

黄河口附近海域表层沉积物重金属污染 状况及年际变化分析*

胡 琴^{1①} 李 强¹ 黄必桂¹ 曲 亮² 曹 静¹

(1. 中海油研究总院 北京 100028; 2. 国家海洋局北海环境监测中心 青岛 266033)

摘要 根据 2006–2014 年共 5 个航次在黄河口附近海域采集的 150 个调查站位的表层沉积物样品的监测结果, 对沉积物中 Hg、Cu、Pb、Cd、Cr、Zn 和 As 共 7 种重金属元素的含量及年际变化趋势进行了分析, 采用单因子标准指数法和潜在生态风险指数法对重金属污染状况和潜在生态风险程度进行了评价。结果显示, 7 种重金属的含量除 2011 年少数调查站位的 Cu 和 Pb 超过第一类标准外, 其他调查站位的重金属含量均符合海洋沉积物质量第一类标准。重金属 Hg 和 Cd 的含量相当, 其含量明显低于其他 5 种重金属元素。7 种重金属含量的年际变化有所不同, 年平均单因子标准指数均小于 1, 表明调查海域表层沉积物质量状况良好。7 种重金属元素的年平均单因子标准指数排序为 Cu>Cr>As>Pb>Cd>Hg>Zn; 其中, Cu 的标准指数值较高, 近 10 年来其标准指数均值达 0.61, 应引起重视并加强例行监测; 其他 6 种重金属元素的单因子标准指数均值均小于 0.4。潜在生态风险评价结果显示, 各航次 7 种重金属的平均潜在生态风险系数 E_r^i 均小于 40, 属于低生态风险水平; 7 种重金属近 10 年平均 E_r^i 排序为 Hg>Cd>As>Pb>Cu>Cr>Zn; 其中, Hg 是该调查海域的主要潜在生态风险因子。综合潜在生态风险指数 RI 的年际变化范围为 32.18–53.12, 属于低生态风险水平; RI 的年际变化趋势基本表现为先升高后降低、然后略微上升的趋势。

关键词 黄河口; 表层沉积物; 重金属; 污染; 年际变化

中图分类号 X824 **文献标识码** A **文章编号** 2095-9869(2017)02-0016-08

重金属是近海环境中最主要的污染物之一, 已成为国内外海洋环境科学研究的主要热点之一(周笑白等, 2015; 刘宏伟等, 2015; 密蓓蓓等, 2013; 张勇等, 2012; Nobi *et al*, 2010)。重金属污染物具有来源广、残毒时间长、易二次污染、可沿食物链转移等特性, 对水生生物和人体健康产生很大的危害。进入海洋的重金属绝大部分富集在海底沉积物中, 因此, 沉积物被认为是海洋环境中重金属最终的蓄积地, 而河口和近海为重金属污染物的主要宿地(郑懿珉等, 2015)。

黄河口位于渤海湾与莱州湾交汇处, 其附近海域是黄、渤海多种经济鱼虾类的主要产卵场、孵幼场和

索饵场(夏斌等, 2009)。黄河每年携带大量的颗粒物、重金属、营养盐和有机物质等入海, 一方面为黄河口附近海域创造了适宜于海洋生物生长的良好生态环境, 但另一方面, 重金属和其他污染物也极大威胁着黄河口附近海域渔业资源发展和生态环境安全。根据国家海洋局公布的 2014 年中国海洋环境状况公报, 2014 年黄河携带入海的重金属就多达 386 t。因此, 开展本海域沉积物中重金属的污染状况等研究已成为目前海洋环境科学领域的重要任务之一。

近年来, 对黄河口重金属研究大都局限在黄河口滨海湿地、潮间带、河口段以及莱州湾等海域(刘志杰

* 中海石油(中国)有限公司科技项目(YXKY-2016-ZY-07)资助 [This work was supported by Science and Technology Project of China National Offshore Oil Corporation (YXKY-2016-ZY-07)].

① 通讯作者: 胡 琴, 工程师, E-mail: huqin7321@163.com

收稿日期: 2016-02-22, 收修改稿日期: 2016-04-01

等, 2012; 刘淑民等, 2012; 吴斌等, 2013; 罗先香等, 2010、2011), 对黄河口附近海域重金属的研究较少, 且对其年际变化等的研究鲜有报道。为此, 本研究根据 2006–2014 年 5 个航次共计 150 个调查站位的重金属监测数据, 对黄河口附近海域近 10 年来表层沉积物重金属的污染状况及年际变化趋势进行分析评价, 为及时掌握黄河口附近海域的生态环境质量, 更好地保护黄河口附近海域生态环境提供科学依据。

1 材料与方 法

1.1 调查站位与时间

本研究在黄河口附近海域分别于 2006 年 10 月、2009 年 12 月、2011 年 9 月、2013 年 9 月和 2014 年 10 月共计 5 个航次采集了 150 个调查站位的表层沉积物样品, 其中, 5 个航次沉积物调查站位数分别为 12、36、33、35 和 34 个。5 个航次调查站位覆盖范围在 37°27′–38°28′N、119°0′–120°7′E 之间; 调查海域水深在 1–26 m 之间。调查站位布设见图 1。

1.2 调查项目与分析方法

调查项目包括总汞(Hg)、铜(Cu)、铅(Pb)、镉(Cd)、铬(Cr)、锌(Zn)和砷(As)等。

本研究各航次均采用曙光型采泥器采集沉积物

表层样, 样品的采集、贮存、预处理和分析方法等均按照《海洋监测规范》(GB17378-2007)中所规定的要求执行; 5 个航次所有样品的调查采样和监测分析均出自同一实验室。供测定重金属 Cu、Pb、Cr、Zn、Cr 和 As 的沉积物湿样转到洗净并编号的瓷蒸发皿中, 置于 80–100℃烘箱内烘干, 研磨、过筛后待分析; 供测定重金属 Hg 的沉积物取湿样待分析。其中, Pb、Cu、Cd 和 Cr 用无火焰原子吸收分光光度法测定, 其检出限分别为 1×10^{-6} 、 0.5×10^{-6} 、 0.04×10^{-6} 和 2×10^{-6} ; Zn 用火焰原子吸收分光光度法测定, 其检出限为 6×10^{-6} ; As 和 Hg 用原子荧光法测定, 其检出限分别为 0.06×10^{-6} 和 0.002×10^{-6} 。

1.3 评价方法与评价等级

目前, 国内外关于沉积物重金属评价方法主要有单因子标准指数法、综合指数法、修正综合指数法、地累积指数法、污染负荷指数法、回归过量分析法、潜在生态风险指数法和底栖生物评价方法等(胡益峰等, 2012)。本研究首先采用单因子标准指数评价法对调查海域重金属的含量状况进行分析评价, 然后采用国内外沉积物质量评价中应用最为广泛的潜在生态风险指数法对调查海域重金属的潜在污染状况进行分析评价。

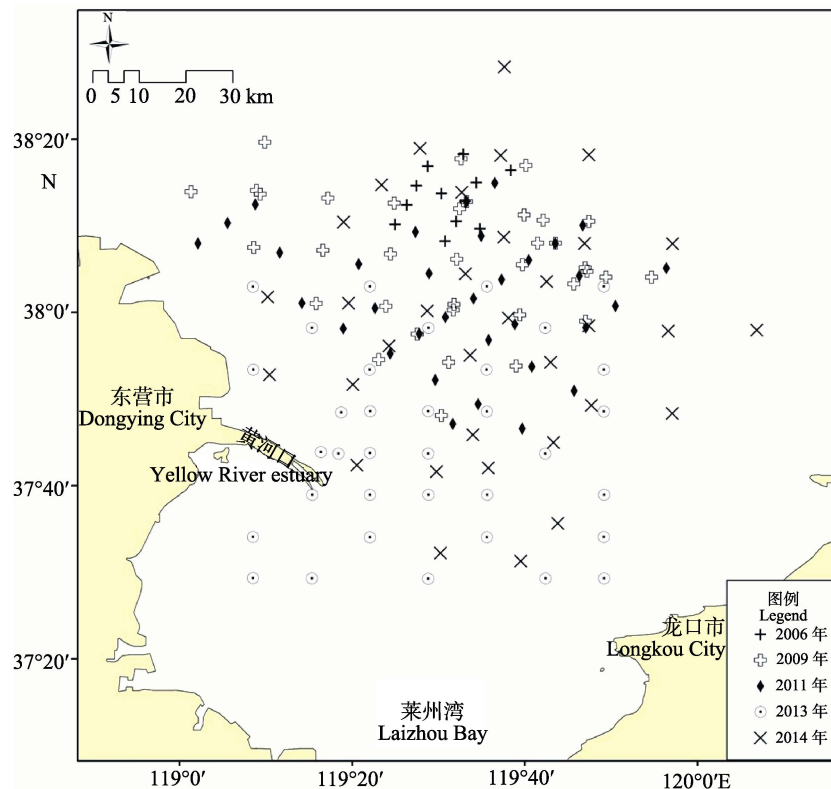


图 1 5 个航次调查站位分布

Fig.1 Distribution of survey stations in five cruises

1.3.1 重金属含量单因子标准指数评价 根据《海洋沉积物质量》(GB18668-2002)中第一类标准值,调查海域表层沉积物重金属的质量状况采用单因子标准指数法进行评价,其计算公式为:

$$I_i = C_i / S_i$$

式中, I_i 为第 i 种重金属的标准指数, C_i 为第 i 种重金属的实测值, S_i 为第 i 种重金属的第一类标准值。当 $I_i \leq 1$ 时,符合标准;当 $I_i > 1$ 时,含量超标。其中,海洋沉积物质量第一类标准值: $Hg \leq 0.20 \times 10^{-6}$, $Cu \leq 35.0 \times 10^{-6}$, $Pb \leq 60.0 \times 10^{-6}$, $Cd \leq 0.50 \times 10^{-6}$, $Zn \leq 150.0 \times 10^{-6}$, $Cr \leq 80.0 \times 10^{-6}$, $As \leq 20.0 \times 10^{-6}$ 。

1.3.2 重金属的潜在生态风险指数评价 Hakanson (1980)提出的重金属潜在生态风险指数评价法是一套应用沉积学原理评价重金属污染及生态危害的方法,是国内外沉积物质量评价中应用最为广泛的方法之一(柴小平等, 2015; 陈燕等, 2014; 刘明等, 2012; 刘宏伟等, 2015)。该方法通过分析沉积物中不同重金属污染物的释放能力和生物毒性强度,将沉积物中污染物的含量折算为生物毒性风险。当多种重金属共存时,采取加和的方式来衡量重金属的生物毒性。

定义单个重金属潜在生态风险系数为:

$$E_r^i = T_r^i \times C_f^i = T_r^i \times C^i / C_n^i$$

式中, E_r^i 为重金属 i 潜在生态风险系数; T_r^i 为重金属 i 的毒性响应系数,用于反映重金属 i 的毒性水平和生物对污染物的敏感程度; C_f^i 为重金属 i 的污染系数; C^i 为重金属 i 的实测浓度; C_n^i 为重金属 i 的背景参考值。在计算 Hakanson 潜在生态风险指数时,一般以全球工业化以前沉积物中重金属含量为背景值,但受地质条件、水文状况、生物活动等多种因素的影响,重金属背景值往往具有很强的区域性,如在评价时仍以前者作为参照,往往会使判断结果出现较大的偏差(乔永民等, 2010)。因此,本研究采用中国海岸带和海涂资源综合调查专业报告集(全国海岸带办公室环境质量调查报告编写组, 1989)和山东省海岸带和海涂资源综合调查报告黄河口区(山东省科学技术委员会, 1990)的背景值为参考值(表 1); E_r^i 的等级划分见表 2。

表 1 沉积物中重金属的毒性系数和背景参考值

Tab.1 Toxicity coefficients and background values of heavy metals in the sediments

项目 Items	Hg	Cu	Pb	Cd	Cr	Zn	As
T_r^i	40	5	5	30	2	1	10
$C_n^i (\times 10^{-6})$	0.125	30	21.5	0.5	54.7	80	15

定义多种重金属总的潜在生态风险指数为:

$$RI = \sum_{i=1}^7 E_r^i$$

式中, RI 为重金属污染物的综合潜在风险指数。

由于 Hakanson(1980)提出的生态风险指数法所包括的监测项目包括 PCB(多氯联苯)、Hg、Cu、Pb、Cd、Cr、Zn 和 As 共 8 种。而本研究未考虑 PCB,主要针对 7 种重金属进行分析评价,因此,需要对 Hakanson 提出的综合潜在风险指数值 RI 范围进行调整(马德毅等, 2003; 刘成等, 2002)。单个重金属潜在生态风险系数 E_r^i 和调整后的综合潜在风险指数 RI 值所对应的污染评价等级划分见表 2。

2 结果与讨论

2.1 重金属含量分析

本研究对 5 个调查航次的表层沉积物重金属的监测结果见表 3。由表 3 可知, 2006–2014 年黄河口附近海域表层沉积物重金属 Hg、Cu、Pb、Cd、Cr、Zn 和 As 的含量变化范围分别为 $(0.019-0.188) \times 10^{-6}$ 、 $(5.7-43.7) \times 10^{-6}$ 、 $(7.9-86.1) \times 10^{-6}$ 、 $(0.010-0.444) \times 10^{-6}$ 、 $(13.8-70.9) \times 10^{-6}$ 、 $(11.3-88.6) \times 10^{-6}$ 和 $(2.2-18.4) \times 10^{-6}$ 。与《海洋沉积物质量》(GB18668-2002)中第一类标准值相比,除 2011 年调查少数站位的 Cu 和 Pb 超过第一类标准外,其他 5 种重金属和其他航次调查的重金属含量均符合第一类标准;超标站位的 Cu 和 Pb 含量均符合第二类标准。

天然海域中表层沉积物各种重金属本底含量相差较大,由表 3 可知, Hg 和 Cd 的含量相差不大,且含量明显低于其他 5 种重金属元素; Cu、Pb、Cr、Zn 和 As 等的含量基本在一个数量级。2006–2014 年调查海域表层沉积物各重金属的年均含量大小与郑懿珉等(2015)对莱州湾附近海域表层沉积物重金属统计结果基本一致,但 Cr 和 Zn 的年均含量与郑懿珉等(2015)、林曼曼等(2013)的调查结果相比要小。

从水平分布角度分析,同种重金属不同年份的平面分布略有不同。本研究以重金属 Hg 为例,2014 年,调查海域重金属 Hg 的平面分布特征表现为从四周向中间海域降低的趋势,黄河口以南海域的含量偏低;2013 年,调查海域 Hg 的平面分布特征表现为北部海域较高,黄河口以南海域含量较低,其他海域分布较均匀;2011 年,调查海域 Hg 的平面分布特征表现为中北部海域高,南部海域略低;而 2009 年,调查海域 Hg 的平面分布趋势为东部海域高,其他海域略低;2006 年,由于调查范围相对较小,平面分布趋势不明显。

表 2 潜在生态风险指数法的污染评价等级划分

Tab.2 The classification and evaluation of pollution degree by using the potential ecological risk index

E_r^i 范围 Ranges of E_r^i	单个重金属污染物生态风险程度分级 Degree classification of ecological risk for single heavy metal	RI 范围 Ranges of RI	综合潜在生态风险程度分级 Degree classification of the comprehensive potential ecological risk
$E_r^i < 40$	低 Low	$RI < 130$	低 Low
$40 \leq E_r^i < 80$	中 Moderate	$130 \leq RI < 260$	中 Moderate
$80 \leq E_r^i < 160$	较高 Considerable	$260 \leq RI < 520$	较高 Considerable
$160 \leq E_r^i < 320$	高 High	$RI \geq 520$	高 High
$E_r^i \geq 320$	很高 Very high		

表 3 2006–2014 年调查海域表层沉积物重金属的含量($\times 10^{-6}$)Tab.3 The contents of heavy metals in the surface sediments of the survey area from 2006 to 2014 ($\times 10^{-6}$)

元素 Element	2006		2009		2011		2013		2014		年均值 Annual average
	范围 Range	均值 Average	范围 Range	均值 Average	范围 Range	均值 Average	范围 Range	均值 Average	范围 Range	均值 Average	
Hg	0.035–0.049	0.043	0.037–0.050	0.044	0.019–0.188	0.099	0.032–0.048	0.040	0.027–0.068	0.044	0.055
Cu	22.6–31.9	26.7	16.5–31.9	22.9	5.7–43.7	19.0	11.7–25.2	18.7	18.1–26.9	22.7	21.3
Pb	34.2–41.2	38.3	13.0–27.6	18.8	7.9–86.1	20.3	8.9–18.0	12.9	9.6–30.9	20.5	19.7
Cd	0.092–0.128	0.104	0.128–0.264	0.182	0.066–0.444	0.145	0.066–0.250	0.150	0.010–0.194	0.105	0.143
Cr	38.8–57.1	45.7	18.6–33.5	24.8	19.6–70.9	43.1	13.8–28.3	20.4	15.0–26.3	21.1	28.6
Zn	56.4–78.0	65.2	19.0–39.0	28.8	11.3–68.6	25.6	16.3–88.6	23.7	17.3–30.8	23.9	28.7
As	8.6–10.1	9.6	5.0–8.7	6.53	2.2–7.5	4.39	3.8–6.1	4.83	6.4–18.4	11.6	7.1

2.2 重金属年际变化分析

本研究调查海域表层沉积物重金属含量年际变化情况见图 2。从图 2 可以看出, 7 种重金属含量的年际变化有所不同。其中, Hg 含量在 2011 年监测值最大, 在其他年份基本持平; Cd 含量呈先升高后下降趋势; Cu 和 As 含量相对比较稳定, 呈略微下降后上升的趋势; Pb 和 Zn 含量变化较大, 在 2006 年监测值最大, 然后呈下降趋势; Cr 含量在 2006 和 2011 年较大, 其他 3 个年份含量持平。

相对其他调查航次, 2011 年调查海域重金属 Hg 的含量明显高于其他 4 个航次; 胡宁静等(2011)的研究结果表明, 黄河口及邻近海域沉积物中 Hg 主要受人为活动影响, 这可能与莱州湾海水 Hg 污染严重和大气颗粒物沉降有关。2011 年调查海域海水中重金属 Hg 的同步监测结果显示, 表层、中层和底层分别有 50.0%、58.3%和 58.5%的调查站位的 Hg 超过《海水水质标准》(GB3097-1007)中的第一类标准, 而 2006、2013 和 2014 年 3 个航次调查海域海水中重金属 Hg 含量均未超标, 2009 年调查海域表层和底层分别为 10.2%和 3.4%的调查站位的 Hg 超过《海水水质标准》(GB3097-1007)中的第一类标准, 超标程度较轻。由此可知, 2011 年调查海域表层沉积物中 Hg 含

量偏高原因主要与其海水中 Hg 含量较高有关。

2.3 重金属单因子标准指数评价

根据单因子标准指数评价法, 2006–2014 年调查海域表层沉积物重金属年平均单因子标准指数统计结果见表 4。从表 4 可以看出, 所有重金属元素年平均单因子标准指数均小于 1, 表明调查海域表层沉积物质量状况良好, 符合国家海洋沉积物质量第一类标准。

各重金属元素的年平均单因子标准指数排序为 $Cu > Cr > As > Pb > Cd > Hg > Zn$ 。相对于其他 6 种重金属元素, Cu 的标准指数值较高, 近 10 年来标准指数均值达 0.61; 其他 6 种重金属元素单因子标准指数均值均小于 0.4。鉴于重金属 Cu 的标准指数值远高于其他重金属元素, 应引起重视并加强例行监测。

2.4 重金属潜在生态风险评价

通过对调查海域 2006–2014 年表层沉积物重金属潜在生态风险进行评价, 得到重金属潜在生态风险系数 E_r^i 和综合潜在生态风险指数 RI 两项指标(表 5)。从表 5 可以看出, 2006–2014 年调查海域各航次 7 种重金属的平均潜在生态风险系数 E_r^i 均小于 40, 根据污染评价等级划分(表 2), 属于低生态风险水平; 仅 2011 年个别调查站位的重金属 Hg 的潜在生态风险系

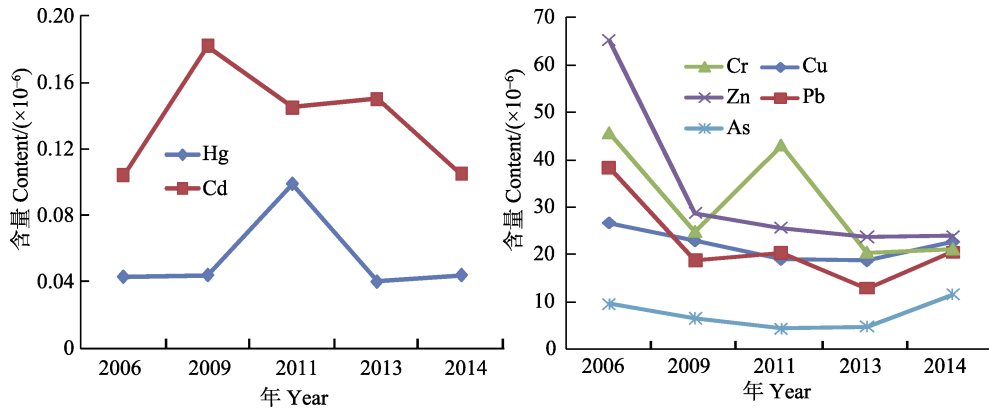


图 2 调查海域表层沉积物中重金属平均含量的年际变化

Fig.2 The annual variations of the average contents of heavy metals in the surface sediments of the survey area

数 E_r^i 达到最大值 60.16, 属于中等生态风险水平。2006–2014 年调查海域综合潜在风险指数 RI 年际变化范围为 32.18–53.12, 平均为 40.44, RI 均远小于 130, 表明该调查海域表层沉积物的综合潜在生态风险为低生态风险水平。从年际变化趋势看, 2011 年 RI 最高, 为 53.12; 2013 年 RI 最低, 为 32.18; RI 年际变化基本表现为先升高后降低、然后略微上升的趋势。

7 种重金属近 10 年平均潜在生态风险系数 E_r^i 由大到小依次为 Hg>Cd>As>Pb>Cu>Cr>Zn; 其中, Hg 的 E_r^i 年均值最高, 为 17.63, 是该调查海域的主要潜在生态风险因子; 其次是 Cd, 均值为 8.56。与 7 种重金属年均含量大小排序相比, 潜在生态风险系数 E_r^i 的排序基本呈逆序排列; 分析原因之一可能由于 Hg 和 Cd 等元素的毒性响应系数 T_r^i 比较大, 其毒性水平以及生物对其敏感程度较高; 原因之二可能是有

些重金属元素如 Zn、Cr 等具有亲颗粒性: 虽然其在沉积物中含量比较高, 但其具有亲颗粒性, 容易被细颗粒悬浮物迁移, 进入沉积物中矿化埋藏使它们毒性降低, 从而其潜在生态风险程度也降低(刘志杰等, 2012)。

表 4 2006–2014 年调查海域表层沉积物重金属年平均单因子标准指数

Tab.4 Annual average of single-factor standard index for heavy metals in the surface sediments from 2006 to 2014

元素 Element	2006	2009	2011	2013	2014	年均值 Annual average
Hg	0.22	0.22	0.50	0.20	0.22	0.28
Cu	0.76	0.65	0.54	0.53	0.65	0.61
Pb	0.64	0.31	0.34	0.22	0.34	0.33
Cd	0.21	0.36	0.29	0.30	0.21	0.29
Cr	0.57	0.31	0.54	0.26	0.26	0.36
Zn	0.43	0.19	0.17	0.16	0.16	0.19
As	0.48	0.33	0.22	0.24	0.58	0.35

表 5 调查海域表层沉积物重金属的潜在生态风险系数和潜在生态风险指数

Tab.5 The potential ecological risk factors (E_r^i) and risk indices (RI) of heavy metals in the surface sediments of the survey area from 2006 to 2014

年份 Year	项目 Items	E_r^i							RI
		Hg	Cu	Pb	Cd	Cr	Zn	As	
2006	范围 Range	11.20–15.68	3.77–5.32	7.95–9.58	5.52–7.68	1.42–2.09	0.71–0.98	5.74–6.73	42.24
	均值 Average	13.76	4.45	8.91	6.24	1.67	0.82	6.40	
2009	范围 Range	11.84–16.00	2.75–5.32	3.02–6.42	7.68–15.84	0.68–1.22	0.24–0.49	3.33–5.81	38.81
	均值 Average	14.08	3.82	4.37	10.92	0.91	0.36	4.35	
2011	范围 Range	6.18–60.16	0.96–7.28	1.83–20.02	3.98–26.64	0.72–2.59	0.14–0.86	1.48–4.99	53.12
	均值 Average	31.71	3.17	4.72	8.70	1.58	0.32	2.93	
2013	范围 Range	10.24–15.36	1.95–4.20	2.07–4.19	3.97–15.00	0.50–1.03	0.20–1.11	2.51–4.08	32.18
	均值 Average	12.80	3.12	3.00	9.00	0.75	0.30	3.22	
2014	范围 Range	8.64–21.66	3.02–4.48	2.23–7.19	0.60–11.64	0.55–0.96	0.22–0.39	4.27–12.27	37.77
	均值 Average	14.08	3.79	4.78	6.28	0.77	0.30	7.77	
年均值 Annual average		17.63	3.56	4.58	8.56	1.04	0.36	4.70	40.44

研究海域不同, 重金属的潜在风险不同; 同一海域研究的时间不同, 重金属的潜在风险也可能不同。张雷等(2011)的研究结果表明, 重金属对渤海典型海域生态风险构成的危害程度排序为 $Cd > Pb > As > Cu > Zn > Cr$, 其中, Cd 以中等生态风险等级为主, 局部海域出现强、很强、极强生态风险等级; 而刘志杰等(2012)对 2008 年黄河三角洲表层沉积物研究结果显示, 6 种重金属污染物潜在生态风险系数由大到小顺序为 $Cd > Hg > Cu > Cr > Pb > Zn$, 而 Cd 是黄河三角洲的主要潜在生态风险因子。上述研究结果均与本研究结果不同, 表明海洋沉积物环境中重金属对海洋环境的潜在生态风险程度在不同海域和不同研究年份都可能不同, 需要结合沉积物中有机质含量、物理化学性质、粒度分析以及重金属来源等进行分析, 才能全面反映调查海域沉积物环境的质量状况。

3 结论

(1) 2006–2014 年, 黄河口附近海域表层沉积物 7 种重金属 Hg 、 Cu 、 Pb 、 Cd 、 Cr 、 Zn 和 As 的含量除 2011 年调查少数站位的 Cu 和 Pb 超过第一类标准外, 其他调查站点的重金属含量均符合海洋沉积物质量第一类标准; 超标站点的 Cu 和 Pb 含量均符合第二类标准值。7 种重金属本底含量相差较大, 其中, Hg 和 Cd 的含量相当, 其含量明显低于其他 5 种重金属元素; 7 种重金属含量的年际变化有所不同。

(2) 单因子标准指数评价结果显示, 7 种重金属元素年平均单因子标准指数均小于 1, 表明调查海域表层沉积物质量状况良好。7 种重金属元素的年平均单因子标准指数排序为 $Cu > Cr > As > Pb > Cd > Hg > Zn$ 。 Cu 的标准指数值较高, 近 10 年来标准指数均值达 0.61, 应引起重视并加强例行监测; 其他 6 种重金属元素单因子标准指数均值均小于 0.4。

(3) 潜在生态风险评价结果显示, 2006–2014 年调查海域各航次 7 种重金属的平均 E_r^i 均小于 40, 属于低生态风险水平; RI 年际变化范围为 32.18–53.12, 平均为 40.44, 属于低生态风险水平; RI 的年际变化趋势基本表现为先升高后降低、然后略微上升的趋势。7 种重金属近 10 年平均 E_r^i 排序为 $Hg > Cd > As > Pb > Cu > Cr > Zn$, 其中, Hg 是该调查海域的主要潜在生态风险因子。

参 考 文 献

Chai XP, Hu BL, Wei N, *et al.* Distribution, sources and assessment of heavy metals in surface sediments of the Hangzhou Bay and its adjacent areas. *Acta Scientiae*

- Circumstantiae*, 2015, 35(12): 3906–3916 [柴小平, 胡宝兰, 魏娜, 等. 杭州湾及邻近海域表层沉积物重金属的分布、来源及评价. *环境科学学报*, 2015, 35(12): 3906–3916]
- Chen Y, Xu ZZ, Hu YY, *et al.* Distribution and ecological risk assessment of heavy metals in the surface sediments along coast of Qinhuangdao. *Marine Environmental Science*, 2014, 33(1): 66–70 [陈燕, 许自舟, 胡莹莹, 等. 秦皇岛海域表层沉积物重金属含量分布特征及生态风险评价. *海洋环境科学*, 2014, 33(1): 66–70]
- Committee of Science and Technology of Shandong Province. The comprehensive survey reports of coastal zone and tidal flat resources in Shandong Province. Beijing: China Science and Technology Press, 1990: 526 [山东省科学技术委员会. 山东省海岸带和海涂资源综合调查报告. 北京: 中国科学技术出版社, 1990: 526]
- Compiling group in environmental quality survey report of the national coast belt office. Chinese coastal zone and coastal resources comprehensive survey professional report. Beijing: China Ocean Press, 1989: 180 [全国海岸带办公室环境质量调查报告编写组. 中国海岸带和海涂资源综合调查专业报告集. 北京: 海洋出版社, 1989: 180]
- Hakanson L. An ecological risk index for aquatic pollution control: A sedimentological approach. *Water Research*, 1980, 14: 975–1001
- Hu NJ, Shi XF, Liu JH, *et al.* Distribution and impacts of heavy metals in the surface sediments of the Laizhou Bay. *Advance in Marine Science*, 2011, 29(1): 63–72 [胡宁静, 石学法, 刘季花, 等. 莱州湾表层沉积物中重金属分布特征和环境影响. *海洋科学进展*, 2011, 29(1): 63–72]
- Hu YF, Jiang H. Status and trend analysis of heavy metal pollution in surface sediments of Zhongjieshan Islands national marine special protection area. *Ocean Development and Management*, 2012, 11: 67–70 [胡益峰, 蒋红. 中街山列岛国家级海洋特别保护区海域表层沉积物重金属污染状况及变化趋势分析. *海洋开发与管理*, 2012, 11: 67–70]
- Lin MM, Zhang Y, Xue CT, *et al.* Distribution pattern of heavy metals in the surface sediments of the area of circum-Bohai Bay and ecological environment assessment. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 2013, 33(6): 41–46 [林曼曼, 张勇, 薛春汀, 等. 环渤海海域沉积物重金属分布特征及生态环境评价. *海洋地质与第四纪地质*, 2013, 33(6): 41–46]
- Liu C, Wang ZY, He Y, *et al.* Evaluation on the potential ecological risk for the river mouths around Bohai Bay. *Research of Environmental Sciences*, 2002, 15(5): 33–37 [刘成, 王兆印, 何耘, 等. 环渤海湾诸河口潜在生态风险评价. *环境科学研究*, 2002, 15(5): 33–37]
- Liu HW, Du D, Ma Z, *et al.* Distribution pattern and contamination assessment of heavy metals in surface sediments of Beidaihe near-shore area. *Marine Geology Frontiers*, 2015, 31(7): 47–51 [刘宏伟, 杜东, 马震, 等. 北戴河近岸海域表层沉积物重金属分布特征及污染评价.

- 海洋地质前沿, 2015, 31(7): 47–51]
- Liu M, Zhang AB, Fan DJ, *et al.* Environmental quality of heavy metals in surface sediments in the central region of the Bohai Sea. *China Environmental Science*, 2012, 32(2): 279–290 [刘明, 张爱滨, 范德江, 等. 渤海中部底质沉积物重金属环境质量. *中国环境科学*, 2012, 32(2): 279–290]
- Liu SM, Yao QZ, Liu YL, *et al.* Distribution and influence factors of heavy metals in surface sediments of the Yellow River Estuary wetland. *China Environmental Science*, 2012, 32(9): 1625–1631 [刘淑民, 姚庆祯, 刘月良, 等. 黄河口湿地表层沉积物中重金属的分布特征及其影响因素. *中国环境科学*, 2012, 32(9): 1625–1631]
- Liu ZJ, Li PY, Zhang XL, *et al.* Regional distribution and ecological risk evaluation of heavy metals in surface sediments from coastal wetlands of the Yellow River Delta. *Environmental Sciences*, 2012, 33(4): 1182–1188 [刘志杰, 李培英, 张晓龙, 等. 黄河三角洲滨海湿地表层沉积物重金属区域分布及生态风险评价. *环境科学*, 2012, 33(4): 1182–1188]
- Luo XX, Tian J, Yang JQ, *et al.* Distribution characteristics of heavy metals and nutrient elements in inter-tidal surface sediments of Yellow River estuary. *Ecology and Environmental Sciences*, 2011, 20(5): 892–897 [罗先香, 田静, 杨建强, 等. 黄河口潮间带表层沉积物重金属和营养元素的分布特征. *生态环境学报*, 2011, 20(5): 892–897]
- Luo XX, Zhang R, Yang JQ, *et al.* Distribution and pollution assessment of heavy metals in surface sediment in Laizhou Bay. *Ecology and Environmental Sciences*, 2010, 19(2): 262–269 [罗先香, 张蕊, 杨建强, 等. 莱州湾表层沉积物重金属分布特征及污染评价. *生态环境学报*, 2010, 19(2): 262–269]
- Ma DY, Wang JY. Evaluation on potential ecological risk of sediment pollution in main estuaries of China. *China Environmental Science*, 2003, 23(5): 521–525 [马德毅, 王菊英. 中国主要河口沉积物污染及潜在生态风险评价. *中国环境科学*, 2003, 23(5): 521–525]
- Mi BB, Lan XH, Zhang ZX, *et al.* Distribution of heavy metals in surface sediments off Yangtze River estuary and environmental quality assessment. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 2013, 33(6): 47–53 [密蓓蓓, 蓝先洪, 张志珣, 等. 长江口外海域沉积物重金属分布特征及其环境质量评价. *海洋地质与第四纪地质*, 2013, 33(6): 47–53]
- Nobi EP, Dilipan E, Thangaradjou T, *et al.* Geochemical and geo-statistical assessment of heavy metal concentration in the sediments of different coastal ecosystems of Andaman Islands, India. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 2010, 87(2): 253–264
- Qiao YM, Huang CJ, Zhao JG. Heavy metal accumulation and environmental quality assessment for surface sediment in Zhelin Bay. *Marine Environmental Science*, 2010, 29(3): 324–327 [乔永民, 黄长江, 赵建刚. 粤东柘林湾沉积物重金属富集特征与环境质量评价. *海洋环境科学*, 2010, 29(3): 324–327]
- Wu B, Song JM, Li XG. Environmental Characteristics of Heavy Metals in Surface Sediments from the Huanghe Estuary. *Environmental Science*, 2013, 34(4): 1324–1332 [吴斌, 宋金明, 李学刚. 黄河口表层沉积物中重金属的环境地球化学特征. *环境科学*, 2013, 34(4): 1324–1332]
- Xia B, Zhang XL, Cui Y, *et al.* Evaluation of the physicochemical environment and nutrition status in Laizhou Bay and adjacent waters in summer. *Progress in Fishery Sciences*, 2009, 30(3): 103–111 [夏斌, 张晓理, 崔毅, 等. 夏季莱州湾及附近水域理化环境及营养现状评价. *渔业科学进展*, 2009, 30(3): 103–111]
- Zhang L, Qin YW, Zheng BH, *et al.* Distribution and pollution assessment of heavy metals in sediments from typical areas in the Bohai Sea. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2011, 31(8): 1676–1684 [张雷, 秦延文, 郑丙辉, 等. 环渤海典型海域潮间带沉积物中重金属分布特征及污染评价. *环境科学学报*, 2011, 31(8): 1676–1684]
- Zhang Y, Zhang XR, Bi SP, *et al.* Heavy metal distribution patterns in Chinese coastal sediments and environment quality assessment. *Marine Geology Frontiers*, 2012, 28(11): 38–42 [张勇, 张现荣, 毕世普, 等. 我国近海海域沉积物重金属分布特征与环境质量评价. *海洋地质前沿*, 2012, 28(11): 38–42]
- Zheng YM, Gao MS, Liu S, *et al.* Distribution patterns and ecological assessment on heavy metals in the surface sediments of Laizhou Bay. *Marine Environmental Science*, 2015, 34(3): 354–360 [郑懿珉, 高茂生, 刘森, 等. 莱州湾表层沉积物重金属分布特征及生态环境评价. *海洋环境科学*, 2015, 34(3): 354–360]
- Zhou XB, Mei PW, Peng LL, *et al.* Contents and potential ecological risk assessment of selected heavy metals in the surface sediments of Bohai Bay. *Ecology and Environmental Sciences*, 2015, 24(3): 452–456 [周笑白, 梅鹏蔚, 彭露露, 等. 渤海湾表层沉积物重金属含量及潜在生态风险评价. *生态环境学报*, 2015, 24(3): 452–456]

(编辑 冯小花)

Pollution Status and the Annual Variations of Heavy Metals in the Surface Sediments in the Adjacent Sea Water of the Yellow River Estuary

HU Qin¹①, LI Qiang¹, HUANG Bigui¹, QU Liang², CAO Jing¹

(1. China National Offshore Oil Corporation Research Institute, Beijing 100028;

2. North China Sea Environmental Monitoring Center, State Oceanic Administration, Qingdao 266033)

Abstract According to the monitoring results of the surface sediment samples from five cruises of 150 survey stations from 2006 to 2014 collected in the adjacent sea water of the Yellow River estuary, the pollution status and the annual variations of the seven kinds of heavy metals Hg, Cu, Pb, Cd, Cr, Zn and As in the sediments were analyzed. The methods of single factor standard index and potential ecological risk index were used to evaluate the status of heavy metal pollution and potential ecological risk degree. The results showed that the contents of heavy metals met the first class standard requirement of the Marine Sediment Quality except a few stations investigated in 2011 exceeded the first class standard. The contents of Hg and Cd were equal, which were obviously lower than that of the other five heavy metal elements. And the annual variations of the seven heavy metals were different from each other. The average single factor standard indices of the seven heavy metals were all less than 1, which indicated that the quality status of the surface sediment in the survey area was good. The order of the annual average single factor standard indices of the seven heavy metals was Cu>Cr>As>Pb> Cd>Hg>Zn. And the standard index value of Cu was higher than the others, even the average standard index of Cu reached 0.61 in recent ten years, which should be paid attention to and strengthened routine monitoring. And the single factor standard indices for the other six heavy metal elements were all less than 0.4. Further potential ecological risk assessment results showed that the average potential ecological risk factors E_r^i of seven heavy metals of all cruises were less than 40, which presented a low level ecological risk. And the order of E_r^i for seven heavy metals in recent ten years was Hg>Cd>As>Pb>Cu>Cr>Zn, where Hg was the main potential ecological risk factor in the survey area. The annual variations of the comprehensive potential ecological risk index RI ranged from 32.18 to 53.12, which indicated a low level of ecological risk. Basically, the trend of the annual variations of RI was increasing first, then decreasing, and then a slight increasing.

Key words Yellow River estuary; Surface sediments; Heavy metals; Pollution; Annual variations

① Corresponding author: HU Qin, E-mail: huqin7321@163.com