PFAS 则涉及氟聚合物 (如 PTFE、PVDF)、全氟聚醚 (PFPE)s 及侧链氟化聚合物^[5-6]。这些 PFAS 的极高稳定性导致其在自然界中难以降解, 可通过水体、大气、土壤等介质长距离扩散, 在水体与土壤中富集并通过食物链、食物网进入人体, 对生态系统和人类健康造成极大危害^[7-8]。美国毒物与疾病登记署 (ATSDR) 发布的报告明确指出^[9], 传统 PFAS 暴露 (如 PFOA、PFOS 等) 可引发多方面不良健康效应, 包括肝损伤、甲状腺疾病与内分泌紊乱等, 还会降低人体免疫水平、增加哮喘发病风险, 并导致生育能力下降。此外, 一些新型的 PFAS (GenX, 多氟烷基磷酸酯等)^[10-11] 和多种污染物混合暴露的健康风险同样不容忽视, 需通过严格检测与管控降低人群暴露风险。

鉴于 PFAS 带来的严峻挑战, 全球多个国家和地区已陆续出台限制或禁止特定 PFAS 生产与使用的法律法规, 全氟辛酸 (PFOA) 和全氟辛基磺酸 (PFOS) 作为典型受控物质, 分别于 2009 年和 2019 年被《斯德哥尔摩公约》列为持久性有机污染物 (POPs)^[12]。全氟己基磺酸 (PFHxS)、全氟壬酸 (PFNA)、全氟癸酸 (PFDA) 等其他长链 PFAS 也被多国纳入严格管控清单, 欧盟、美国、加拿大等相继通过法规限制其生产、投放与使用^[13-14]。在此背景下, 建立 PFAS 的高效、精准检测方法已成为环境与公共健康领域的核心需求。

质谱 (MS) 技术凭借其高灵敏度和高特异性, 可实现复杂基质中痕量 PFAS 的多组分同时定量, 是 PFAS 检测的核心分析方法^[15-17]。高分辨质谱 (HRMS) 凭借高质量精度与高分辨率, 可将分子量接近的 PFAS 同分异构体、同系物及基质干扰物加以区分, 有效排除假阳性干扰, 并拓宽可定量的 PFAS 种类范围^[18]。然而, 单一的 MS 技术在 PFAS 检测中存在依赖人工设定参数与手动判读, 难以高通量提取复杂基质特征, 无法自适应解析新型氟化物裂解规律导致筛查效率受限, 且无法自动实现污染源甄别与迁移追踪等溯源分析等问题, 需结合其他互补手段, 共同构建全面的风险防控体系^[19]。

机器学习算法的发展为 MS 分析提供技术支撑^[20], 传统机器学习与深度学习算法能够替代人工高效处理复杂基质下的海量质谱数据, 提升 PFAS 识别速度与覆盖率, 并挖掘隐形特征实现未知 PFAS 的预测与分类^[21]。在此基础上将数据与环境参数相结合进行分析, 可进一步实现污染源溯源分析与风险评估。本文将系统综述机器学习在 MS 检测 PFAS 中的算法以及应用并展望未来的发展方向, 为 MS 检测 PFAS 提供方法支撑。

1 质谱检测 PFAS 中的机器学习算法

机器学习是在无需人为编写显式规则的情况下, 利用算法从数据中提取特征、构建模型, 并不断优化预测或决策能力, 从而实现对复杂信息的高效解析与精准判断^[22]。根据模型的复杂度不同, 机器学习可分为传统机器学习方法和深度学习方法两类。当前有许多传统机器学习的模型和算法, 包括基于统计学习理论的支持向量机 (SVM)、能处理高维数据的随机森林 (RF)、用于特征提取与降维的主成分分析 (PCA) 以及经典的聚类算法如 K-均值 (K-means) 等被用于 PFAS 的检测与鉴定^[23-24]。随着深度学习技术的发展, 卷积神经网络 (CNN)、循环神经网络 (RNN) 及其变体长短期记忆网络 (LSTM) 被广泛应用于 MS 数据的端到端学习^[25], 能够自动提取 MS 图中的深层特征, 显著提升了对复杂环境样品中 PFAS 的识别准确率和检测灵敏度^[26-27]。本节基于传统机器学习算法和深度学习算法两大类, 介绍 MS 检测 PFAS 研究中常用的算法。

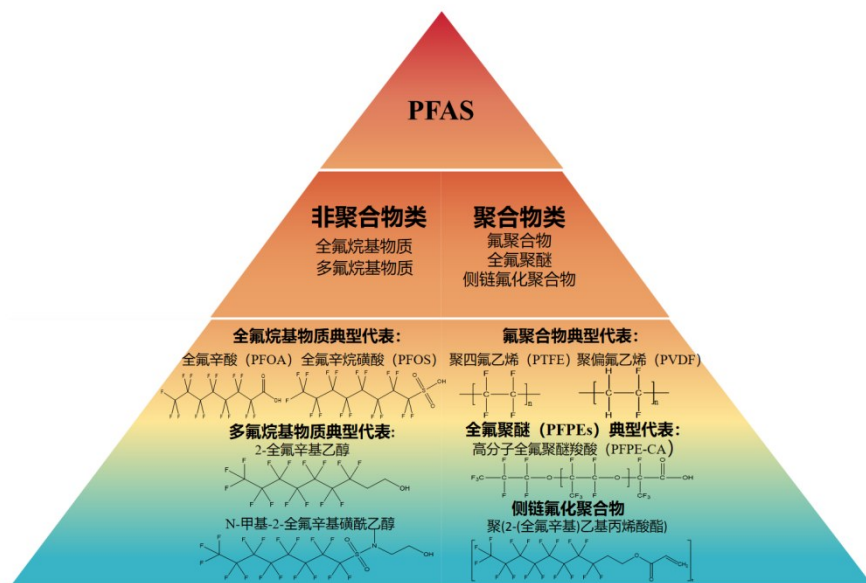


图 1 PFAS 分类示意图

Fig. 1 Schematic diagram of PFAS classification [6]

1.1 传统机器学习算法

传统机器学习在处理结构化和半结构化的 PFAS 质谱数据方面具有显著优势。根据功能的不同，可将常用算法分为降维、特征选择、聚类、分类及回归分析方法等。

1.1.1 降维方法 降维技术用于将高维 MS 数据投影到低维空间，便于可视化和噪声滤除 [28]，以 PCA 和 t-分布随机邻域嵌入 (t-SNE) 两种方法最为常用。PCA 是一种无监督线性降维方法，通过保留最大方差方向，将高维、冗余且存在相关性的原始变量正交投影为少数几个彼此独立的主成分，在最大程度保留数据信息的同时，实现数据简化与可视化 [29]。在 PFAS 检测中 PCA 可用于高维数据降维、识别污染组成特征、区分不同污染源指纹，辅助提升源解析与机器学习建模的效率与准确性 [30]。t-SNE 是一种非线性降维方法，用于保持高维数据的局部邻域结构 [31]，在 PFAS 检测中可将复杂多维浓度数据映射至二维，清晰呈现样本局部相似性与簇间差异，精准区分 PFAS 生物富集特征，弥补 PCA 等线性降维难以刻画非线性关系表征的不足 [32]。

1.1.2 特征选择方法 降维通过变换原始特征生成新的低维特征，特征选择方法则直接保留原始特征子集，从而在降低模型复杂度的同时提升可解释性 [33]。根据筛选策略，特征选择算法可分为过滤式、包裹式和嵌入式三类，其复杂度和与模型的耦合程度逐级递增。过滤式方法独立于模型，基于统计量评估特征重要性，如皮尔逊相关系数通过衡量特征间的线性相关性剔除冗余变量，以缓解多重共线性对模型训练的干扰 [34]。包裹式方法以模型性能为优化目标，典型代表为递归特征消除 (RFE)，通过迭代训练模型并剔除权重最低的特征，逐步逼近最优子集，从而提升分类精度与计算效率 [35]。嵌入式方法如随机森林 (RF) 和极致梯度提升 (XGBoost) 等算法可依据自身重要性排序直接识别对 PFAS 分类贡献最大的质谱特征。经特征筛选后的数据，可为后续无监督聚类与有监督分类提供更精炼、更具区分度的输入特征。

1.1.3 聚类方法 在完成特征筛选的基础上，聚类分析可进一步探索样本或特征之间的天然分组结构，尤其适用于 MS 非靶向筛查中未知化合物的簇划分。常用的聚类算法有 K-均值、高斯混合模型 (GMM)、层次聚类 (HC) 和 DBSCAN (密度聚类) 等算法。K-均值 [36] 通过迭代更新簇中心将样本划分为预定数量的簇，可用于快速划分 MS 特征矩阵，辅助初步筛选具有相似 MS 行为的化合物簇；DBSCAN 通过基于密度的空间聚类将高密度区域划分为簇，无需预先指定簇数量，能识别任意形状簇并自动标记噪声点；GMM 假设数据由多个高斯分布生成，输出软聚类结果 [37]；HC 通过凝聚或分裂方式构建树状图，提供多尺度的相似性关系。这些聚类方法可用于辅助 MS 特征的分组、同系物谱图的相似性分析以及非靶向筛查中的化合物簇划分等 [32]。聚类结果所揭示的样本分组模式，往往能为后续分

类任务提供标签标注的参考依据与先验知识。

1.1.4 分类方法 若聚类旨在“无标签”条件下发现数据的内在分组,则分类方法的目标是借助已知标签构建判别模型,以实现未知样本的类别预测。分类方法可用于判断 PFAS 存在、识别类别及区分同系物/异构体。支持向量机(SVM)、逻辑回归(LR)和贝叶斯网络(BN)是三类典型且广泛使用的分类算法,SVM通过最大化间隔及核函数处理非线性问题,在小样本MS数据集上表现优异^[38]。LR可以直接输出分类的后验概率,计算效率高且可解释性强^[39],可作为PFAS基线分类模型来判断PFAS的暴露情况^[40]。BN是一种概率图模型^[41],能够整合碎片离子、保留时间和前体离子的概率关联,可用于精准预测地下水中短链PFAS超标风险、识别关键影响因素,并实现污染风险空间可视化^[42]。

相较于上述依赖单一模型的经典方法,集成树方法通过组合多个基学习器(即决策树)进一步提升预测性能,是分类任务中应用最为广泛的算法系列之一。该类方法基于决策树的集成学习,主要算法包括RF、极端随机树(Extra Trees)和XGBoost^[43]。RF采用Bagging策略,在节点分裂时随机选择部分特征,抗过拟合能力强^[44];Extra Trees进一步随机化分裂点,在噪声较大的MS特征中表现稳健^[45];XGBoost则采用梯度提升框架,引入L1/L2正则化与二阶梯度近似,训练速度快且泛化能力强,不易过拟合^[46],可高效处理PFAS相关多变量拟合与预测任务^[47]。

1.1.5 回归分析方法 与前述分类方法着眼于定性类别判别不同,回归分析旨在建立输入特征与连续数值目标变量之间的映射关系。在PFAS质谱分析中,回归分析主要用于标准品匮乏条件下的浓度估算、电离效率预测以及生物富集因子估算等任务。常用回归算法包括支持向量回归(SVR)、随机森林回归和XGBoost回归等,其核心策略分别为核函数映射、多树集成平均与梯度提升优化^[48]。回归方法、分类方法与聚类方法在分析目标上形成明确分工,分别对应数值预测、类别判别与结构探索三类任务,三者的协同使用可构建PFAS质谱数据从定量估算到定性判别再到无监督发现的分析体系。

1.2 深度学习

深度学习通过多层非线性变换自动提取层次化特征,擅长处理复杂高维质谱数据,主要包括深度神经网络(DNN)、CNN以及图注意力网络(GAT)。DNN由多个全连接隐藏层构成,能够学习MS特征之间复杂的非线性交互。CNN是DNN下的一类专用网络架构,擅于提取局部相关模式。一维CNN可直接分析MS序列,自动提取峰形、峰宽等局部特征,用于PFAS识别预测^[49]。上述模型主要面向MS信号的特征提取,而GAT则采用分子结构图数据,利用自注意力机制为分子图中相邻原子节点分配不同的权重,能够从PFAS的分子结构出发,自动识别并预测新型PFAS化合物是否具有持久性、生物蓄积性或毒性等属性^[50]。

2 机器学习在PFAS质谱分析中的实际应用

尽管MS已成为PFAS检测的主流技术,但面对复杂样品与不断涌现的新型PFAS同系物,传统MS方法仍面临背景干扰强、目标物信号弱、相似物依赖人工经验、基质效应影响定量准确性等瓶颈。机器学习算法的引入为MS检测PFAS提供了有效的智能化分析途径。本节围绕机器学习在PFAS质谱分析中的应用,从未知物的筛查与鉴定、污染物溯源、浓度预测及风险评估四个方面,对最新研究进展进行系统综述。

2.1 未知物的筛查与鉴定

复杂环境、食品、生命等基质中存在大量结构未知、种类繁多的新型污染物,其理化性质与迁移转化规律尚不明确,且缺乏标准品与谱库信息,传统定性方法难以实现精准识别。同时,样品基质干扰强、目标物浓度低,常规分析手段易出现假阳性,无法满足未知污染物高效鉴定的需求。HRMS凭借亚ppm级的质量精度、数万级的分辨率及全谱采集能力,可同时记录数万至数十万个MS特征,为非靶向筛查提供了数据基础。Getzinger等^[51]整合公开PFAS清单并预测其环境转化产物,构建了包含3.9万余种结构的分子数据库,同时利用机器学习算法CFM生成对应的计算机模拟MS/MS谱库,为HRMS非靶向筛查提供了关键基础资源。针对环境样品的检测,Zweigle等^[52]将Kendrick质量缺陷分析与FindPFAS碎片质量差异相结合,在不依赖标准品的情况下利用高效液相色谱-四极杆飞行时间质谱

联用仪 (HPLC-QTOF-MS) 对德国受 PFAS 污染的农业土壤进行非靶向筛查 (图 2 A), 从数万 MS 峰中自动筛选出具有 CF_2 重复单元的同系物系列 (图 2 B), 通过同源系列检测与特征碎片匹配, 最终识别出 10 个新 PFAS 类别及 73 种单一 PFAS。然而, 单纯依靠精确质量和碎片匹配对同分异构体的区分能力有限, 假阳性率较高。为了提高鉴定的置信度, Foster 等^[53] 在传统保留时间与质荷比二维 MS 数据基础上, 耦合离子迁移谱 (IMS) 增加了碰撞截面 (CCS) 这一与分子构象相关的物理正交参数, 采用液相色谱-离子迁移谱-质谱 (LC-IMS-MS) 测定 88 种 PFAS 标准品的 CCS 并建立公开数据库, 基于线性支持向量回归 (SVR) 开发 CCSP 2.0 模型并将该流程应用于 NIST 人血清样品, 从数百个代谢组特征中高效识别出 17 种已知 PFAS 及 48 个潜在未知 PFAS 候选物 (图 2 C-D)。Mu 等^[54] 进一步将 CCS 变化约束直接嵌入同系物质谱峰筛选流程来降低假阳性, 提出 PFAS 鉴定置信度分级标准, 从而将假阳性率从 35% 骤降至 0.7%, 显著提升了 PFAS 非靶向筛查的准确性与鉴定置信度。尽管引入 CCS 维度有效提升了 MS 特征的结构专属度, 但 MS/MS 谱图的解析仍高度依赖人工解谱, 未实现高通量自动化。要突破这一局限, 关键在于利用机器学习建立 MS 碎片模式与分子结构之间的端到端映射关系。Wang 等^[55] 基于高分辨 MS 非靶向筛查技术, 构建集分子网络与机器学习于一体的 APPID 识别平台, 通过自主研发的 Flink 算法优化 MS/MS 谱图节点间的相似度计算逻辑, 降低假阳性关联, 并结合 SVM 模型实现未知 PFAS 结构精准预测。该方法成功在氟化工废水中识别出 733 种 PFAS 物质, 包含 39 种新型污染物, 大幅提升复杂环境中未知 PFAS 的鉴定效率与准确性。

HRMS 为 PFAS 非靶向筛查提供了高分辨率的 MS 数据, 但如何从海量质谱特征中高效识别目标物, 长期依赖人工经验与谱库匹配。近年来, 机器学习方法逐步嵌入 HRMS 数据处理的不同环节, 使 MS 数据的解析效率得到改善。在数据预处理阶段, 部分研究利用分类器对 MS 特征进行自动化筛选与优先级排序。例如 PFAScreen 等工具可通过 MD/C-m/C 质量亏损分析、Kendrick 质量缺陷及诊断碎片匹配等多种策略进行 PFAS 特征优先筛选, 将后续需人工审查的候选特征数量从数万级压缩至百级, 减少人工筛选的工作量^[56]。在多维参数融合方面, 上述 Foster 等^[53] 的 CCS 预测方法也表明, 通过引入离子迁移谱提供的碰撞截面作为 MS 数据的一个正交参数, 机器学习可在缺乏标准品时辅助结构鉴定。在结构推理层面, 深度学习模型被用于建立 MS/MS 谱图与化学结构之间的端到端关联。DeePFAS 采用融合卷积神经网络与 Transformer 架构的光谱编码器, 将原始 MS/MS 谱图映射至化学结构特征的隐空间, 实现 PFASMS 谱图的高通量自动注释^[57]。整体来看, 机器学习在非靶向 MS 分析中的作用逐渐从辅助匹配、智能筛选向结构推理延伸, 推动 PFAS 筛查方法逐步从依赖标准品的靶向定性向数据驱动的非靶向分析的转变。

2.2 溯源

识别 PFAS 污染的来源是开展风险管控与责任认定的前提。不同来源的 PFAS 在 MS 全扫描谱图中呈现差异化的特征离子组合与丰度分布, 构成了可用于来源区分的 MS 指纹。然而, 实际环境中污染物经过迁移、转化及多源混合使 MS 指纹趋于复杂导致源解析极为困难。传统方法依赖少数目标物比值或 PCA, 难以捕捉 MS 数据中的丰富信息。将机器学习方法引入源解析, 能够有效整合高维化学指纹与前体转化信息, 提升溯源能力。近年来, 研究者从不同维度的 MS 数据出发, 逐步发展了从靶向定量到非靶向全谱、从 PFAS 专属指纹到非 PFAS 共污染物辅助判别、从静态组成指纹到前体氧化产物指纹的多层次溯源方法。Kibbey 等^[58] 以 8 种 PFAS 的 LC-MS/MS 靶向定量数据为质谱指纹, 在源分配中引入监督式机器学习, 利用 Extra Trees 和神经网络对水样进行 AFFF 与非 AFFF 的二分类, 验证了 PFAS 组分指纹可用于两类来源区分的可行性 ($\text{AUC} > 0.96$)。在此基础上, Joseph 等^[59] 将 MS 数据采集从靶向定量扩展至可疑筛查, 采用 LC-QTOF-HRMS 对 92 个样品进行数据非依赖性采集, 同时获取 50 种目标 PFAS 的定量数据和 2 266 种可疑 PFAS 的半定量数据, 结合 SVM、LR 和 RF 等算法对 6 类来源进行分类 (图 3 A), 仅靠 PFAS 自身指纹仅可成功区分其中 3 类, 与 PCA/HCA 聚类分析的结果一致。随后, Joseph 等^[60] 进一步整合正负离子模式高分辨 MS 非靶向分析, 提取 PFAS 及全谱化学特征 (农药、药物、等), 结合 SVC、LR、RF、XGB 等机器学习算法构建溯源模型, 证实了非 PFAS 共污染物是区分 AFFF 地下水、填埋渗滤液等 6 类 PFAS 污染源的关键特异性指纹, 可使各类源分类 AUC 普遍达 0.85~0.99, 显著突破仅依赖 PFAS 标志物的溯源局限 (图 3 B)。

表1 不同机器学习算法在MS检测PFAS的适用场景、优势及局限

Table 1 Scope of application, advantages and limitations of different machine learning algorithms in PFAS detection by MS method

Algorithm Categories	Algorithm	PFAS Applicable Scenarios	Advantages	Limitations	References
传统机器学习 - 降维	PCA	基质降噪、污染源指纹区分、数据预处理	运算速度快, 可解释性强, 最大程度保留数据整体变异信息	仅能捕捉线性关联, 对非线性质谱特征拟合效果较差	[29]
	t-SNE	高维 PFAS 浓度数据的非线性降维与聚类可视化	保留样本局部特征结构, 二维展示直观清晰	计算成本高, 会丢失数据全局分布信息	[32]
传统机器学习 - 特征选择	RFE	筛选质谱特征离子、定量回归前置处理	高效剔除干扰峰, 提升模型预测精度	小样本质谱数据集易出现过拟合	[48]
	皮尔逊相关系数	质谱特征间的冗余性筛查与多重共线性诊断; PFAS 降解中间体吸附能相关性分析	计算效率高, 可解释性强, 为后续建模剔除冗余变量	无法识别质谱特征间的非线性复杂关联	[34]
传统机器学习 - 聚类	K-means	PFAS 质谱定量数据的快速聚类分组	算法简单, 质谱矩阵聚类速度快	需预设簇数, 易受质谱噪声干扰, 不适用于非球形簇	[32]
	DBSCAN	PFAS 质谱定量数据的异常值检测与自动聚类	无需预设簇数, 可识别不规则形状特征簇	对密度参数敏感, 原始高维质谱数据直接使用效果不佳	
	GMM	质谱特征软聚类分析	输出软聚类结果, 可量化各特征归属不同簇的概率	对初始参数敏感, 高维质谱数据下易陷入局部最优	
	HC	PFAS 质谱定量数据的多尺度聚类与层级关系分析	构建树状图, 提供从细粒度到粗粒度的多层次聚类结果	计算复杂度高, 大规模质谱数据集下效率低	
传统机器学习 - 分类	RF	污染源分类、高污染地下水样本筛查	抗噪声能力强, 可输出特征重要度, 过拟合风险低	对同分异构体细微谱图差异的分辨能力弱于深度学习	[59]
	XGBoost	PFAS 吸附去除效率预测、多因素耦合回归建模	可捕捉多特征高阶交互, 预测精度高	超参数调参复杂, 对质谱预处理质量要求高	[47]
	SVM	小批量标准品分类、未知物质初判	标注样本有限时模型表现优异	海量质谱数据集训练速度慢	[59]
	LR	PFAS 暴露基线分类、二分类基线模型	计算效率高, 可直接输出分类后验概率, 可解释性强	难以捕捉质谱特征间的非线性复杂关系	[39]
	BN	PFAS 超标风险预测、污染空间可视化	可概率推理, 影响因子解释性好	对多离子耦合质谱特征的拟合能力有限	[36]
回归分析	SVR	CCS 预测、小样本定量	核函数处理非线性, 小样本稳健	大数据集训练慢	[48]
	随机森林回归	浓度空间预测、响应因子预测	集成平均抗过拟合	外推能力有限	
	XGBoost 回归	电离效率预测、复杂基质定量	精度高、速度快、防过拟合	调参复杂, 对预处理要求高	
深度学习	1D-CNN	端到端自动识别未知 PFAS、提取峰形特征	自主学习质谱峰高、峰宽等局部特征	需要大量标注二级质谱 (MS/MS) 样本	[49]
	GAT	基于分子结构预测新型 PFAS 的 PBT (持久性/生物富集/毒性) 属性	无需标准品, 结合分子结构实现高风险污染物筛查	依赖完整准确的分子结构信息输入	[50]

此外, 基于无监督机器学习与化学指纹增强也被应用到污染物的溯源。Antell 等^[61]采用 PCA 对传统 PFAS 数据与 TOP 实验产生的 Δ PFCA 衍生指纹谱数据进行联合分析, 探索 AFFF、市政污水厂和垃圾填埋场三类来源的区分能力。结果显示, 仅使用传统 PFAS 数据时, 三类来源的置信椭圆严重重叠 (图 3 C); 加入 Δ PFCA 后, 垃圾填埋场来源完全分离, AFFF 与污水厂的重叠率从仅使用传统 PFAS 数据的 76% 下降至 9%, 表明 TOP 氧化前体 MS 衍生指纹是传统靶向 MS 数据的有效信息补充。

MS 数据与机器学习的结合为 PFAS 源解析提供了系统化的技术路径。MS 数据是溯源分析的基础, 机器学习算法从复杂的 MS 背景中自动筛选诊断性离子组合, 通过监督与无监督学习的互补策略将溯源问题转化为数据驱动的分类判别。两者结合使 PFAS 源解析从依赖少数特征比值的经验判别提升为基于全谱指纹的模式识别, 为复杂环境体系中 PFAS 来源的快速判别提供了方法支撑。

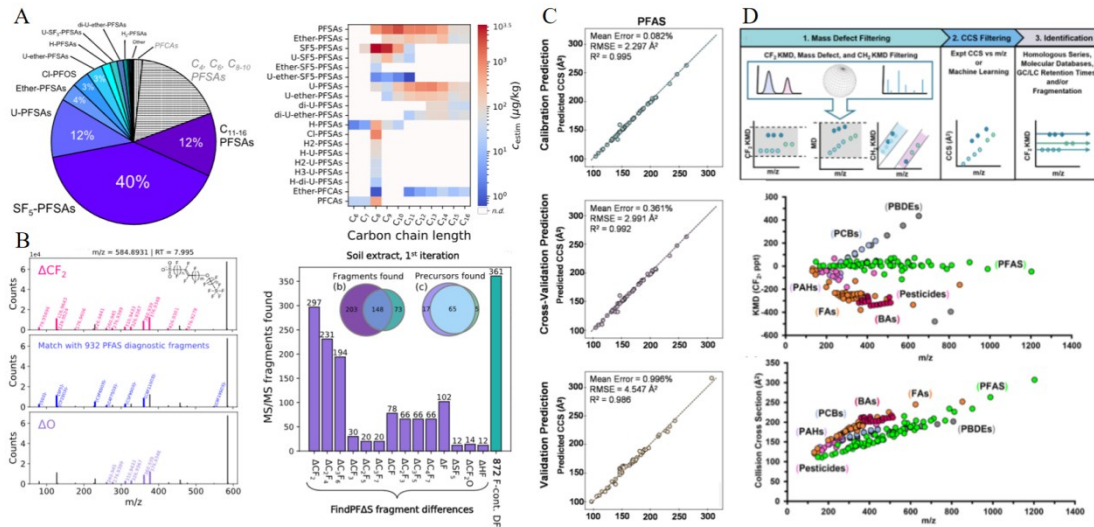


图 2 污染农田土壤中 PFAS 的非靶向 LC-HRMS 筛查结果 (A) [52], FindPFAS 特征碎片算法质谱识别分析结果 (B) [52], 基于 SVR 机器学习的 CCS 预测模型验证曲线 (C) [53], LC-IMS-HRMS 多维 PFAS 非靶向识别流程与污染物分群图谱 (D) [53]

Fig. 2 Non-targeted LC-HRMS screening results of PFAS in contaminated agricultural soils (A) [52]; MS identification and analysis results using the FindPFAS characteristic fragment algorithm (B) [52]; Validation curves of SVR machine learning-based CCS prediction model (C) [53]; Multi-dimensional non-targeted PFAS identification workflow and pollutant clustering profiles based on LC-IMS-HRMS (D) [53]

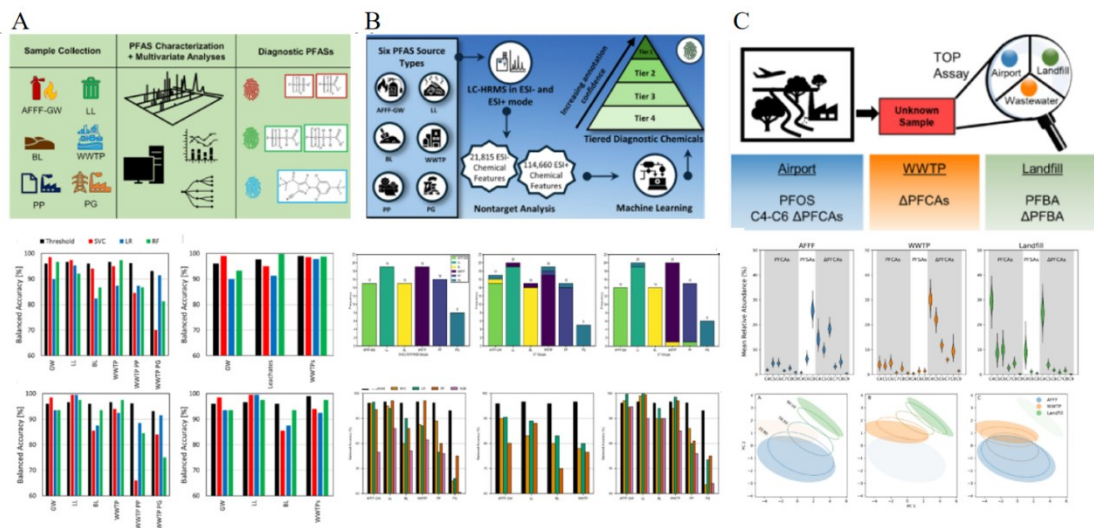


图 3 目标与可疑 PFAS 结合监督学习的污染源分类分析流程 (A) [59], 正负离子非靶向高分辨 MS 分层溯源 workflow (B) [60], 基于 TOP 氧化前体 Δ PFCA 指纹的无监督 PCA 溯源分析体系 (C) [61]

Fig. 3 Source classification workflow combining target and suspect PFAS with supervised learning (A) [59]; Tiered source tracing workflow via positive and negative ion nontarget high-resolution MS (B) [60]; Unsupervised PCA source tracing system based on Δ PFCA fingerprints derived from the TOP assay (C) [61]

2.3 复杂基质中的浓度预测

在复杂介质中, PFAS 的浓度预测面临多重挑战: 一方面, 土壤、地下水、生物组织等基质组成复杂, 污染物存在形态多样, 浓度动态变化受多因素 (如土壤有机质、pH 值、水文条件等) 影响, 难以通过简单线性模型描述; 另一方面, 数以千计的 PFAS 种类中仅有少数具有标准品, 大量新型 PFAS 及转化产物无法通过常规 MS 方法获得准确浓度, 严重制约了非靶向筛查中未知物的定量分析。

目前, 机器学习浓度预测与定量主要针对水体、植物、土壤等介质。地下水作为饮用水的重要水源, 其水质安全直接关系到人类的生命健康。George 等 [62] 利用 MS 检测数据的 PFAS 浓度为目标变量, 将随机森林与多元环境特征相结合 (共污染物指纹、水文地质参数、土壤性质等), 构建了基于多环境

特征的机器学习预测模型,用于预估未被检测井中的 PFAS 浓度,应用于加州地下水样品分析(图 4 A),该方法在 Spearman 相关系数 0.64 下实现浓度精准预测,高浓度 PFAS 井位识别准确率达 91% ($AUC=0.90$),可将高风险井检出效率提升约 5 倍。海洋也是 PFAS 富集的严重场所,孙沈正等^[48]基于机器学习构建了 PFAS 电离效率预测与半定量分析模型,将 RFE 与 XGBoost 机器学习相结合从分子结构预测电离效率,结合标准曲线校正与峰面积换算完成对实际鱼肉样品的分析,9 种 PFAS 的半定量预测误差为 0.79~1.81 倍,实现了无标准品 PFAS 的精准浓度预测。Lauria 等^[63]将 XGBoost 算法与 HRMS 非靶向/可疑筛查相结合,建立了基于电离效率预测的 PFAS 无标准品定量方法(图 4 B),通过预测的电离效率将质谱峰面积直接换算为浓度,使海洋哺乳动物肝脏中高达 70% 的未知有机氟占比大幅降低,为复杂生物基质中 MS 数据的无标定量提供了可行路径。此外,植物作为食物链的起点,其吸收和积累 PFAS 的能力直接影响农产品的安全性与人体暴露风险。Song 等^[64]利用分子指纹图谱与 XGBoost 模型预测了 22 种 PFAS 在根、茎、叶、果实中的生物富集因子(BAF),测试集决定系数达 0.82~0.93。然而,植物吸收研究多在水培条件下进行,其结果难以直接迁移至土壤体系。为此,钱一凡等^[65]采用 XGBoost 机器学习模型结合迁移学习构建了从水培体系到土培体系的植物根系 PFAS 吸收预测模型(图 4 C),将土壤中根系富集因子(RCF)预测的测试集 R^2 从 0.83 提升至 0.86,实现了简单体系知识向复杂体系的跨场景迁移。为 MS 定量数据在农产品安全风险中的深度应用提供了模型支撑。

机器学习为应对复杂基质中 PFAS 浓度预测的两类核心质谱难题提供了有效的解决办法。对于水体介质,机器学习侧重于空间维度的拓展,利用 RF 算法将有限监测点的 MS 浓度数据与环境变量相结合,实现未采样区域浓度预测的外推;对于生物组织介质,机器学习侧重于 MS 响应信号的校正,以 XGBoost 驱动的电离效率预测绕过标准品匮乏的定量瓶颈;对于跨介质场景的污染物迁移,机器学习则侧重于跨场景下的模型泛化,借助 XGBoost 与迁移学习策略,使水培条件下建立的预测关系能够适应更复杂的土培环境。三类基质虽然数据基础与建模策略不同,但都是在 MS 数据稀疏或标准品缺失的条件下,通过算法补偿使浓度预测仍能达到可接受的精度,使 PFAS 质谱定量分析从依赖经验参数的单介质回归拓展为融合环境特征、结构信息与质谱响应特征的多介质定量建模体系,为复杂基质中 PFAS 的暴露评估提供了多维度定量支撑。

2.4 风险评估

MS 检测所获得的环境与生物样本中 PFAS 的定性结果与定量浓度数据,是暴露评估与风险判别的核心输入参数。然而,水体、土壤、血液等复杂基质中痕量污染物的 MS 分析面临监测点空间覆盖不足、分析周期长、成本高昂等现实约束,有限监测数据难以支撑全域风险评估。在此背景下,机器学习与 MS 技术的结合,可利用有限检测数据实现对 PFAS 暴露风险预测和毒性属性筛查两方面的风险评估。

饮用水作为主要暴露途径之一,其水质检测是间接评估人群外暴露风险的重要起点,Hu 等^[66]以地表水 PFAS 风险优先级排序为目标,采用 Orbitrap 高分辨 MS 构建了靶向、可疑、非靶向筛查技术(图 5 A),以 50 种 PFAS 标准品在 MS 上的响应因子和峰面积为训练基础,利用随机森林回归模型学习分子结构与 MS 响应之间的定量映射关系,从而预测非靶向筛查中缺乏标准品的 PFAS 响应因子,实现基于 MS 峰面积的半定量,从而将新型和未知 PFAS 纳入风险量化体系,并对北京朝白河水样进行风险评估分析,共鉴定 33 种 PFAS 并基于综合风险指数(RI)筛选出 4 种高风险优先管控物质。Li 等^[42]将质谱检测获得的长期地下水 PFAS 浓度数据作为训练标签,将其与水文地质等多源环境变量相结合,采用 BN 建立短链 PFAS 浓度超标的预测模型,输出高精度 ($AUC > 0.96$) 空间风险概率地图,实现对短链 PFAS 的高效空间风险筛查,减少大范围检测带来的工作量与成本。Roostaei 等^[67]将私人井水污染监测数据与大气沉降、污染源位置、气象等多源空间信息相结合,采用 BN 构建预测模型评估私人井水中 GenX 污染物的超标风险,模型有效识别关键影响因子,并生成区域污染风险空间分布图,为饮用水污染风险快速评估与精准防控提供了可靠的技术手段,同时为有限 MS 监测点的风险空间判别提供了可视化决策工具。

水质监测结合机器学习为外暴露评估提供了有效手段,但环境浓度无法直接反映经吸收后在体内形成的有效暴露剂量。将机器学习框架从环境监测数据迁移至生物样本检测数据分析,以血清/血浆中

PFAS 定量浓度作为输入特征,同样可以借助神经网络、随机森林等算法建立健康风险预测模型,实现从外暴露概率评估到内暴露效应评估的递进。Zheng 等^[68] 基于 NHANES 2015~2020 年 1 953 例人群数据,采用 CDC 标准化在线固相萃取-液相色谱串联质谱法测得的血清 PFAS (总 PFOS、PFHxS、PFOA 等) 浓度及人群临床指标构建特征集,结合神经网络、随机森林等机器学习算法与 SHAP 可解释性分析,通过多阶段回归、限制性立方样条及五折交叉验证优化模型,建立了 PFAS 暴露与心肾代谢综合征 (CKM) 的风险预测方法。研究发现总 PFOS 暴露是 CKM 独立危险因素且呈线性正相关,核心预测特征为 PFOS、血浆致动脉粥样硬化指数 (AIP) 和生物放大指数 (BRI),可精准实现 PFAS 相关 CKM 的发病风险预判与早期识别,表明机器学习方法同样适用于生物样本检测数据的建模分析,为 PFAS 内暴露评估提供了高效的技术工具。

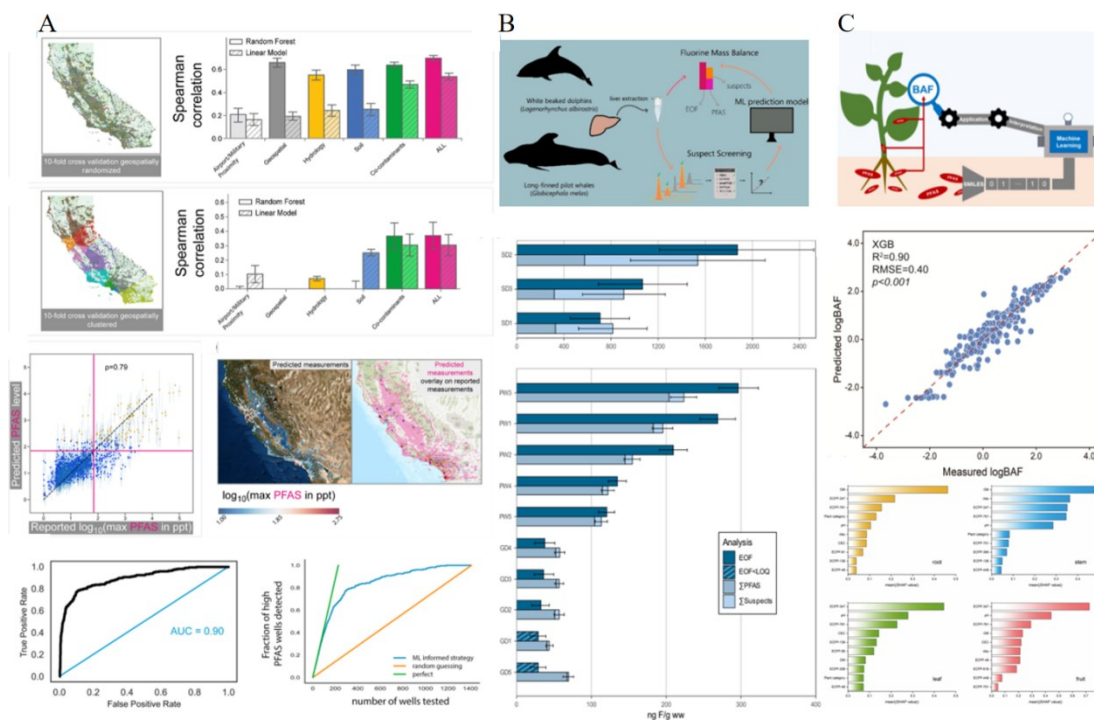


图4 基于随机森林与线性模型的地下水PFAS空间分布预测体系 (A)^[62] ; 结合氟质量平衡与机器学习模型的海洋哺乳动物体内未知PFAS半定量分析流程 (B)^[63] ; 集成分子指纹与土壤环境参数的植物PFAS生物富集因子 (BAF) 机器学习预测模型 (C)^[64]

Fig. 4 Random forest and linear model framework for groundwater PFAS spatial prediction (A)^[62] ; Fluorine mass balance coupled with machine learning for semi-quantification of unknown PFAS in marine mammals (B)^[63] ; Machine learning model predicting plant PFAS bioconcentration factor (BAF) with molecular fingerprints and soil parameters (C)^[64] .

为避免 PFAS 暴露所带来的健康风险,风险评估的最终目标还应转向对新型 PFAS 的主动管控。Han 等^[50] 结合 GAT、多种机器学习模型与非靶向筛查数据,构建了持久性 (Persistence)、生物富集 (Bioaccumulation)、毒性 (Toxicity) -即 PBT 污染物智能识别体系 (图 5 B),结果表明该方法识别准确率高,泛化性强,可处理复杂分子结构,在无需标准品的条件下共筛选得到 282 种符合 PBT 特征的高风险新型 PFAS 同系物,其中 140 种可同时在工业产品、环境及生物样本中检出,为非靶向筛查发现的新型 PFAS 提供了毒性预警能力,实现了对高风险 PBT 类新污染物的主动管控。

机器学习与高分辨 MS 的结合,使非靶向筛查数据在暴露评估和风险排序中的利用效率有所提高,为 PFAS 主动管控提供了技术手段,也为替代品监管和饮用水、食品安全评估提供了数据参考。此外,非靶向 MS 筛查所获取的结构特征信息,也可为 PFAS 替代品开发提供输入。例如,将筛查中识别的高风险结构特征与官能团信息纳入生成式机器学习模型,可辅助低风险替代分子的结构设计^[69], Wang 等^[70] 基于图注意力网络与帕累托最优理论构建的 ParetoGen 框架,使生成分子在多项功能与风险指标上均优于现有 PFAS 替代品,这一思路将 MS 数据的应用从环境监测拓展至分子设计层面,使 PFAS 管控在末端监测之外存在源头替代的潜在路径。

- [3] Cai Y P, Wang Q Y, Zhou B H, Yuan R F, Wang F, Chen Z B, Chen H L. *Sci. Total Environ.*, **2021**, 793: 148565.
- [4] Shirke A V, Radke E G, Jones R, Allen B D, Lin C J, Ross A, Tandon S, Varshavsky J, Zlatnik M G, Carlson L M. *Environ. Health Perspect.*, **2026**, 134: 252–273.
- [5] Buck R C, Franklin J, Berger U, Conder J M, Cousins I T, de Voogt P, Jensen A A, Kannan K, Mabury S A, van Leeuwen S P J. *Integr. Environ. Assess. Manage.*, **2011**, 7 (4): 513–541.
- [6] Secundo L, Metrangolo P, Dichiarante V. *Chemistry – An Asian Journal*, **2025**, 20 (9): e202500127.
- [7] Kharel M, Tian M Q, Vu T, Miao Y, Zhang W L. *J. Hazard. Mater.*, **2025**, 497: 139754.
- [8] Kali S E, Österlund H, Viklander M, Blecken G T. *Water Res.*, **2025**, 271: 122973.
- [9] Agency for Toxic Substances and Disease Registry. Toxicological Profile for Perfluoroalkyls [R]. Atlanta: ATSDR, **2021**. <https://www.atsdr.cdc.gov/toxprofiles/tp200-p.pdf>.
- [10] Wu S, Xie J, Zhao X, Zhao H, Sánchez O F, Yu S, Rochet J C, Freeman J L, Yuan C. *Environ. Sci. Technol.*, **2026**, 60 (13): 9857–9871.
- [11] Eriksson U, Kärrman A. *Environ. Sci. Technol.*, **2015**, 49 (24): 14503–14511.
- [12] Stockholm Convention Secretariat. Stockholm Convention on Persistent Organic Pollutants [EB/OL]. (2001–05–22). [2026–03–20]. <https://chm.pops.int/Convention/ConferenceoftheParties/COP/COPDecisions/tabid/208/Default.aspx>.
- [13] European Chemicals Agency. Candidate List of Substances of Very High Concern (SVHC) for Authorisation [EB/OL]. [2026–03–20]. <https://echa.europa.eu/candidate-list-table>.
- [14] U.S. Environmental Protection Agency. PFAS Strategic Roadmap: EPA's Commitments to Action 2021 – 2024 [EB/OL]. (2021–10–18). [2026–03–20]. <https://www.epa.gov/pfas/pfas-strategic-roadmap-epas-commitments-action-2021-2024>.
- [15] Peng Z F, Zhang Y H, Dong Y D, Zhao W D, Mao J, Zhang Q D, Ouyang G F, Zhang S S, Xie J P. *Chem. Eng. J.*, **2025**, 507: 160596.
- [16] Hu J H, Huang Y, Qie M J, Li X T, Shi Y L, Cai Y Q. *J. Instrum. Anal.* (胡嘉豪, 黄颖, 郗梦洁, 李孝通, 史亚利, 蔡亚岐. 分析测试学报), **45** (null), 1–10.
- [17] Gong J, Zhang X Y, Liang R Y, Ma J Q, Yang N, Cai K W, Wu J Y, Xie Z Y, Zhang S S, Chen Y L, Liao Q F. *Food Chem.*, **2024**, 447: 139016.
- [18] Guo W L, Zhang Y H, Wang Y W, Zhu L, Cai Z W. *Anal. Chem.*, **2025**, 97 (27): 14838–14846.
- [19] Wang Z J, Luo X, Liang S K, Tang Z X, Ye X W, Ma Q, Niu Z Y. *J. Instrum. Anal.* (王振聚, 罗析, 梁生康, 汤志旭, 叶曦雯, 马强, 牛增元. 分析测试学报), **41.6** (2022): 931–940.
- [20] Sun Y, Wu B L, Dong H C, Zhu J X, Ren N Q, Ma J, You S J. *Water Res.*, **2025**, 274: 123039.
- [21] Srivastava S, Srivastava R K. *ACS Sustain. Resour. Manag.*, **2026**, 3: 1301–1323.
- [22] Janiesch C, Zschech P, Heinrich K. *Electron. Markets*, **2021**, 31 (3): 685–695.
- [23] Fernandez N, Nejadhashemi A P, Loveall C. *Water Res.*, **2023**, 243: 120307.
- [24] Xiao J F, Sun Y C, Lu J J, Cao L, Yan Y J, Li W J. *Atmos. Pollut. Res.*, **2026**, 17 (5): 102897.
- [25] LeCun Y, Bengio Y, Hinton G. *Nature*, **2015**, 521 (7553): 436–444.
- [26] Breitmeyer S E, Williams A M, Conlon M D, Wertz T A, Heflin B C, Shull D R, Duris J W. *Toxics*, **2024**, 12 (12): 921.
- [27] Gunerkar R S, Jalan A K, Belgamwar S U. *J. Mech. Sci. Technol.*, **2019**, 33 (2): 505–511.
- [28] Ramírez-Arroyo A, García L, Alex-Amor A, Valenzuela-Valdés J F. *IEEE Open J. Commun. Soc.*, **2022**, 3: 475–492.
- [29] Greenacre M, Groenen P J F, Hastie T, D'Enza A I, Markos A, Tuzhilina E. *Nat. Rev. Methods Primers*, **2022**, 2 (1): 100.
- [30] Shen X R, Zhao M Z, Gao W. *Regional Studies in Marine Science*, **2026**, 95: 104843.
- [31] Van der Maaten L, Hinton G. *J. Mach. Learn. Res.*, **2008**, 9: 2579–2605.
- [32] Sani A, Abdullahi I L, Salisu A, Tukur H M, Maigari A K. *Food Res. Int.*, **2025**, 211: 116463.
- [33] Bonetti P, Metelli A M, Restelli M. *Data Min. Knowl. Discov.*, **2026**, 40: 59.
- [34] Ye C J, An J F, Wang H L, He Q Y, Gao Z M, Cao Y Y, Zhu Q Z, Wang Z J, Chen L, Liu J, Chen X L, Zhu J Z. *J. Environ. Chem. Eng.*, **2025**, 118842.
- [35] Jeon H, Oh S. *Appl. Sci.*, **2020**, 10 (9): 3211.
- [36] Yang P, Zhang Z, Zhou B B, Zomaya A Y. *Neurocomputing*, **2010**, 73 (13/15): 2317–2331.
- [37] Chowdhury K, Chaudhuri D, Pal A K, Samal A. *Multimedia Tools Appl.*, **2019**, 78 (13): 18617–18651.
- [38] Zidi S, Moulahi T, Alaya B. *IEEE Sens. J.*, **2018**, 18 (1): 340–347.
- [39] Balboa A, Cuesta A, González-Villa J, Ortiz G, Alvear D. *Saf. Sci.*, **2024**, 174: 106485.
- [40] Kim H D, Hong I, Kim H C. *Int. J. Hyg. Environ. Health*, **2025**, 270: 114674.
- [41] Atienza D, Bielza C, Larrañaga P. *Inf. Sci.*, **2022**, 584: 564–582.
- [42] Li R, MacDonald Gibson J. *Front. Environ. Sci.*, **2022**, 10: 958784.
- [43] Sahin E K, Colkesen I, Kavzoglu T. *Geocarto Int.*, **2020**, 35 (4): 341–363.

- [44] Scornet E. *IEEE Trans. Inf. Theory*, **2016**, 62 (3): 1485–1500.
- [45] Goetz M, Weber C, Bloecher J, Stieltjes B, Meinzer H P, Maier-Hein K. *Proceeding of BRATS Challenge-MICCAI*, **2014**, 14 (6/11): 24.
- [46] Chen T, Guestrin C. *Proceedings of the 22nd ACM SIGKDD International Conference on Knowledge Discovery and Data Mining*, 2016: 785–794.
- [47] Karbassiyazdi E, Fattahi F, Yousefi N, Tahmassebi A, Taromi A A, Manzari J Z, Gandomi A H, Altaee A, Razmjou A. *Environ. Res.*, **2022**, 215114286.
- [48] Sun S Z, Li Y Y, Gao Y, Li K C, Chen Z, Li X Q, Zhang Q H. *Chin. J. Chromatogr.* (孙沈正, 李瑶瑶, 高燕, 李康聪, 陈智, 李秀琴, 张庆合. 色谱), **2026**, 44 (4): 444–452.
- [49] Kibbey T C G, Jabrzemski R, O' Carroll D M. *Chemosphere*, **2021**, 275: 130124.
- [50] Han B C, Liu J S, Bizimana A, Zhang B X, Kateryna S, Zhao Z, Yu L P, Shen Z Z, Meng X Z. *Environ. Pollut.*, **2023**, 338: 122663.
- [51] Getzinger G J, Higgins C P, Ferguson P L. *Anal. Chem.*, **2021**, 93 (5): 2820–2827.
- [52] Zweigle J, Bugsel B, Röhler K, Haluska A A, Zwiener C. *Environ. Sci. Technol.*, **2023**, 57 (16): 6647–6655.
- [53] Foster M, Rainey M, Watson C, Dodds J N, Kirkwood K I, Fernández F M, Baker E S. *Environ. Sci. Technol.*, **2022**, 56 (12): 9133–9143.
- [54] Mu H X, Yang Z C, Chen L, Gu C, Ren H Q, Wu B. *J. Hazard. Mater.*, **2024**, 461: 132669.
- [55] Wang X B, Yu N Y, Jiao Z Y, Li L H, Yu H X, Wei S. *Sci. Adv.*, **2024**, 10 (21): eadn1039.
- [56] Wang H, Kuo T C, Tseng Y J. *Environ. Sci. Technol.*, **2025**, 59: 24841–24852.
- [57] Zweigle J, Bugsel B, Fabregat-Palau J, Zwiener C. *Anal. Bioanal. Chem.*, **2024**, 416: 349–362.
- [58] Kibbey T C G, Jabrzemski R, O' Carroll D M. *Chemosphere*, **2020**, 252: 126593.
- [59] Joseph N T, Schwichtenberg T, Cao D, Jones G D, Rodowa A E, Barlaz M A, Charbonnet J A, Higgins C P, Field J A, Helbling D E. *Environ. Sci. Technol.*, **2023**, 57 (38): 14351–14362.
- [60] Joseph N T, Droz B, Schwichtenberg T, Oetjen K, Sühnholz S, Jones G D, Field J A, Higgins C P, Helbling D E. *Environ. Sci. Technol.*, **2025**, 59 (42): 22852–22865.
- [61] Antell E H, Yi S, Olivares C I, Ruyle B J, Kim J T, Tsou K, Dixit F, Alvarez-Cohen L, Sedlak D L. *ACS ES&T Water*, **2023**, 4 (3): 948–957.
- [62] George S, Dixit A. *J. Environ. Manage.*, **2021**, 295: 113359.
- [63] Lauria M Z, Sepman H, Ledbetter T, Plassmann M, Roos A M, Simon M, Benskin J P, Krueve A. *Environ. Sci. Technol.*, **2024**, 58 (5): 2458–2467.
- [64] Song C Z, Gu Q, Zhang D K, Zhou D M, Cui X Y. *Sci. Total Environ.*, **2024**, 950: 175091.
- [65] Qian Y F, Pei C H, Lü C, Wu T L, Liu C, Wang Y J. *J. Agro-Environ. Sci.* (钱一凡, 裴晨浩, 吕陈, 吴同亮, 刘存, 王玉军. 农业环境科学学报), **2024**, 43 (11): 2516–2524.
- [66] Hu J R, Lyu Y T, Chen H, Cai L L, Li J, Cao X Q, Sun W L. *Water Res.*, **2023**, 233: 119735.
- [67] Roostaei J, Colley S, Mulhern R, May A A, Gibson J M. *J. Hazard. Mater.*, **2021**, 411: 125075.
- [68] Zheng Z D, Xu Y Y, Kang N, Dong Y W, Wang X, Zhang L, Bian H Y, Zeng Q B. *Sci. Total Environ.*, **2025**, 993: 180003.
- [69] Yang Y, Yang Z G, Pang X D, Cao H M, Sun Y Z, Wang L, Zhou Z, Wang P, Liang Y, Wang Y W. *Sci. Total Environ.*, **2024**, 953: 176095.
- [70] Wang H B, Liu W J, Chen J W, Ji S S, Bi G J. *Environ. Sci. Technol.*, **2026**, 60 (9): 7171–7182.

(责任编辑: 龙秀芬)