

简锐风,岳甫均,朱兆洲,等.环渤海滨海湿地重金属的时空变化及来源分析 [J]. 中国环境科学, 2023,43(11):6025–6038.

Jian R F, Yue F J, Zhu Z Z, et al. Temporal and spatial variation of heavy metals in coastal wetlands around the Bohai Sea and analysis of their sources [J]. China Environmental Science, 2023,43(11):6025–6038.

环渤海滨海湿地重金属的时空变化及来源分析

简锐风^{1,2},岳甫均^{3,4*},朱兆洲²,刘小龙²,张璐瑶^{1,2} (1.天津师范大学,地理与环境科学学院,天津 300387; 2.天津师范大学,天津市水资源与水环境重点实验室,天津 300387; 3.天津大学,地球系统科学学院,天津 300072; 4.天津大学,天津环渤海滨海地球关键带国家野外科学观测研究站,天津 300450)

摘要:以环渤海滨海湿地的水体、表层沉积物、表层土壤重金属为对象,通过收集已有数据,利用内梅罗指数法、污染负荷指数法、主成分分析等方法分析了重金属的时空变化、污染水平、来源,旨在为环渤海地区滨海湿地重金属污染防治、治理提供重要信息.结果表明:2000~2020年,环渤海滨海湿地水体 As、Pb、Cd、Cu 浓度上升,Cr、Hg、Zn 浓度下降;湿地表层沉积物 As、Ni 含量变化较小,Cr、Cu、Zn、Hg 含量上升,Pb、Cd 含量下降;湿地表层土壤 Cr、Zn 含量上升,As、Cu、Ni、Pb、Cd、Hg 含量下降,三种湿地环境介质表现出差异性变化;环渤海滨海湿地重金属中 Cd、Hg 单因子污染水平较高,分别为 2.67 和 2.57;2010s 环渤海滨海湿地重金属综合污染水平较高,水体、沉积物、土壤的内梅罗指数和污染负荷指数分别为 1.53、4.49、2.52 和 0.34、0.96、1.44,但在中国三大经济圈中处于较低水平;Cu、Ni、Cr、Zn、As 对环渤海滨海湿地环境影响程度较低,主要来源于自然来源及少量人为来源;Hg、Pb、Cd 对环渤海滨海湿地环境影响程度较高,主要来自重工业、与重工业联系较强的轻工业.

关键词:滨海湿地; 环渤海; 重金属; 时空变化; 来源分析

中图分类号: X55 文献标识码: A 文章编号: 1000-6923(2023)11-6025-14

Temporal and spatial variation of heavy metals in coastal wetlands around the Bohai Sea and analysis of their sources. JIAN Rui-feng^{1,2}, YUE Fu-jun^{3,4*}, ZHU Zhao-zhou², LIU Xiao-long², ZHANG Lu-yao^{1,2} (1.College of Geography and Environmental Science, Tianjin Normal University, Tianjin 300387, China; 2.Tianjin Key Laboratory of Water Resources and Environment, Tianjin Normal University, Tianjin 300387, China; 3.School of Earth System Science, Tianjin University, Tianjin 300072, China; 4.Tianjin Bohai Rim Coastal Earth Critical Zone National Observation and Research Station, Tianjin University, Tianjin 300450, China). *China Environmental Science*, 2023,43(11): 6025~6038

Abstract: In this study, published data was collected and Nemerow index, pollution load index and principal component analysis methods were utilized to analyze the spatial and temporal variation of heavy metals, pollution levels and sources. The results provided important information for the prevention, control and management of heavy metal pollution in coastal wetlands around the Bohai Sea. The results indicated that between 2000 and 2020, the concentrations of As, Pb, Cd and Cu in the coastal wetlands of the Bohai Sea exhibited an increase while those of Cr, Hg and Zn showed a decrease. In terms of wetland surface sediment composition, changes in As and Ni were minimal whereas contents of Cr, Cu, Zn and Hg increased while those of Pb and Cd decreased. Additionally, there was an increase in Cr and Zn content within the surface wetland soil while contents of As, Cu, Ni, Pb, Cd and Zn decreased. The single-factor pollution levels of Cd and Hg in heavy metals in coastal wetlands around the Bohai Sea were high, which were 2.67 and 2.57. In the 2010s, the levels of heavy metal pollution in the coastal wetlands of the Bohai Sea were high, and the Nemerow index and Pollution Load index of water, sediment and soil were 1.53, 4.49, 2.52 and 0.34, 0.96, 1.44, whereas they remained at a low level in China's three economic regions. Cu, Ni, Cr, Zn, As have minimal impact on the environment of the coastal wetlands of the Bohai Sea as they were primarily derived from natural sources and only a minor contribution from anthropogenic sources. Cu, Ni, Cr, Zn and As had a limited impact on the environment of coastal wetlands in the Bohai Sea due to their predominantly natural sources with minor anthropogenic sources; whereas Hg, Pb and Cd posed significant environmental risks to these wetlands primarily as a result of heavy industries and light industries closely linked to them.

Key words: coastal wetland; Bohai Rim; heavy metals; temporal and spatial variation; source analysis

湿地、森林和海洋并称地球三大生态系统^[1],其中湿地在维持生态平衡、涵养水源、净化污染物等方面具有重要的作用^[2].在众多的湿地类型中,滨海湿地蕴藏着丰富的水、土与生物资源,是介于海洋与

收稿日期: 2023-03-29

基金项目: 国家科技基础资源调查专项项目(2021FY101001);国家自然科学基金重大项目(42293262)

* 责任作者, 副教授, fujun_yue@tju.edu.cn

陆地的重要生态缓冲区,除拥有湿地常见重要功能外,还拥有诸如有效遏制海岸侵蚀、防止海水入侵等特殊的功能^[3].随着经济的快速发展,人类排放的污染物输入并累积在湿地的水、沉积物、土壤等环境介质中导致滨海湿地污染^[4-7].在各种污染物中,重金属由于其极强的毒理效应,通过各种方式在生态系统中迁移转化,会影响湿地功能且直接或间接对人类及滨海湿地生态系统造成危害^[8-9].中国的滨海湿地主要分布在东部沿海 11 个省(市、区)和港澳台地区,环渤海、长三角、珠三角这三大经济区的滨海湿地受人类活动影响最为突出.

环渤海地区是中国滨海湿地主要集聚区之一,解析该区域内重要滨海湿地重金属赋存与来源具有重要意义.环渤海地区一般指环渤海经济圈,2021 年 GDP 和人口占中国的 18.1%和 17.6%,其与长三角、珠三角地区在我国的社会经济发展中占有重要地位^[10].以第二产业为主的环渤海地区存在大量的重金属污染源,导致重金属成为渤海环境质量恶化的主要污染物^[11],而环渤海地区滨海湿地净化污染物的功能对于缓解渤海重金属污染具有重要作

用.如今重金属已通过各种途径进入环渤海滨海湿地中,环渤海滨海湿地大范围的污染现状是目前湿地污染防控需要了解的基础内容.国内对环渤海重金属的大范围研究较少,且已有研究未分析其时间变化,仅分别对环渤海芦苇湿地沉积物重金属、环渤海土壤重金属进行了污染评价^[10,12].

本研究通过对已有环渤海滨海湿地水体、表层沉积物、表层土壤(以下分别简称为沉积物、土壤)重金属数据进行收集,使用多种统计分析方法对其进行研究和讨论,旨在认识环渤海滨海湿地水体、沉积物和土壤环境中的重金属污染水平及时空变化趋势,了解其污染现状与主要来源,为环渤海地区滨海湿地重金属污染防控、治理提供重要依据.

1 材料与方法

1.1 研究区概况

1.1.1 研究区滨海湿地的分布 环渤海地区重要滨海湿地如图 1 所示,这些滨海湿地主要是经过海陆变迁、地下水、河流、潮流、波浪等陆地和海洋环境因素及生物因素综合作用下形成的^[13].

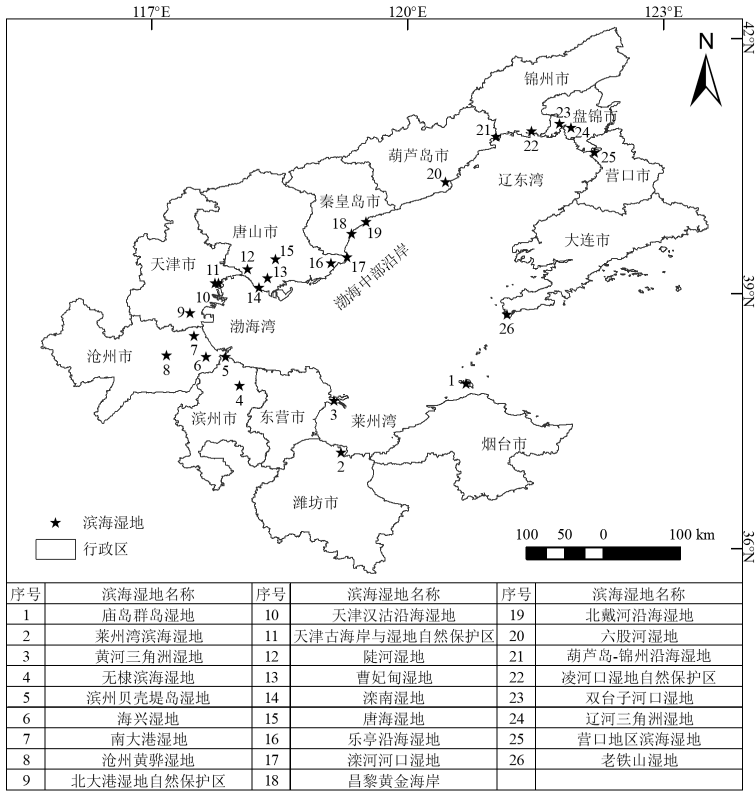


图 1 环渤海重要滨海湿地分布

Fig.1 Spatial distribution of the important coastal wetlands in the Bohai Sea region

基于自然资源部标准地图服务网站 GS(2019)1822 号的标准地图制作,底图边界无修改

1.1.2 研究区经济与人口概况 经济的高速发展会带来人口大量集聚,从 1970~2021 年,环渤海地区的 GDP 与人口由 418.37 亿元、14727 万人增长到了 166766.35 亿元、23220 万人^[14],这种增长带来了极高的环境压力^[15]。

1.1.3 自然资源概况 环渤海地区具有丰富的自然资源,其中滩涂资源、鱼类资源、油气资源最为突出^[16-18]。滩涂是滨海湿地的一种类型,环渤海地区沿海滩涂面积高达 $68.04 \times 10^4 \text{ hm}^2$,集中分布在黄河三角洲和辽河三角洲地区;渤海的渔业资源量约为 $58 \times 10^4 \text{ t/a}$,辽东湾、滦河口、渤海湾和莱州湾是我国重要的渔场,与滨海湿地位置有较大重合;环渤海油气资源较为突出,包括华北、大港、胜利、渤海、冀东、辽河油田。

1.1.4 湿地面积变化 由于人类活动的影响,环渤海滨海湿地近 40a 来自然湿地面积减少了 66%,人工湿地面积增加了 162%,演变趋势为自然湿地向人工湿地转变,人工湿地向非湿地转变^[19]。为了有效遏制滨海湿地退化趋势,2017 年后包括天津市在内的环渤海行政单位都制定了《自然保护区区划》,对湿地进行政策上的“退塘还湿”、“退养还湿”、“退耕还湿”等修复工作,目前已有初步成效^[20]。

1.1.5 废水排放情况 2000 年来环渤海地区废水排放总量波动增长,2000s~2010s 增长了 42.3%^[21]。据研究表明,2005 年以来环渤海地区水污染物空间溢出效应明显,高排放区从零星分布向连片分布转变,环渤海地区已成为水污染物高排放区的叠加区域^[22]。

1.2 数据的来源与方法

1.2.1 数据来源 主要的数据来源为环渤海滨海湿地重金属研究文献,从中国知网、Web of science、Researchgate、American Geophysical Union、Proquest、谷歌学术中按滨海湿地保护区名/湿地所在地地名、湿地(wetland)、重金属(heavy metal)等关键词对文献进行搜索并筛选,搜索截止时间为 2022 年底。搜索时对土壤与沉积物有所区分,湿地沉积物与土壤物源相似,主要区别在于是否被水体覆盖,二者可以通过一系列过程相互转化。

通过对检索结果进行筛选,仅 120 篇文献符合要求,含中文文献 71 篇,外文文献 49 篇,以其数据建立了环渤海滨海湿地重金属数据库,含有 2000 年以

前数据的文献 7 篇,包括 1990 年以前的早期数据 1 篇,2000s (2000~2009 年)数据的文献 40 篇,2010s(2010~2019 年)数据的文献 83 篇(其中 2020 前后,包括 2017~2022 年,即 around 2020,简称 a2020,30 篇);水体文献 16 篇,沉积物文献 62 篇,土壤文献 52 篇;As 数据 97 条,Cd 数据 138 条,Cr 数据 112 条,Cu 数据 146 条,Hg 数据 68 条,Ni 数据 58 条,Pb 数据 151 条,Zn 数据 141 条。由于存在一篇文献拥有不同时间段、不同环境介质的数据,因此文献总量与时段、不同环境介质的文献数量总和存在不匹配的情况。

1.2.2 方法 (1)时空变化分析方法:将环渤海滨海湿地分为莱州湾(1~3,图 1)、渤海湾(4~15)、渤海中部沿岸(16~19)、辽东湾(20~26)四个区域进行不同介质重金属加权平均值的时空变化分析,仅对数据较齐全的 2010s 时段进行具体的空间变化分析。

(2)重金属污染评估方法:重金属评估方法较多,结合数据库的情况,选择在单因子指数基础上使用内梅罗指数法、污染负荷指数法(PLI)对重金属综合污染水平进行评价。单因子指数法是对某一污染物的污染程度进行简单评价的方法^[23],其计算公式为:

$$A_i = C_i / S_i \quad (1)$$

式中: A_i 为污染物 i 的单因子评价指数; C_i 为污染物 i 的浓度; S_i 为污染物 i 的评价标准值。环渤海滨海湿地评价中所使用标准值如表 1 所示,水体采用《地表水环境质量标准》(GB 3838-2002)^[24],沉积物采用环渤海地区土壤背景值、土壤采用《土壤环境质量标准》(GB 15618-1995)^[25],其中土壤不使用最新的 GB 15618-2018 试行标准的原因是其强调作为农用地的标准,而 GB 15618-1995 中 I 类标准可适用于自然保护区。

内梅罗指数法是在单因子污染指数评价的基础上对多因子综合评价的方法^[26-28],其计算公式为:

$$P = \sqrt{\frac{(\bar{A}_i)^2 + [\max(A_i)]^2}{2}} \quad (2)$$

式中: P 为内梅罗综合污染指数; $\bar{A}_i$ 为湿地 i 单因子指数的平均值, $\max(A_i)$ 为湿地 i 中单因子指数最大值。 $P < 1$ 为非污染, $1 < P < 2$ 为轻度污染, $2 < P < 3$ 为中度污染, $P > 3$ 为重度污染。

PLI 法是 Tomlinson 等在研究重金属污染水平分级时提出的一种评价方法,它能直观地反映各个

重金属对污染的贡献程度,以及重金属在时空上的变化趋势^[29],计算方法如下:

表 1 单因子评价指数所使用标准值
Table 1 Standard value used for single factor evaluation index

标准类型	As	Cd	Cr	Cu	Hg	Ni	Pb	Zn
地表水 I 类标准(μg/L) ^[24]	50	1	10	10	0.05	/	10	50
环渤海地区土壤背景值(mg/kg) ^[10]	10.2	0.1	68.9	23.6	0.04	28.9	23	77.5
土壤环境标准(mg/kg) ^[25]	15	0.2	90	35	0.15	40	35	100

首先计算单个重金属的最高污染系数,其与单因子污染指数计算(公式 1)相似,但分母 S_i 一般指当地重金属元素背景值,外文文献一般使用全球页岩平均值或当地背景值^[30],同时存在将其应用于地表水评价的情景^[31].故结合实际情况在计算地表水 PLI 指数时使用单因子指数代替最高污染系数进行计算,而计算沉积物和土壤 PLI 指数时使用环渤海地区土壤背景值作为 S_i 值而不使用全球页岩平均值.

其次计算某一点的污染负荷指数,公式为:

$$PLI = \sqrt[n]{A_1 \cdot A_2 \cdot A_3 \cdots A_n} \tag{3}$$

式中: A_n 为重金属 i 的最高污染系数; n 为参与评价的重金属种类数.

最后计算某一区域的污染负荷指数,公式为:

$$PLI_{zone} = \sqrt[n]{PLI_1 \cdot PLI_2 \cdot PLI_3 \cdots PLI_n} \tag{4}$$

式中: PLI_n 为某一点的污染负荷指数; n 为参与评价的点的个数.当 $PLI < 1$ 时,代表尚清洁;当 $1 < PLI < 2$ 时,代表中度污染;当 $2 < PLI < 3$ 时,代表强污染;当 $PLI \geq 3$ 时,代表极强污染.

(3)重金属来源分析方法:主成分分析及聚类分析是进行重金属来源分析的常用方法^[32-33],故采用 SPSS 26 的最大方差旋转的主成分分析与系统聚类分析对环渤海滨海湿地重金属的来源进行分析.

2 结果与分析

2.1 环渤海滨海湿地重金属时空变化分析

2.1.1 环渤海滨海湿地水体重金属浓度时空变化分析 如图 2 所示,从 2000s~2010s,环渤海滨海湿地水体 As、Pb、Cd、Cu 浓度呈上升趋势,其中 Pb、Cd、Cu 上升幅度可达 402%~611%;Cr、Hg、Zn 浓度呈下降趋势,最大下降幅度为 Hg,下降了 96%.

早期研究中,1981 年黄河三角洲湿地水体 Hg、Pb、Zn 浓度明显高于近 20a 莱州湾滨海湿地,其中 Hg 浓度超过现今浓度 14 倍.2000s~2010s,①莱州湾滨海湿地水体 As 浓度变化较小;Cr、Pb、Cd、Cu 浓

度呈上升趋势,其中 Cr、Cd、Cu 浓度上升幅度较大,分别上升了 812%、362%、109%;Hg、Zn 浓度呈下降趋势,分别下降了 85%和 64%.②渤海湾滨海湿地水体 As、Cr、Hg 浓度呈下降趋势,Pb、Cd 浓度呈上升趋势,其中 Hg、Pb、Cd 浓度变化幅度极大,Hg 浓度下降到原来的 0.96%,Pb、Cd 浓度分别上升到原来的 15 和 21 倍.③辽东湾滨海湿地水体 Pb 浓度变化较小,Cd、Cu、Zn 浓度呈上升趋势,分别是原来的 3.3 倍、30 倍、4.1 倍. Hg 浓度下降到了原来的一半.

2010s,环渤海滨海湿地水体重金属在空间上的变化为:As 浓度辽东湾>渤海湾>莱州湾,Cd 浓度分布与之相反;Cr、Pb 浓度渤海湾>莱州湾>辽东湾,Hg 浓度分布与之相反;Cu 浓度辽东湾>莱州湾,Zn 浓度分布与之相反.

2.1.2 环渤海滨海湿地沉积物重金属含量时空变化分析 如图 3 所示,近 20a 来环渤海滨海湿地沉积物 As、Ni 含量变化较小,Cr、Cu、Zn、Hg 含量上升,其中 Cr、Hg 含量上升幅度较大,分别为 56.1%和 36.4%;Pb、Cd 含量下降,其中 Cd 下降了 46.2%,幅度较大.沉积物重金属含量时空上的变化可以通过对各区域分别分析获取.

与早期数据相比,1990s 黄河三角洲湿地无 Cr 检出,Pb 含量略低于近 20a,但 Cu、Ni、Zn 是近 20a 的 1.5~2 倍;1980s~1990s 辽河三角洲湿地 Cd、Cu、Pb、Zn 是近 20a 的一半左右,但 As、Hg 含量是近 20a 的 2.1 与 4.8 倍.2010s 与 2000s 相比,①莱州湾滨海湿地沉积物 Pb、Hg 含量变化较小;As、Cr、Cu、Zn、Cd 含量呈上升趋势,其中幅度较大的是 Cr 和 Cd,都上升了 114%;而 Ni 含量下降了 20%.②渤海中部沿岸滨海湿地沉积物重金属主要呈上升趋势,其中 Zn、Cd、Hg 幅度变化较大,分别上升了 53.3%、69.8%、86.4%,其它重金属变化幅度较小.③辽东湾沿岸滨海湿地沉积物 As 含量变化不大,Cr 含量上升了 56%,其他重金属含量下降了 17%~27%,其中最大下降幅度为 Cd 的 50%.为体现最

新含量变化,将a2020 重金属含量与 2010s 比较,①莱州湾滨海湿地大多重金属含量变化不大,体现为 As 含量下降,Cr、Cu、Ni、Pb 含量上升,变化幅度在 4.8%~28%

之间,变化最大的是 Cd 含量上升了 55%;②辽东湾滨海湿地变化较大的 Hg 含量上升 195%,Cd 含量下降 75%,其他重金属含量上升了 26%~54%.

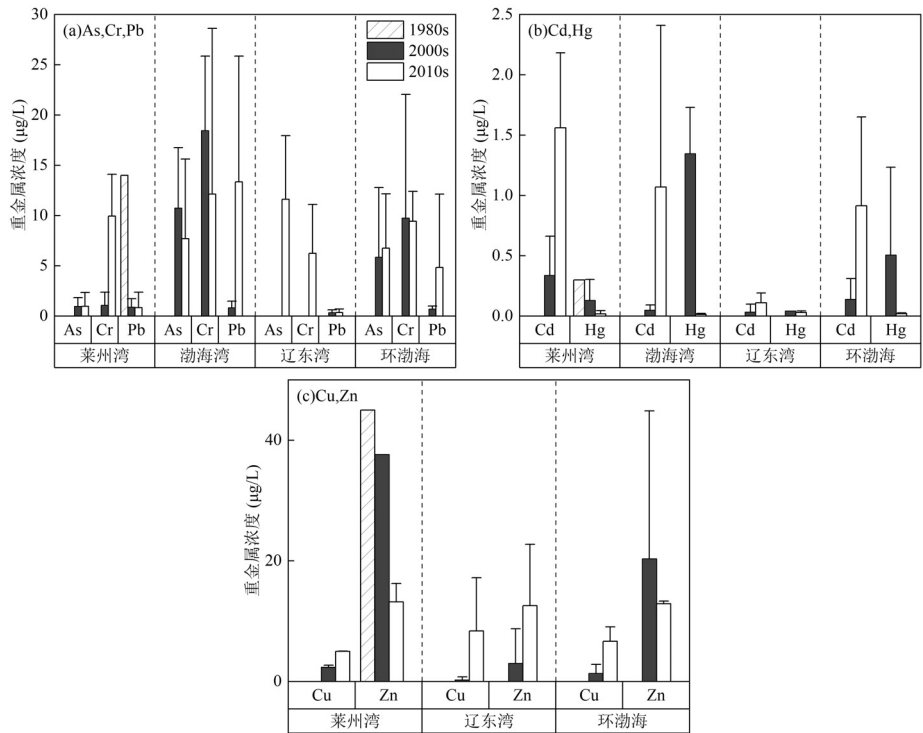


图 2 环渤海滨海湿地水体重金属浓度均值浓度时空变化

Fig.2 Spatiotemporal variation of the mean content of heavy metals in coastal wetlands water around Bohai Sea region

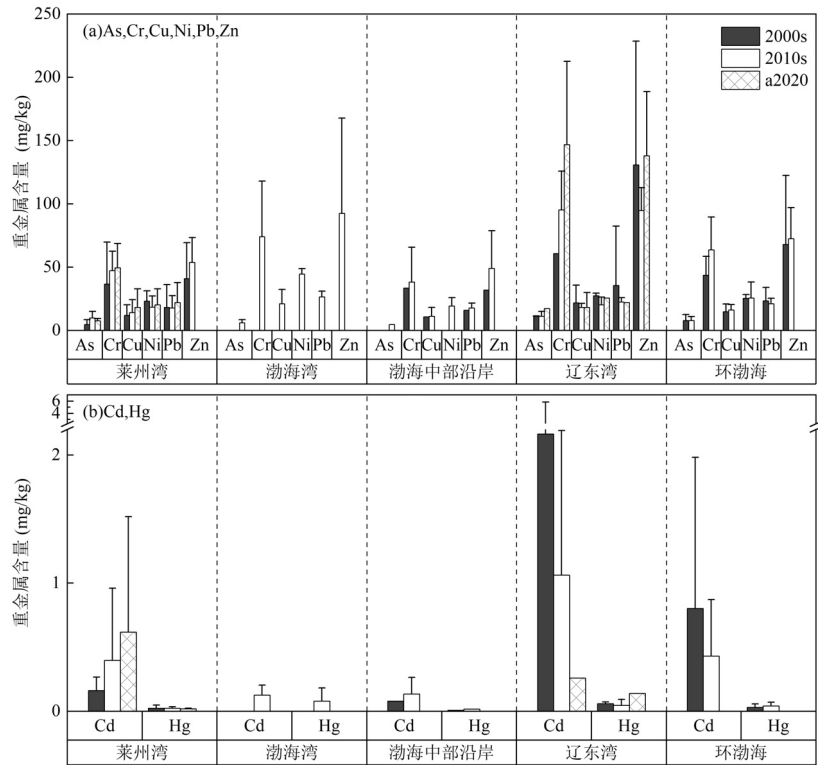


图 3 环渤海滨海湿地沉积物重金属含量均值时空变化

Fig.3 Spatiotemporal variation of the mean content of heavy metals in the coastal wetland's sediment around Bohai Sea

2010s 渤海中部沿岸滨海湿地所有重金属含量都较低,As、Cd、Cr、Zn 含量辽东湾最高,其次 As、Cd 含量莱州湾>渤海湾, Cr、Zn 含量渤海湾>莱州湾;Cu、Hg、Ni、Pb 含量渤海湾最高,其次辽东湾>莱州湾。

2.1.3 环渤海滨海湿地土壤重金属含量时空变化

分析 如图 4 所示,2000s~2010s 环渤海滨海湿地土壤 Cr、Zn 含量呈上升趋势, Cr 上升幅度较大,上升了 40.4%;As、Cu、Ni、Pb、Cd 含量下降了 9.1%~26.6%,下降幅度最大的是 Hg,下降了 77.9%。从 2010s~a2020,除 Cd 外各重金属含量都略有上升,Cd 含量略有下降。

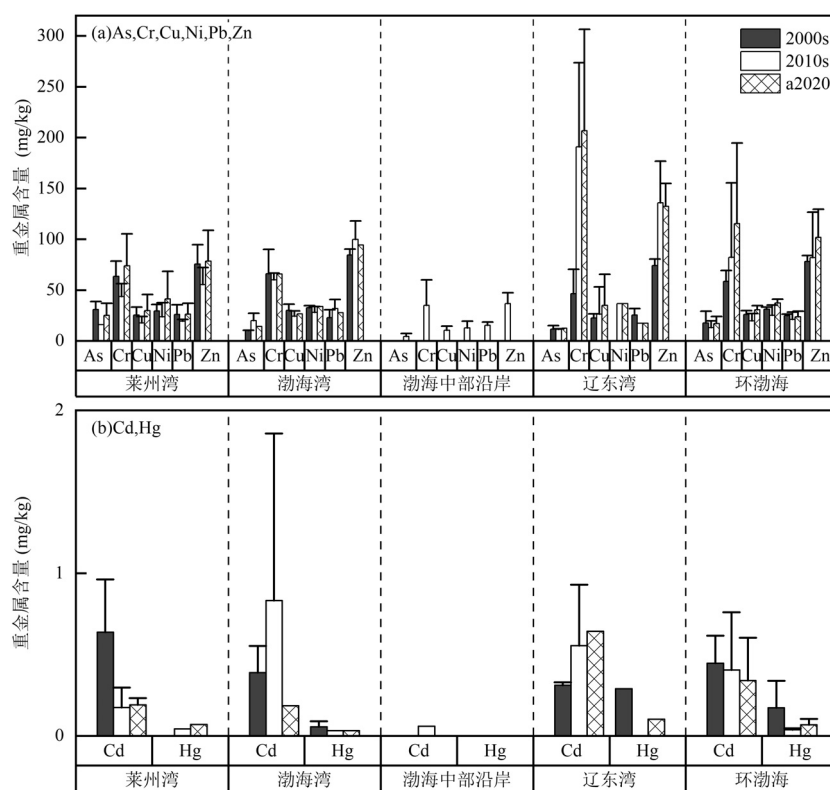


图 4 环渤海滨海湿地土壤重金属浓度均值时空变化

Fig.4 Spatiotemporal variation of the mean content of heavy metals in the coastal wetlands soil around Bohai Sea region

早期已有学者对黄河三角洲湿地土壤重金属进行研究,与近 20a 相比, As、Cd、Cu、Pb、Zn 含量是 1996 年的 2~3 倍。近 20a 来,①莱州湾滨海湿地土壤重金属含量整体呈下降趋势,Cr、Cu、Ni、Pb、Zn 含量下降了 20%~31%,As、Cd 含量下降幅度较大,分别为 48%和 72%。②渤海湾滨海湿地土壤 As、Pb、Zn、Cd 含量上升,其中 As、Cd 含量上升幅度达 98.5%和 113.7%,Cr、Cu、Ni、Hg 含量下降,最大下降幅度为 Hg 的 41.8%。③辽东湾沿岸滨海湿地土壤 Cr、Zn、Cd 含量大幅增长,分别增长了 310%、83%、77.7%,Cu 含量小幅增长 16.3%,Pb 含量小幅降低 31.5%,As 含量几乎无变化。与 2010s 相比,最新的 a2020 数据中①莱州湾滨海湿地重金属都呈现上升趋势,除 Cd 上升幅度不大外,其他重金属都上升了

36%~74%;②渤海湾滨海湿地 Cr、Cu、Ni 上升了 9%~21%,As、Pb、Zn 下降了 5.4%~29%,最大下降幅度 Cd 为 77%;③辽东湾滨海湿地重金属变化幅度较小,其中 Cu、Cd 上升幅度较大,分别为 32%、16%。

渤海中部沿岸滨海湿地 2010s 土壤重金属含量与沉积物含量类似,几乎都为最低水平,As、Pb、Cd 含量渤海湾最高,其中 As、Pb 莱州湾>辽东湾,而 Cd 与之相反;Cr、Cu、Ni、Zn 含量辽东湾>渤海湾>莱州湾。

2.2 环渤海滨海湿地重金属污染综合评价

环渤海滨海湿地重金属(As、Cd、Cr、Cu、Hg、Ni、Pb、Zn)2000~2020 年单因子指数均值分别为 0.70、2.7、0.79、0.57、2.6、0.63、0.59、0.83,其中 Cd、Hg 平均污染水平较高,其他重金属平均污染水

平较低,与前人对环渤海芦苇湿地沉积物、全域土壤重金属进行的污染评价结果相近^[10,12]。内梅罗指数均值如表 2 所示,各区域指数中有 3 个属于非污染,7 个属于轻度污染,3 个属于中度污染,13 个属于重度污染,显然整个环渤海滨海湿地重金属污染水平较高,其变化情况为:从 2000s~2010s,水体、沉积物重金属污染水平呈下降的趋势,其中沉积物重金属污染水平未离开重度范围,而土壤重金属污染水平由中度上升为重度。从环渤海各区域来看,重金属污染水

平最高的介质为 2000s 的渤海湾水体和辽东湾沉积物,污染水平变化情况为:①莱州湾滨海湿地水体、土壤在两个时段污染水平由重度转为轻度,而沉积物正好相反;②渤海湾滨海湿地水体在两个时段污染程度由重度变为中度,沉积物与之相反;③渤海中部沿岸滨海湿地沉积物由非污染变为轻度污染;④辽东湾滨海湿地水体、土壤在两个时段间污染水平上升,而沉积物虽然保持重度污染,但污染水平明显大幅下降,内梅罗指数由 22.5 下降到了 9.3。

表 2 环渤海滨海湿地重金属评价指数
Table 2 Evaluation index of heavy metals in coastal wetlands around the Bohai Sea region

地区	时段	P_i			内梅罗污染水平			PLI			PLI 污染负荷水平		
		水体	沉积物	土壤	水体	沉积物	土壤	水体	沉积物	土壤	水体	沉积物	土壤
莱州湾	2000s	3.6	1.8	3.0	重度	轻度	重度	0.22	0.67	1.54	清洁	清洁	中度
	2010s	1.3	3.9	1.0	轻度	重度	轻度	0.28	0.87	0.95	清洁	清洁	清洁
渤海湾	2000s	27	无数据	2.2	重度	无数据	中度	0.53	无数据	1.29	清洁	无数据	中度
	2010s	2.1	3.1	4.9	中度	重度	重度	0.58	1.14	1.45	清洁	中度	中度
渤海中部沿岸	2000s	无数据	0.95	无数据	无数据	非污染	无数据	无数据	0.48	无数据	无数据	清洁	无数据
	2010s	无数据	1.6	0.6	无数据	轻度	非污染	无数据	0.63	0.50	无数据	清洁	清洁
辽东湾	2000s	0.24	22	1.9	非污染	重度	轻度	0.07	1.70	1.50	清洁	中度	中度
	2010s	1.2	9.3	3.4	轻度	重度	重度	0.25	1.37	1.63	清洁	中度	中度
环渤海地区整体	2000s	7.0	13	2.6	重度	重度	中度	0.20	0.82	1.44	清洁	清洁	中度
	2010s	1.5	4.6	3.2	轻度	重度	重度	0.34	0.96	1.03	清洁	清洁	中度

环渤海滨海湿地的重金属平均污染负荷指数最高不超过 2,最多到达中度污染负荷的水平。各区域指数中有 16 个属于清洁,10 个属于中度污染负荷。可见环渤海地区滨海湿地重金属污染负荷水平①水体整体上较清洁,负荷较低;②沉积物主要在渤海湾及辽东湾出现了中度负荷的情况,而莱州湾、渤海中部沿岸、环渤海地区整体负荷较低;③土壤整体上都出现了中度负荷的情况,但 2010s 莱州湾和渤海中部沿岸污染负荷较低。④2000s~2010s 环渤海滨海湿地整体上水体和沉积物污染负荷上升但依然处于清洁水平,土壤污染负荷下降但依然处于中度污染负荷水平。

2.3 环渤海滨海湿地重金属来源分析

2.3.1 主成分分析 环渤海滨海湿地重金属数据分时段无法通过 KMO 与 Bartlett 球形检验,但全时段数据 KMO 检验值为 0.764>0.5,Bartlett 球形检验值显著性水平<0.05,可以通过检验,故以之进行最大方差旋转的主成分分析。结果如表 3 所示,其存在两个结果特征值大于 1,故可以提取 2 个主成分,主成分

1、2 分别可解释总变量方差的 41.7%、38.2%。累积方差贡献率达到了 79.9%。其中 As、Cr、Cu、Ni、Zn 在第 1 主成分上有较高的载荷,Cd、Hg、Pb 在第 2 主成分中存在较高载荷,其中 Zn 在两个成分上都有接近的载荷水平,在同一主成分上具有较高载荷的重金属元素可能具有同源性。

表 3 环渤海滨海湿地重金属含量主成分分析
Table 3 Principal component analysis of heavy metals in coastal wetlands around Bohai Sea region

重金属	载荷	
	F1	F2
As	0.89	-0.17
Cd	0.03	0.84
Cr	0.79	0.47
Cu	0.77	0.54
Hg	0.43	0.77
Ni	0.85	0.43
Pb	0.22	0.86
Zn	0.59	0.56
方差贡献率(%)	41.7	38.2
累积方差贡献率(%)	41.7	79.9

2.3.2 系统聚类分析 为了深入分析主成分分析的结果,找出环渤海滨海湿地重金属更详细的来源划分,对环渤海滨海湿地重金属含量进行了系统聚类分析.通过将不同的聚类方法进行结果生成,最终选择了与主成分分析相匹配的皮尔逊相关质心聚类方法,结果如图 5 所示.该种系统聚类分析组合将 8 种重金属分为了与主成分分析相同的 As、Cr、Cu、Ni、Zn 与 Hg、Pb、Cd 两大类,同时进行了更细微的划分:一大类中将 Cu、Ni 分为一类,Cr、Zn 分为一类、As 分为一类,另一大类中 Hg 与 Pb 关系更近,分为一小类的重金属可能有相似的性质或污染来源.

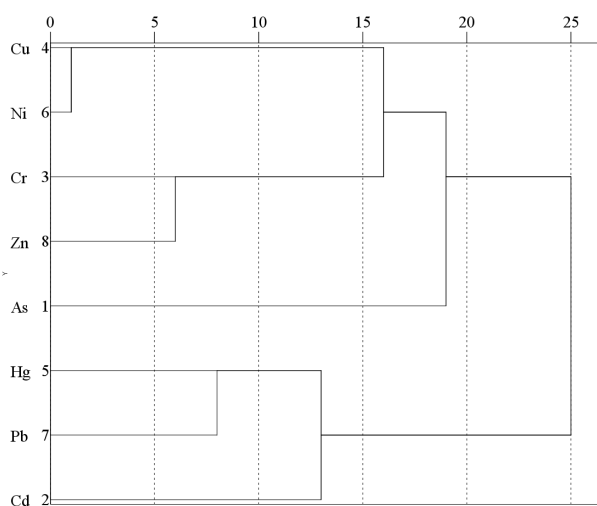


图 5 环渤海滨海湿地重金属含量系统聚类分析结果

Fig.5 The cluster analysis of heavy metals content in coastal wetlands around Bohai Sea

3 讨论

3.1 环渤海滨海湿地重金属时空变化的机理研究

上文分析的结果表明环渤海滨海湿地重金属在时空上的变化对于不同介质、不同种类重金属都有所区别,存在浓度或含量(以下简称含量)上升、下降及相近的情况,出现这种情况是因为多种影响因素的制约.影响因素按影响方式分为影响重金属迁移转化的因素和影响重金属来源的因素.前者影响重金属的迁移转化存在直接和间接两种方式,大多数研究者使用相关分析对其进行研究^[34-38],后者则被研究者们使用案例讨论等方式进行探究^[39-42].本研究首先讨论影响重金属迁移转化的因素,而对影响重金属来源的因

素与下文对重金属来源一起讨论.

多数研究表明,影响重金属迁移转化的直接因素有:固体颗粒物对重金属离子的吸附、吸附剂本身的组成和性质、重金属本身的化学性质和存在状态等^[6,32,43].水体中主要有水流量、盐度、pH 值、有机碳含量等因素^[6],沉积物中主要有有机碳含量、沉积物粒度、铁和锰的含量等因素^[35,44],土壤中主要有有机碳含量、有机氮含量、盐分、pH 值、土壤的物理性状等因素^[43,45-47].而间接因素主要通过影响上述直接因素来影响重金属迁移转化,比如降水变化对水流量有明显影响;微地形影响水位差与植被盖度,二者又影响土壤环境中有机质含量、土壤物理性状等因素^[48].

无论是直接或间接影响重金属迁移转化的因素在时空上都会有所变化,但在本研究的尺度上一部分影响因素随时间变化不大,而随空间变化较大.例如,土壤中有机质含量在辽东湾、渤海湾、渤海中部沿岸地区的含量较高,在 0~30cm 的土层中可达 10~20g/kg,而莱州湾滨海地区含量较低,约为 6~10kg^[49],有机质含量与除碳酸盐结合态的大部分重金属含量呈正相关^[50],因此莱州湾滨海湿地受有机质影响的情况比其他区域弱,其受有机质含量影响的重金属含量会比其他区域更少.另一个例子是沉积物粒度,其在环渤海滨海湿地的变化主要体现在海岸类型的变化,在莱州湾西南岸、渤海湾、辽东湾北岸的海岸沉积物大多都存在黏粒,体现为(粉砂)淤泥质海岸^[51],而渤海中部沿岸、莱州湾东南岸、辽东湾东西两岸部分地区几乎不存在黏粒,体现为以砂砾为主的砂质海岸^[52].黏粒、粉粒、砂砾的粒径由小到大,小颗粒沉积物具有更大的比表面积,有更高的表面活性能力适合重金属吸附,因此重金属与沉积物粒径体现为负相关^[53],渤海中部沿岸整体较低的重金属含量水平结合其砂质海岸沉积物粒径较大的情形正好照应了这种相关性.

各种因素耦合后还会导致其在互相影响的同时共同影响重金属含量,体现为不同研究中单因素与重金属含量存在不同的相关性.该情况在环渤海滨海湿地研究中的发生不在少数,例如:黄河三角洲湿地与辽河三角洲湿地的研究中水体悬浮颗粒物与悬浮态重金属浓度相关性相反^[34-35];季节变化会导致大辽河口溶解态重金属与盐度相关度变化^[54];

黄河三角洲湿地沉积物中对于 Hg 含量是否受到有机质影响在不同研究中得出了相反结论^[6,55];黄河三角洲湿地沉积物研究中 Cr、Cd 含量明显没有受到有机质影响,重金属含量与沉积物粒度相关,而昌黎黄金海岸沉积物研究中 Cr 与有机质显著相关,重金属与沉积物粒径相关性不显著^[6,55-56];渤海西海岸潮上带滨海湿地的土壤有机质只有达到一定程度才会影响土壤中的重金属积累^[36]。综上所述,环渤海滨海湿地影响重金属迁移转化的因素多种多样、互相耦合,进而形成了研究时段内复杂的重金属时空格局。

3.2 环渤海滨海湿地重金属来源探讨

环渤海滨海湿地八种重金属除常见的成土母质等自然来源外,潜在人为来源多种多样,包括含重金属垃圾掩埋和焚烧、采矿与冶金、金属盐生产、实验室废弃物、化石燃料的燃烧等常见共同来源^[57-58];也包括农药化肥、有机化工、纺织、印刷、造纸、玻璃制造、制革、油漆制造、木材防腐等化工轻工业来源,其主要带来除 Pb 外的重金属^[59-65];还包括金属加工、机械制造、电镀、工程施工、电池工业、半导体工业等工程与重工业来源,其主要带来除 As 外的重金属^[66-72];此外石油开采是 Cu、Ni 的重要来源之一,同时存在陆源与海源污染情况^[73]。除上述潜在来源外,水体、沉积物、土壤、大气、生物等重金属汇会因为污水灌溉、大气沉降、底泥释放、动植物残体腐殖化等原因成为重金属污染的二次来源。

通过结合来源分析的结果与潜在来源可知:在第一主成分中 Cu、Ni 被分为一类,它们是石油中重要的重金属元素^[73],其主要人为来源为石油污染与石油的使用。Cr、Zn 被分为一类,都为亲铜重金属^[73],共同主要人为来源为工业废水的排放。As 单独为一类,其部分来自与前两类重金属相似的工业污染,除此之外还来自农业污染^[74]。第一主成分的重金属平均污染水平从单因子指数上来看都未超过 1,其指数在研究区内不均匀分布,结合环渤海地区重工业比例高于轻工业的情况,将其总结为在环渤海滨海湿地中受人为来源影响较低的重金属组合,主要来源为自然来源、与重工业联系较低的化工轻工业(染料油漆、木材纸张等)、部分重工业。Zn 在两个主成分中载荷接近相同,将其与第二主成分一起讨论。第二

主成分中 Hg、Pb、Cd、Zn 均有在沉积物、土壤中污染水平较高的情况,且均来自工业废水、工程工业机械磨损等来源的重金属,故将其总结为在环渤海滨海湿地中受人为来源影响较大的重金属组合,主要来自重工业、与重工业及工程联系较高的轻工业(水泥、电池、机械维护用化工产品等)。

影响环渤海滨海湿地重金属来源的因素多种多样,包括政策法规、经济、产业集聚、技术革新、重大事故等。政策法规上,2000 年前后国家在第四~六次全国环境保护会议后修订并出台了《水污染防治法》、《清洁生产促进法》等一系列法规,控制了当时高度发展的工业带来的废水排放,间接影响了 2000s 重金属污染的增长幅度。2010 年前后对早期法规的修订,颁布《中华人民共和国环境保护法》等新法规进一步对废水排放进行了规制^[40],体现为 2010s 重金属污染水平的下降。经济方面有研究表明经济发展会导致重金属来源减少^[75],该结论与 2000s 年后环渤海滨海湿地重金属综合污染水平整体呈下降趋势相符。产业集聚上,2000s 时渤海湾、辽东湾、渤海中部沿海地区产业结构优化对工业废水的减排效应较弱,而莱州湾地区减排效应增强,2010s 时渤海湾、辽东湾、渤海中部沿海地区产业结构优化对工业废水的减排效应有所增强,但莱州湾减排效应减弱^[39]。技术革新体现在对含重金属废水处理方式的进步上,传统的化学沉淀法、化学还原法、吸附法、溶剂萃取法、膜分离法陆续从实验室应用到工业生产中,从单一方法到使用多种方法对重金属废水进行处理,使排放的废水中重金属含量降低^[76]。在诸多事故中,对环渤海滨海湿地影响较大的事故为 2011 年康菲公司所述蓬莱 19-3 油田发生的大范围溢油事故,原油中的 Ni 和 Pb 等有害重金属因此首先进入渤海湾滨海湿地中,并随石油污染的迁移影响环渤海其他滨海湿地^[77]。

3.3 中国三大经济圈滨海湿地重金属污染水平的比较

为充分了解环渤海滨海湿地污染水平的高低,将其 2010s 数据及土壤介质存在的 a2020 数据与前人在环渤海的重金属研究数据、长三角、珠三角滨海湿地数据进行比较,结果见表 4。在中国三大经济圈滨海湿地的水体中,环渤海滨海湿地、长江口滨海湿地水体各重金属单因子指数均未超过 1,代表其平

均含量未超过标准值,珠江口滨海湿地水体单因子指数中 Hg 超标极为严重,Pb 存在一定超标现象.环渤海滨海湿地水体内梅罗指数处于 1~2 之间,体现为轻度污染,长江口滨海湿地水体内梅罗指数小于 1,属非污染水体,而珠江口滨海湿地水体内梅罗指

数高达 11.97,处于十分严重的污染水平.三大经济区滨海湿地水体的 PLI 指数都未超过 1,说明它们的重金属污染负荷指数都处于清洁范围内,环渤海滨海湿地水体的重金属污染负荷指数略高于其他两大经济区.

表 4 中国三大经济圈滨海湿地重金属污染水平比较
Table 4 Comparison of heavy metal pollution levels in coastal wetlands of three economic circles in China

滨海湿地	A_i								P_i	PLI	参考文献
	As	Cd	Cr	Cu	Hg	Ni	Pb	Zn			
环渤海滨海湿地水体,2010s	0.14	0.91	0.94	0.67	0.40	/	0.49	0.26	1.53	0.34	本研究
长江口滨海湿地水体 ^a	0.05	0.05	0.16	0.33	0.14	/	0.05	0.11	0.35	0.08	[78]
珠江口滨海湿地水体 ^b	0.27	0.32	0.00	0.06	11.8	/	1.26	0.00	11.9	0.14	[79]
环渤海滨海湿地沉积物,2010s	0.78	4.31	0.92	0.69	1.07	0.89	0.92	0.94	4.49	0.96	本研究
环渤海芦苇湿地沉积物,2022	/	17.4	1.29	1.36	/	1.73	1.26	1.55	17.8	2.17	[12]
环渤海湿地沉积物,2017	/	3.6	/	0.15	/	/	0.34	0.71	3.79	0.61	[80]
环渤海潮间带沉积物,2011	1.11	4.5	0.46	0.63	/	/	0.95	0.95	4.72	1.04	[81]
长江口滨海湿地沉积物 ^c	1.27	8.36	1.51	0.64	/	/	3.29	1.19	8.79	1.71	[82]
珠江口滨海湿地沉积物 ^d	1.15	8.70	0.40	1.73	0.77	/	0.71	1.42	9.25	1.10	[83]
环渤海滨海湿地土壤,2010s	0.86	2.03	0.91	0.56	0.25	0.63	0.60	0.82	2.52	1.44	本研究
环渤海滨海湿地土壤,a2020	1.14	1.7	1.28	0.86	0.45	0.92	0.67	1.01	2.20	1.46	本研究
环渤海地区土壤统计值	0.61	2	0.63	0.79	0.66	0.63	0.71	0.71	2.17	1.29	[10]
长江口滨海湿地土壤	/	0.58	0.61	1.14	/	1.73	1.77	1.56	2.38 ^e	1.32 ^e	[84]
珠江口滨海湿地土壤	/	15.6	1.13	2.04	/	/	1.62	1.97	16.2 ^e	2.76 ^d	[85]

注:/为无数据或无标准值而无法计算指数,所有环渤海数据由表1标准计算;a采用地表水I类标准值计算;b采用海水II类标准值计算;c采用上海市土壤背景值计算;d采用珠三角土壤背景值计算;e采用土壤I类标准值计算.

沉积物研究中,环渤海滨海湿地在 2010s 存在相近的污染水平,需要注意在最新的 2022 年研究中出现多数重金属超标且内梅罗指数极高的情况.此外,环渤海滨海湿地沉积物 Hg 含量高于珠江口滨海湿地且超过标准值,Cd 含量在三大经济圈的滨海湿地沉积物中都存在严重超标的现象,但环渤海滨海湿地沉积物 Cd 污染水平低于其他湿地.三大经济圈滨海湿地沉积物内梅罗指数都大于 3,处于严重污染水平,但环渤海滨海湿地沉积物的综合污染水平明显比其他两个经济圈的滨海湿地低.三大经济区滨海湿地沉积物 PLI 指数都在 1 左右或超过 1,说明三大经济区滨海湿地的沉积物重金属污染负荷基本为中等负荷,且长江口重金属污染负荷明显大于珠江口及环渤海.其中环渤海地区滨海湿地整体沉积物 PLI 指数都小于 1,但芦苇湿地、潮间带沉积物大于 1,说明这两种湿地污染负荷更大.

土壤研究中,环渤海滨海湿地 2010s 与环渤海整区统计的重金属含量相差不大;环渤海滨海湿地土壤从 2010s~a2020 综合污染水平、Cd 污染水平下降,

但 As、Cr、Zn 都由未超标变为略微超过标准值.环渤海 a2020、长江口、珠江口滨海湿地土壤较多种重金属超过标准值,其中超过标准值最多的是珠江口滨海湿地土壤的 Cd,其指数高达 15.6,是环渤海的近 8 倍.环渤海 2010s 和长江口滨海湿地土壤内梅罗指数在 2~3,属中度污染,而珠江口滨海湿地土壤的内梅罗指数高达 16.2,存在非常严重的污染.三大经济区滨海湿地土壤 PLI 指数都在 1 以上,属中度污染负荷,珠江口甚至接近 3,达到了强污染的负荷水平.

4 结论

4.1 2000~2020 年环渤海滨海湿地水体 As、Pb、Cd、Cu 浓度上升,Cr、Hg、Zn 浓度下降;沉积物 As、Ni 含量变化较小,Cr、Cu、Zn、Hg 含量上升,Pb、Cd 含量下降;土壤 Cr、Zn 含量上升,As、Cu、Ni、Pb、Cd、Hg 含量下降,三种湿地环境介质表现出差异性变化.a2020 与 2010s 相比,湿地沉积物重金属中莱州湾滨海湿地 As 含量下降,Cr、Cu、Ni、Pb 含量上升,辽东湾滨海湿地 As、Cr、Ni、Zn、Hg 含量上

升,Cd 含量下降;湿地土壤从 2010s~2020,除 Cd 外含量都略有上升。

4.2 环渤海滨海湿地 2010s 水体 As、Hg、Cu 浓度 辽东湾最高,Cr、Pb 浓度渤海湾最高,Cd、Zn 浓度莱州湾最高;沉积物渤海中部沿岸所有重金属含量最低,As、Cr、Zn、Cd 含量辽东湾最高,Cu、Hg、Ni、Pb 含量渤海湾最高;土壤在渤海中部沿岸所有重金属含量最低,As、Pb、Cd 含量渤海湾最高,Cr、Cu、Ni、Zn 含量辽东湾最高。

4.3 环渤海滨海湿地重金属(As、Cd、Cr、Cu、Hg、Ni、Pb、Zn)2000~2020 年单因子指数均值分别为 0.7、2.67、0.79、0.57、2.57、0.63、0.59、0.83,其中 Cd、Hg 平均污染水平较高。内梅罗指数均值体现环渤海滨海湿地重金属综合污染水平较高,其中 2000s 的渤海湾水环境和辽东湾沉积环境污染水平最高。PLI 指数体现环渤海滨海湿地沉积物、土壤存在一定的重金属污染负荷,其中土壤负荷相比水体和沉积物较高。虽然环渤海滨海湿地水体 PLI 指数略高于其他两大经济圈,但未达到中污染负荷,故认为内梅罗指数与 PLI 指数都表明环渤海滨海湿地综合重金属污染水平在三大经济圈中相对较低。

4.4 环渤海滨海湿地重金属中 Cu、Ni、Cr、Zn、As 主要来源于自然来源及少量人为来源。Hg、Pb、Cd 来自对环渤海滨海湿地影响较大的人为来源,主要为重工业、与重工业联系较高的轻工业。

5 展望

5.1 近 20a 来环渤海滨海湿地研究更偏向于对黄河三角洲湿地和辽河三角洲湿地进行研究,其他重要滨海湿地研究较少。其他大部分重要滨海湿地近年来已经被有关部门确立为湿地保护区,且《中华人民共和国湿地保护法》自 2022 年 6 月 1 日已开始施行,这些被国家及政府重视的新保护区应该被进行广泛研究,达到研究区在环渤海地区“百花齐放”的效果。

5.2 需要重点关注环渤海滨海湿地 Cd 与 Hg 污染问题,这两类污染主要体现在沉积环境中,Cd 还体现于土壤环境中。应该注意减少来自重工业及相关产业的污染排放、废水灌溉,继续发展对污染物的处理技术,对已受污染的滨海湿地进行修复。

5.3 未来的研究可以重点关注重工业、化工污染排

放对环渤海滨海湿地的影响,例如可以利用废水进行污染模拟,利用已有数据进行重金属污染物迁移转化模拟,利用同位素等方式对重金属污染物在环渤海滨海湿地形态变化、迁移转化路径进行探究。还可以从地球关键带角度入手,滨海湿地包含关键带大部分内容,通过对重金属在地球关键带各部分的循环可以进一步了解重金属的迁移转化机理。上述研究都可以为环渤海滨海湿地重金属污染的治理提供基础资料。

参考文献:

- [1] 杨永兴.国际湿地科学研究的主要特点、进展与展望 [J]. 地理科学进展, 2002,(2):111-120.
Yang Y X. Main characteristics, progress and prospect of international wetland science Research [J]. Progress in Geography, 2002,(2):111-120.
- [2] 张永泽,王 烜.自然湿地生态恢复研究综述 [J]. 生态学报, 2001,(2):309-314.
Zhang Y Z, Wang X. A review of ecological restoration studies on natural wetland [J]. Acta Ecologica Sinica, 2001,(2):309-314.
- [3] 徐东霞,章光新.人类活动对中国滨海湿地的影响及其保护对策 [J]. 湿地科学, 2007,(3):282-288.
Xu D X, Zhang G X. Impact of human activities on coastal wetlands in China [J]. Wetland Science, 2007,(3):282-288.
- [4] 张晓龙,李培英,李 萍,等.中国滨海湿地研究现状与展望 [J]. 海洋科学进展, 2005,(1):87-95.
Zhang X L, Li P Y, Li P, et al. Present conditions and prospects of study on coastal wetlands in China [J]. Advances in Marine Science, 2005,(1):87-95.
- [5] 刘 峰,李秀启,董贯仓,等.黄河口滨海湿地水质污染物现状研究 [J]. 中国环境科学, 2011,31(10):1705-1710.
Liu F, Li X Q, Dong G C, et al. Water pollution of Yellow River estuary coastal wetland [J]. China Environmental Science, 2011,31(10):1705-1710.
- [6] 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 [J]. 中国环境科学, 2012,32(9):1625-1631.
Liu S M, Yao Q Z, Liu Y L, et al. Distribution and influence factors of heavy metals in surface sediments of the Yellow River Estuary wetland [J]. China Environmental Science, 2012,32(9):1625-1631.
- [7] Ma Y Q, Qin Y W, Zheng B H, et al. Seasonal variation of enrichment, accumulation and sources of heavy metals in suspended particulate matter and surface sediments in the Daliao river and Daliao river estuary, Northeast China [J]. Environmental Earth Sciences, 2015,73:5107-5117.
- [8] 徐争启,倪师军,虞先国,等.潜在生态危害指数法评价中重金属毒性系数计算 [J]. 环境科学与技术, 2008,(2):112-115.
Xu Z Q, Ni S J, Tou X G, et al. Calculation of heavy metals' toxicity coefficient in the evaluation of potential ecological risk index [J]. Environmental Science & Technology, 2008,(2):112-115.
- [9] Rai P K. Heavy metal pollution in aquatic ecosystems and its phytoremediation using wetland plants: an ecosustainable approach [J]. International Journal of Phytoremediation, 2008,10(2):133-160.

- [10] 葛晓颖,欧阳竹,杨林生,等.环渤海地区土壤重金属富集状况及来源分析[J].环境科学学报,2019,39(6):1979-1988.
Ge X Y, Ouyang Z, Yang L S, et al. Concentration, risk assessment and sources of heavy metals in soil around Bohai Rim [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2019,39(6):1979-1988.
- [11] Gao X, Chen C T A. Heavy metal pollution status in surface sediments of the coastal Bohai Bay [J]. *Water Research*, 2012,46(6):1901-1911.
- [12] 岳梦宇,任雨璇,徐刚,等.环渤海芦苇湿地沉积物重金属污染评价[J].环境科学与技术,2022,45(9):160-168.
Yue M Y, Ren Y X, Xu G, et al. Assessment of heavy metal pollution in reed wetland sediments around Bohai Sea [J]. *Environmental Science & Technology*, 2022,45(9):160-168.
- [13] 马振兴.天津滨海湿地生态系统及其资源特征[J].海洋通报,1998,(2):72-77.
Ma Z X. Coastal wetland ecosystem in Tianjin and its resource characteristics [J]. *Marine Science Bulletin*, 1998,(2):72-77.
- [14] 中华人民共和国国家统计局.中国统计年鉴[M].北京:中国统计出版社,2022:16-37.
National Bureau of Statistics of the People's Republic of China. *China Statistical Yearbook* [M]. Beijing: China Statistics Press, 2022:16-37.
- [15] 郭士康.产业集聚、人口规模对环境污染影响的时空异质性研究[D].无锡:江南大学,2021.
Guo S K. Research on Spatial and temporal heterogeneity of the effects of Industrial agglomeration and Population size on Environmental pollution [D]. Wuxi: Jiangnan University, 2021.
- [16] 何书金,李秀彬,刘盛和.环渤海地区滩涂资源特点与开发利用模式[J].地理科学进展,2002,(1):25-34.
He S J, Li X B, Liu S H. Beach resource characteristics and development model in Bohai Rim [J]. *Progress in Geography*, 2002,(1):25-34.
- [17] 张耀光,关伟,李春平,等.渤海海洋资源的开发与持续利用[J].自然资源学报,2002,(6):768-775.
Zhang Y G, Guan W, Li C P, et al. A study on the exploitation and the sustainable utilization of marine resources in the Bohai Sea [J]. *Journal of Natural Resources*, 2002,(6):768-775.
- [18] 刘光鼎,郝天珩,祝靛.环渤海地区油气资源探查的思考[J].地球物理学进展,2002,(4):559-563.
Liu G D, Hao T Y, Zhu L Y. Review on the exploration of oil and gas resources around the Bohai Region [J]. *Progress in Geophysics*, 2002,(4):559-563.
- [19] 魏帆.1980~2017年围填海活动影响下的环渤海滨海湿地演变特征[D].聊城:聊城大学,2018.
Wei F. Temporal and spatial dynamic evolution of coastal wetland under the action of sea reclamation in Bohai Rim during 1980~2017 [D]. Liaocheng: Liaocheng University, 2018.
- [20] 邵晓龙,邢美楠,王金梅,等.退塘还湿生态修复效果评估——以天津七里海湿地为例[J].环境工程学报,2022,16(9):3102-3112.
Shao X L, Xing M N, Wang J M, et al. Evaluation on the ecological restoration effect of returning fishpond to wetland: A case study in Qilihai wetland, Tianjin, China [J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2022,16(9):3102-3112.
- [21] 中华人民共和国国家统计局.中国环境统计年鉴[M].北京:中国统计出版社,2021:81-92.
National Bureau of Statistics of the People's Republic of China. *China environmental statistics yearbook* [M]. Beijing: China Statistics Press, 2021:81-92.
- [22] 周侃,樊杰,刘汉初.环渤海地区水污染物排放的时空格局及其驱动因素[J].地理科学进展,2017,36(2):171-181.
Zhou K, Fan J, Liu H C. Spatiotemporal patterns and driving forces of water pollutant discharge in the Bohai Rim Region [J]. *Progress in Geography*, 2017,36(2):171-181.
- [23] 曾永,樊引琴,王丽伟,等.水质模糊综合评价法与单因子指数评价法比较[J].人民黄河,2007,(2):45,65.
Zeng Y, Fan Y Q, Wang L W, et al. Comparison of water quality fuzzy comprehensive evaluation method and single factor index evaluation method [J]. *Yellow River*, 2007,(2):45,65.
- [24] GB3838-2002 地表水环境质量标准[S].
GB3838-2002 Environmental quality standard for surface water [S].
- [25] GB15618-1995 土壤环境质量标准[S].
GB15618-1995 Soil environmental quality standard [S].
- [26] Kowalska J, Mazurek R, Gąsiorek M. Soil pollution indices conditioned by medieval metallurgical activity—A case study from Krakow (Poland) [J]. *Environmental Pollution*, 2016,218:1023-1036.
- [27] 郭笑笑,刘丛强,朱兆洲,等.土壤重金属污染评价方法[J].生态学报,2011,30(5):889-896.
Guo X X, Liu C Q, Zhu Z Z, et al. Evaluation methods for soil heavy metals contamination: A review. [J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2011,30(5):889-896.
- [28] 陈明,蔡青云,徐慧,等.水体沉积物重金属污染风险评价研究进展[J].生态环境学报,2015,24(6):1069-1074.
Chen M, Cai Q Y, Xu H, et al. Research progress of risk assessment of heavy metals pollution in water body sediments [J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2015,24(6):1069-1074.
- [29] Tomlinson D, Wilson J, Harris C, et al. Problems in the assessment of heavy-metal levels in estuaries and the formation of a pollution index [J]. *Helgoländer Meeresuntersuchungen*, 1980,33:566-575.
- [30] Joksimović D, Perošević A, Castelli A, et al. Assessment of heavy metal pollution in surface sediments of the Montenegrin coast: a 10-year review [J]. *Journal of Soils and Sediments*, 2020,20:2598-2607.
- [31] Abdullah M, Manap N, Saat A, et al. Assessment of surface water metal pollution based on pollution load index (pli) supported by multivariate statistical analysis [J]. *Pollution Research*, 2016,35(1):29-35.
- [32] Chen Y, Song Q, Pan L, et al. Trace metals, organic carbon and nutrients in the Beidagang Wetland Nature Reserve, northern China [EB/OL]. <https://doi.org/10.1371/journal.pone.0204812> 2018-10-02/2023-03-26.
- [33] Li Y, Zhang H, Chen X, et al. Distribution of heavy metals in soils of the Yellow River Delta: concentrations in different soil horizons and source identification [J]. *Journal of Soils & Sediments*, 2014,14:1158-1168.
- [34] 张雷,秦延文,马迎群,等.大辽河感潮段及其近海河口重金属空间分布及污染评价[J].环境科学,2014,35(9):3336-3345.
Zhang L, Qin Y W, Ma Y Q, et al. Spatial distribution and pollution assessment of heavy metals in the tidal reach and its adjacent sea estuary of Daliaohe Area, China [J]. *Environmental Science*, 2014, 35(9):3336-3345.
- [35] 张晓晓.黄河下游水体及河口湿地沉积物中重金属的变化特征研究[D].青岛:中国海洋大学,2010.
Zhang X X. The variance characteristic of heavy metals in the lower reaches of the Huanghe and sediments of estuarine wetland [D].

- Qingdao: Ocean University of China, 2010.
- [36] 郑义. 渤海西海岸潮上带湿地重金属积累性风险及溯源分析 [D]. 天津: 天津理工大学, 2018.
- Zheng Y. The accumulation risk and origin for heavy metals in the supratidal wetlands on the west coast of Bohai Sea [D]. Tianjin: Tianjin University of Science and Technology, 2018.
- [37] Bai J, Xiao R, Zhang K, et al. Arsenic and heavy metal pollution in wetland soils from tidal freshwater and salt marshes before and after the flow-sediment regulation regime in the Yellow River Delta, China [J]. *Journal of Hydrology*, 2012,450:244–253.
- [38] Lin C, He M, Liu S, et al. Contents, enrichment, toxicity and baselines of trace elements in the estuarine and coastal sediments of the Daliao River System, China [J]. *Geochemical Journal*, 2012,46(5):371–380.
- [39] 蒋岱位. 中国产业结构变动对污染排放与区域生态效率的影响研究 [D]. 兰州: 兰州大学, 2022.
- Jiang D W. Study on the impact of industrial structure changes on pollution emission and regional eco-efficiency in China [D]. Lanzhou: Lanzhou University, 2022.
- [40] 张国凤. 中国环境规制对环境污染的影响研究 [D]. 西安: 西北大学, 2020.
- Zhang G F. Impact of industrial structure change on pollution emission and regional eco-efficiency in China [D]. Xi'an: Northwestern University, 2020.
- [41] Xie Z, Zhao G, Sun Z, et al. Comparison of arsenic and heavy metals contamination between existing wetlands and wetlands created by river diversion in the Yellow River estuary, China [J]. *Environmental Earth Sciences*, 2014,72:1667–1681.
- [42] Zhou B, Xing M, Liao H, et al. Assessing heavy metal pollution of the largest nature reserve in Tianjin City, China [J]. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 2022,109(5):684–690.
- [43] 于君宝, 董洪芳, 王慧彬, 等. 黄河三角洲新生湿地土壤金属元素空间分布特征 [J]. *湿地科学*, 2011,9(4):297–304.
- Yu J B, Dong H F, Wang H B, et al. Spatial distribution characteristics of metals in new-born coastal wetlands in the Yellow River Delta [J]. *Wetland Science*, 2011,9(4):297–304.
- [44] Li C, Sun M, Song C, et al. Assessment of heavy metal contamination in the sediments of the Shuangtaizi estuary using multivariate statistical techniques [J]. *Soil and Sediment Contamination: An International Journal*, 2017,26(1):45–58.
- [45] Xie Z, Sun Z, Zhang H, et al. Contamination assessment of arsenic and heavy metals in a typical abandoned estuary wetland—a case study of the Yellow River Delta Natural Reserve [J]. *Environmental monitoring and assessment*, 2014,186:7211–7232.
- [46] Yao X, Xiao R, Ma Z, et al. Distribution and contamination assessment of heavy metals in soils from tidal flat, oil exploitation zone and restored wetland in the Yellow River Estuary [J]. *Wetlands*, 2016,36:153–165.
- [47] Yu Y, Ling Y, Li Y, et al. Distribution and influencing factors of metals in surface soil from the Yellow River Delta, China [J]. *Land*, 2022,11(4):523.
- [48] Liu R, Zhang Y, Wang Y, et al. Vertical distribution of mercury and MeHg in Nandagang and Beidagang wetlands: Influence of microtopography [J]. *Physics and Chemistry of The Earth*, 2018,103:45–50.
- [49] 吕真真, 刘广明, 杨劲松, 等. 环渤海沿海区域土壤养分空间变异及分布格局 [J]. *土壤学报*, 2014,51(5):944–952.
- Lu Z Z, Liu G M, Yang J S, et al. Spatial variability and distribution pattern of soil nutrients in Bohai coastal area [J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2014,51(5):944–952.
- [50] 韩春梅, 王林山, 巩宗强, 等. 土壤中重金属形态分析及其环境学意义 [J]. *生态学杂志*, 2005,(12):1499–1502.
- Han C M, Wang L S, Gong Z Q, et al. Chemical forms of soil heavy metals and their environmental significance [J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2005,(12):1499–1502.
- [51] 杨世伦. 中国淤泥质海岸的发育特点 [J]. *华东师范大学学报(自然科学版)*, 1990,(4):85–91.
- Yang S L. The developmental characteristics of muddy coasts in China [J]. *Journal of East China Normal University (Natural Science Edition)*, 1990,(4):85–91.
- [52] 李震, 雷怀彦. 中国砂质海岸分布特征与存在问题 [J]. *海洋地质动态*, 2006,(6):1–4,39.
- Li Z, Lei H Y. Distribution and existing problems of sandy coast in China [J]. *Marine Geology Letters*, 2006,(6):1–4,39.
- [53] 赵玉庭, 孙珊, 由丽萍, 等. 莱州湾沉积物粒度与重金属分布特征 [J]. *海洋科学*, 2021,45(3):43–50.
- Zhao Y T, Sun S, You L P, et al. Distribution characteristics of grain size and heavy metals of sediments in Laizhou Bay [J]. *Marine Science*, 2021,45(3):43–50.
- [54] 王小静, 张帅, 简慧敏, 等. 大辽河口溶解态重金属的变化特征及影响因素研究 [J]. *中国海洋大学学报(自然科学版)*, 2011,41(10):79–86.
- Wang X J, Zhang S, Jian H M, et al. Variation characteristics of dissolved heavy metals in the Daliaohe Estuary [J]. *Journal of Ocean University of China (Natural Science Edition)*, 2011,41(10):79–86.
- [55] 缪雄谊. 黄河三角洲滨海湿地表层土壤矿物与地球化学特征研究 [D]. 青岛: 中国海洋大学, 2014.
- Miao X Y. The geochemical and mineral research of surface soil of coastal wetland in Yellow River Delta [D]. Qingdao: Ocean University of China, 2014.
- [56] 乔志芳, 刘东阳, 郭晓楠, 等. 昌黎黄金海岸保护区表层海域沉积物中重金属的赋存形态特征及生态风险评价 [J]. *海洋湖沼通报*, 2021,(1):101–108.
- Qiao Z F, Liu D Y, Guo X N, et al. Speciation characteristics and ecological risk assessment of heavy metals in the surface sea sediments of the Changli Gold Coast Reserve, 2021,(1):101–108.
- [57] Duruibe J O, Ogwuegbu M O C, Ekwurugwu J N. Heavy metal pollution and human biotoxic effects [J]. *International Journal of Physical Sciences*, 2007,2(5):112–118.
- [58] Cheng S. Heavy metal pollution in China: Origin, pattern and control [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2003,10:192–198.
- [59] 程嘉熠, 王晓萌, 杨正先, 等. 双台子河口沉积物重金属溯源及生态风险评估 [J]. *中国环境科学*, 2021,41(3):1345–1353.
- Cheng J Y, Wang X M, Yang Z X, et al. Sources and assessment of heavy metals in sediments in Shuangtaizi estuary [J]. *Chinese Environmental Science*, 2021,41(3):1345–1353.
- [60] 雷停, 孙传敏. 重金属镍的土壤污染及迁移转化 [J]. *地球科学进展*, 2012,27(S1):359–361.
- Lei T, Sun C M. Soil contamination and transport of heavy metal nickel [J]. *Advances in Earth Science*, 2012,27(S1):359–361.
- [61] 李婧, 周艳文, 陈森, 等. 我国土壤镉污染现状、危害及其治理方法综述 [J]. *安徽农学通报*, 2015,21(24):104–107.
- Li J, Zhou Y W, Chen S, et al. An overview of the current situation of

- soil cadmium pollution, its hazards and its treatment methods in China [J]. *Anhui Agricultural Science Bulletin*, 2015,21(24):104-107.
- [62] 汤克勇.铬的污染源及其危害 [J]. *皮革科学与工程*, 1997,(1):33-37,48.
- Tang K Y. Pollution sources of chromium and its hazards [J]. *Leather Science and Engineering*, 1997,(1):33-37,48.
- [63] 王 萌,李杉杉,李晓越,等.我国土壤中铜的污染现状与修复研究进展 [J]. *地学前缘*, 2018,25(5):305-313.
- Wang M, Li S S, Li X Y, et al. An overview of current status of copper pollution in soil and remediation efforts in China [J]. *Earth Science Frontiers*, 2018,25(5):305-313.
- [64] Wang S, Mulligan C N. Occurrence of arsenic contamination in Canada: Sources, behavior and distribution [J]. *Science of The Total Environment*, 2006,366(2/3):701-721.
- [65] Wang X L, Sun Y J, Guo H, et al. Analysis of soil heavy metal Hg pollution source based on GeoDetector [J]. *Polish Journal of Environmental Studies*, 2022,31(1):347-355.
- [66] 杨金燕,杨肖娥,何振立.土壤中铅的来源及生物有效性 [J]. *土壤通报*, 2005,(5):127-134.
- Yang J Y, Yang X E, He Z L. Resource and bio-availability of lead in soil [J]. *Chinese Journal of Soil Science*, 2005,(5):127-134.
- [67] Faroon O, Ashizawa A, Wright S, et al. Toxicological profile for cadmium [R]. Atlanta: Agency for Toxic Substances and Disease Registry (US), 2013.
- [68] Fekiacova Z, Cornu S, Pichat S. Tracing contamination sources in soils with Cu and Zn isotopic ratios [J]. *Science of The Total Environment*, 2015,517:96-105.
- [69] Gmochowska W, Pietranik A, Tyska R, et al. Sources of pollution and distribution of Pb, Cd and Hg in Wroclaw soils: Insight from chemical and Pb isotope composition [J]. *Geochemistry*, 2019,79(3):434-445.
- [70] Saha R, Nandi R, Saha B. Sources and toxicity of hexavalent chromium [J]. *Journal of Coordination Chemistry*, 2011,64(10):1782-1806.
- [71] Tumolo M, Ancona V, De Paola D, et al. Chromium pollution in European water, sources, health risk, and remediation strategies: An overview [J]. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2020,17(15):5438.
- [72] Xu H, Zhu Y, Wang L, et al. Source contribution analysis of mercury deposition using an enhanced CALPUFF-Hg in the central Pearl River Delta, China [J]. *Environmental Pollution*, 2019,250:1032-1043.
- [73] 吕双燕.黄河三角洲滨海湿地石油烃和重金属空间分布规律与潜在生态风险研究 [D]. 烟台:鲁东大学, 2017.
- Lu S Y. Spatial distribution and potential ecological risk of petroleum hydrocarbons and heavy metals in coastal wetlands of the Yellow River Delta [D]. Yantai: Ludong University, 2017.
- [74] 纪冬丽,孟凡生,薛 浩,等.国内外土壤砷污染及其修复技术现状与展望 [J]. *环境工程技术学报*, 2016,6(1):90-99.
- Ji D L, Meng F S, Xue H, et al. Situation and prospect of soil arsenic pollution and its remediation techniques at home and abroad [J]. *Journal of Environmental Engineering Technology*, 2016,6(1):90-99.
- [75] 邓艺姿.我国经济发展与污染排放之间的实证分析——基于 VAR 模型 [J]. *投资与创业*, 2022,33(9):226-228.
- Deng Y Z. Empirical analysis between economic development and pollution emission in China - based on VAR model [J]. *Investment and Entrepreneurship*, 2022,33(9):226-228.
- [76] 杨 亮,陈 东.重金属废水传统处理技术的研究综述 [J]. *广东化工*, 2017,44(17):144-145.
- Yang L, Chen D. Review of traditional treatment technology for heavy metal wastewater [J]. *Guangdong Chemical Industry*, 2017, 44(17):144-145.
- [77] 周云霄.我国海洋溢油事故应急机制探析 [D]. 上海:华东政法大学, 2017.
- Zhou Y X. Exploration of emergency response mechanism for marine oil spill accidents in China [D]. Shanghai: East China University of Political Science and Law, 2017.
- [78] 李亨亨,王京刚,王 颖,等.长江口滨岸重金属含量、形态及其分布特征 [J]. *农业环境科学学报*, 2014,33(6):1189-1196.
- Li T T, Wang J G, Wang Y, et al. Contents, forms and distributions of heavy metals in surface water and sediments from Yangtze Estuary [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2014,33(6):1189-1196.
- [79] 徐颂军,许观娣,廖宝文.珠江口红树林湿地海水重金属污染评价及分析 [J]. *华南师范大学学报(自然科学版)*, 2016,48(5):44-51.
- Xu S J, Xu G C, Liao B W. Evaluation and analysis on heavy metals' pollution in mangrove wetland's seawater of the Pearl River Estuary [J]. *Journal of South China Normal University (Natural Science Edition)*, 2016,48(5):44-51.
- [80] 赵肖依,魏海峰,黄 欣,等.环渤海湿地沉积物重金属污染监测与风险评估 [J]. *中国野生植物资源*, 2020,39(12):33-37,41.
- Zhao X Y, Wei H F, Huang X, et al. Analysis and evaluation of heavy metal pollution in sediments in key wetlands around the Bohai Sea [J]. *Chinese Wild Plant Resources*, 2020,39(12):33-37,41.
- [81] 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 [J]. *环境科学学报*, 2011,31(8):1676-1684.
- Zhang L, Qin Y W, Zheng B H, et al. Distribution and pollution assessment of heavy metals in sediments from typical areas in the Bohai Sea [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2011,31(8):1676-1684.
- [82] 张 诺,刘其根,陈丽平,等.长江口盐沼湿地沉积物重金属空间分布特征及其潜在生态风险评估 [J]. *大连海洋大学学报*, 2021,36(1):135-146.
- Zhang N, Liu Q G, Chen L P, et al. Spatial distribution and ecological risk assessment of sediment heavy metals from salt marsh of Yangtze River estuary [J]. *Journal of Dalian Ocean University*, 2021,36(1):135-146.
- [83] 马 玉,李团结,王 迪.珠江口滨海湿地沉积物重金属污染现状及潜在生态危害 [J]. *热带地理*, 2011,31(4):353-356.
- Ma Y, Li T J, Wang D, et al. Pollution and potential ecological risk of heavy metals in sediment of coastal wetland of the Pearl River Estuary [J]. *Tropical Geography*, 2011,31(4):353-356.
- [84] Hu X F, Du Y, Feng J W, et al. Spatial and seasonal variations of heavy metals in wetland soils of the tidal flats in the Yangtze Estuary, China: Environmental implications [J]. *Pedosphere*, 2013,23(4):511-522.
- [85] 张林英,徐颂军,付笛峰.珠江河口湿地土壤重金属污染评价及空间特征分析 [J]. *热带地貌*, 2018,39(1):20-25.
- Zhang L Y, Xu S J, Fu D F. Characteristics of heavy metal pollution in the Pearl River Estuary wetland soil [J]. *Tropical Geomorphology*, 2018,39(1):20-25.

作者简介: 简锐风(1998-),男,广东韶关人,天津师范大学硕士研究生,研究方向为环渤海滨海湿地水环境质量及其环境效应。jianruifeng168@qq.com.