

DOI:10.7524/j.issn.0254-6108.2022071702

郭雨岸, 陈秀玲, 蔡炳贵, 等. 闽东定海-黄岐湾表层沉积物重金属污染特征及来源解析[J]. 环境化学, 2023, 42(3): 769-778.

GUO Yu'an, CHEN Xiuling, CAI Binggui, et al. Characteristics and source analysis of heavy metal pollution in surface sediments of Huangqi Bay, Dinghai, eastern Fujian[J]. Environmental Chemistry, 2023, 42(3): 769-778.

闽东定海-黄岐湾表层沉积物重金属污染特征及来源解析*

郭雨岸^{1,2} 陈秀玲^{1,2,3}** 蔡炳贵^{1,2,3} 卢欣^{1,2} 刘杰^{1,2} 周玲^{1,2}

(1. 福建师范大学湿润亚热带生态—地理过程教育部重点实验室, 福州, 350007; 2. 福建师范大学地理科学学院, 福州, 350007; 3. 福建师范大学地理研究所, 福州, 350007)

摘要 定量解析沉积物重金属来源并绘制空间分布图可为海洋生态环境治理修复提供科学依据. 本文以定海-黄岐湾为研究区, 分析其表层沉积物的重金属含量, 通过内梅罗指数和地统计法探究其重金属空间分布规律, 并基于正定矩阵因子分析模型(PMF)定量描述其重金属元素的污染来源. 研究结果表明定海-黄岐湾表层沉积物的V、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Cd、Pb均值分别为86.55、61.50、13.50、30.42、30.60、116.58、0.11、39.94 mg·kg⁻¹均超出福建省近岸浅海沉积物的背景值1倍以上; 地统计和内梅罗指数表明V、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Cd、Pb含量的空间分布和污染特征具有差异性. 其中, V为轻度污染, Cr、Co、Ni、Pb均为中度污染而Cu、Zn、Cd为重污染, 但是其高值区和污染严重区域均出现在人类活动密集区, 呈现受人类活动影响的共性特征; PMF分析则阐释沉积物中的V来自于区域岩石风化的自然源, Zn和Cd元素来自于生活污水的排放, Ni、Cr、Co和Cu来自于船只表面金属涂层剥落, Pb来自于船只海上交通泄露的油料. 自然源、生活排污源、工业污染源以及交通污染源对定海-黄岐湾沉积物重金属的污染贡献率分别为19.3%、28.3%、43.4%、8.9%, 贡献率最高的为船只金属涂层脱落的工业污染源.

关键词 重金属, 来源分析, 正定矩阵因子分析模型, 闽东.

Characteristics and source analysis of heavy metal pollution in surface sediments of Huangqi Bay, Dinghai, eastern Fujian

GUO Yu'an^{1,2} CHEN Xiuling^{1,2,3}** CAI Binggui^{1,2,3} LU Xin^{1,2}
LIU Jie^{1,2} ZHOU Ling^{1,2}

(1. Key Laboratory for Humid Subtropical Eco-Geographical Process of the Ministry of Education, Fuzhou, 350007, China; 2. School of Geographical Sciences, Fujian Normal University, Fuzhou, 350007, China; 3. State Key Laboratory of Subtropical Mountain Ecology Funded by Ministry of Science and Technology and Fujian Province, Fujian Normal University, Fuzhou, 350007, China)

Abstract Quantitative analysis of heavy metal sources in sediments and the creation of spatial distribution maps can provide a scientific basis for the treatment and restoration of the marine ecological environment. This paper examines the heavy metal content of surface sediments in Dinghai-Huangqi Bay, investigates the spatial distribution of heavy metals using the Nemero index and geostatistics, and quantitatively describes heavy metal pollution sources using a positive definite matrix factor analysis model (PMF). The results show that the average values of V, Cr, Co, Ni, Cu,

2022年7月17日收稿(Received: July 17, 2022).

* 福建省自然科学基金(2022J01619)资助.

Supported by the Natural Science Foundation of Fujian Province (2022J01619).

** 通信联系人 Corresponding author, Tel: 13314946470, E-mail: xiulingchen@163.com

Zn, Cd, and Pb in Dinghai-Huangqi Bay surface sediments are 86.55, 61.50, 13.50, 30.42, 30.60, 116.58, 0.11, 39.94 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, respectively, which are higher than the background values of coastal shallow sea sediments in Fujian Province. The Geostatistics and Nemer index show that the spatial distribution and pollution characteristics of V, Cr, Co, Ni, Cu, Zn, Cd, Pb contents are different. Of them, V is slightly polluted, Cr, Co, Ni, Pb are moderately polluted, while Cu, Zn, Cd are heavily polluted. However, both high-value areas and heavily polluted areas appear in human activity-intensive areas, demonstrating the common characteristics affected by human activities. PMF analysis showed that V in the sediment comes from the natural source of regional rock weathering, Zn and Cd elements come from domestic sewage discharge, Ni, Cr, Co, and Cu elements come from the peeling of metal coating on the surface of the ship, and Pb elements come from the oil leaked from the marine traffic. The natural sources, domestic sewage, industrial, and traffic pollution contributed 19.3%, 28.3%, 43.4%, and 8.9%, respectively, to heavy metals in Dinghai-Huangqi Bay sediments. The ship metal coating flaking off was the industrial pollution source with the highest contribution rate.

Keywords heavy metals, source analysis, positive definite matrix factor analysis model, eastern Fujian.

重金属由于其毒性大、难降解、生物累积性并可对人类和海洋生物产生危害而广受关注^[1]。重金属不仅改变海洋生物的遗传物质,破坏海洋生物物种多样性和海洋生态平衡而且可通过食物链进入人体造成严重损害^[2-3]。与重金属对人类与海洋的危害相对的是日益严峻的海洋污染,研究表明我国东部海域均存在着不同程度的重金属污染。如泉州湾和莱州湾重金属 Hg 和 Cd 超标,局部海域 Hg 和 Cd 污染^[4-6]。渤海湾存在着 Cd 中度污染风险,近海工业活动和陆源污染排放是污染的主要来源^[7]。胶州湾重金属 Pb 和 Cr 显著富集^[8],三沙湾重金属 Cu 轻微超标^[9],兴化湾存在 Cd 污染^[10]。鉴于严峻的海洋重金属污染状况,掌握近海重金属污染来源及其污染空间分布规律对海洋生态环境治理修复显得尤为重要。

目前重金属污染来源研究以定性的源识别和定量的源解析为主。定性的源识别方法主要是主成分分析法和聚类分析等多元统计方法^[11]。主成分分析是通过把重金属元素降维并选取最主要的特征值划分为各主成分,操作简便但是会掩盖各种元素隐含的信息^[12-13]。聚类分析是根据事物之间的相似性来进行分类,相似程度越高的事物将会被划分为一类,但是不能处理大量数据且存在数据与实际情况相悖的情况^[14]。随着重金属污染研究的深入,主成分分析法和聚类分析的源识别方法因存在未能明确污染来源的贡献率,大型数据处理受到限制等缺陷而不适应发展的需要。正定矩阵因子分析模型(PMF)是一种可在非负约束的条件下考虑数据的不确定性,对未知污染源进行定量分析的受体模型^[11, 15-17]。基于上述优点,近年来正定矩阵因子分析模型被广泛应用到环境污染的解析^[18-21]。

定海-黄岐湾地处闽北经济发展圈的重要北翼,同时也是海岸两峡沟通贸易的必经之地。区域内水产养殖业发展突出,不仅是我国重要的海带鲍鱼生产基地还是福建省水产品第一大供应地^[22]。密集的人类活动必然会对定海-黄岐湾沿海地区生态环境造成影响,复杂的海域环境更是给海洋生态环境保护带来严重的挑战。基于上述情况,掌握定海-黄岐湾重金属污染状况并采取相应治理措施对海洋环境保护是至关重要的,然而定海-黄岐湾重金属污染研究还处于起步阶段,现有研究主要集中在定海-黄岐湾的污染生态风险评估^[23],缺乏对重金属污染来源定量解析。因而本文利用地统计方法和内梅罗指数法厘清定海-黄岐湾重金属(V、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Cd、Pb)的污染特征及含量空间分布规律,并结合正定矩阵因子分析法对定海-黄岐湾沉积物重金属的来源进行定量解析,从而促进海洋生态环境治理修复工作的开展。

1 材料与方法(Materials and methods)

1.1 研究区概况

定海-黄岐湾位于北纬 $26^{\circ}17'$ — $26^{\circ}22'$,东经 $119^{\circ}47'$ — $119^{\circ}57'$,隶属福州市连江县,黄岐半岛将定

海湾和黄岐湾隔开,以南为定海湾以北为黄岐湾.区内为亚热带季风气候,气候温暖湿润雨量充沛,土壤以贫瘠酸性的华南红壤为主,主要发展丁香鱼、海带、鲍鱼和海参等水产养殖及船舶运输产业.

1.2 样品采集

在定海-黄岐湾以约 1—4 km² 的网格面积尽量均匀设置采样点,在人类活动频繁的区域增加采样点的密度,共采取 53 个样品(见图 1, LJA 和 LJB 为连江定海-黄岐湾采样点,其中 LJA 为黄岐湾的采样点, LJB 为定海湾的采样点).采用抓斗式底泥采样器采集表层底泥,样品采集后使用聚丙烯样品袋,充分混合后装袋带回实验室进行处理,样品在实验室进行自然风干后,去除牡蛎贝壳等杂质后进行实验处理.

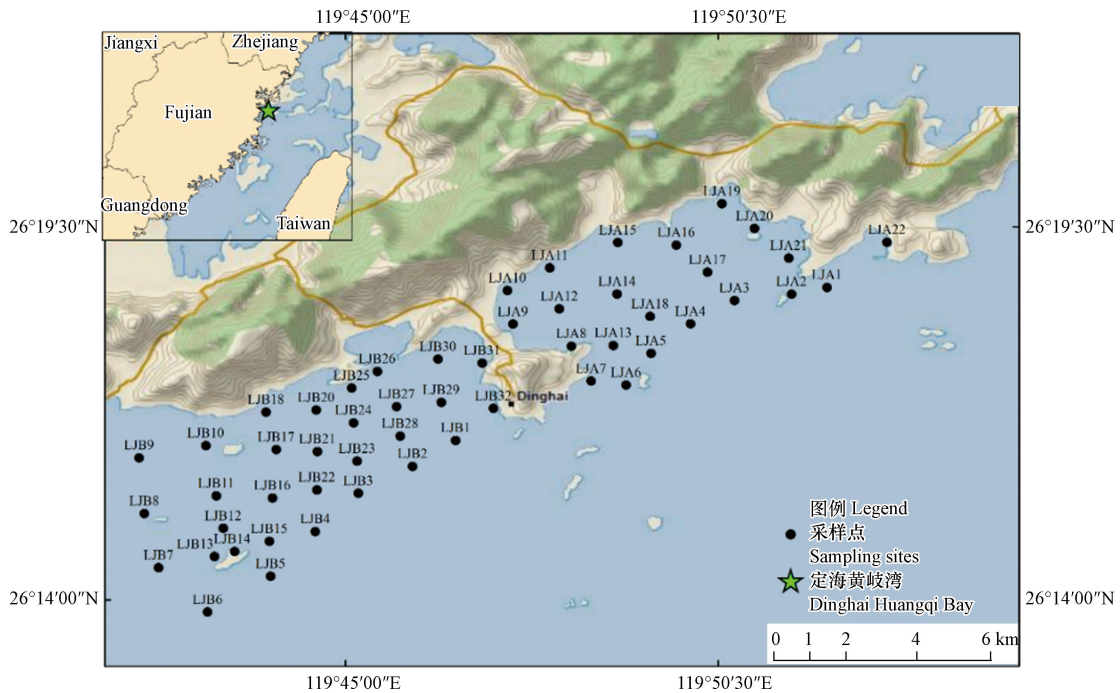


图 1 定海-黄岐湾样点分布图

Fig.1 Distribution of sampling sites in Dinghai Huangqi Bay

1.3 样品处理

称取 0.04 g 风干样品于 PTFE 内胆中,加入 1.5 mL HF、0.5 mLHNO₃,将内胆密封,置于防腐高效溶样罐套内,于烘箱中 150 °C 加热 15 h.冷却后取出内胆开盖,加入 0.25 mL HClO₄ 于 150 °C 电热板上蒸至近干.利用移液枪将 2 mL 超纯水和 1 mLHNO₃ 加入到罐子中密封,将内胆置于防腐高效溶样罐内,于 150 °C 烘箱中回溶 15 h.冷却后取出内胆,将溶液转移到 40 mL PTE 瓶中,用高纯水稀释至大约 40 mL 摇匀待测.采用美国 Thermo Fisher 公司的 X-Serie II 型电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS)进行重金属元素测定,样品平行测试 RSD<5%,同时测定国家标准土壤参比物质(GSS-1、GSS-3),实验过程中采用平行样进行质量监控,误差范围控制在 10% 以内.以上实验均在福建师范大学湿润亚热带山地生态教育部重点实验室完成.V、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Cd、Pb 的方法检出限分别为 0.26、2.05、0.09、3.57、0.96、45.49、0.08、0.67 mg·kg⁻¹.

1.4 研究方法

1.4.1 内梅罗指数法

运用内梅罗指数对采集到的样品进行重金属污染研究,进而探究定海-黄岐湾生态状况.采用 SPSS21 软件和 Excel 2019 来进行数据统计分析,重金属空间分布图由 Arcgis10.7 完成.

内梅罗指数法是一种兼顾极值或突出最大值的计权型多因子环境质量指数,多用于环境污染检测^[24].其公式如下:

$$P_i = \frac{C_i}{S_i} \quad (1)$$

$$P_{\text{综合}} = \sqrt{\frac{(P_i^2 + P_{i\text{Max}}^2)}{2}} \quad (2)$$

其中, C_i 为底泥 i 的重金属实测值、 S_i 为土壤背景值、 P_i 在式 1 中为单项污染指数, 在式 2 中为重金属 i 的单项污染指数平均值、 $P_{i\text{Max}}$ 是重金属 i 的最大单项污染指数、 $P_{\text{综合}}$ 为重金属 i 的内梅罗综合污染指数. 内梅罗综合污染指数的等级划分见表 1.

表 1 内梅罗指数法污染评价等级

Table 1 Pollution assessment level of Nemerow index

内梅罗综合污染指数 Néméro Composite Pollution Index	污染等级 Pollution levels	评价结果 Evaluation results
$P_{\text{综合}} \leq 0.7$	1	清洁安全
$0.7 < P_{\text{综合}} \leq 1.0$	2	尚清洁(警戒线)
$1.0 < P_{\text{综合}} \leq 2.0$	3	轻度污染
$2.0 < P_{\text{综合}} \leq 3.0$	4	中度污染
$P_{\text{综合}} > 3.0$	5	重污染

1.4.2 正定矩阵因子分析法

正定矩阵因子分析法(PMF)是由芬兰科学家 Paatero 和 Tapper 在因子分析法(FA)的基础上发展的可对未知污染源进行源解析的受体模型^[18]. PMF 模型最初应用于大气污染的源解析中, 近年来被国内学者广泛应用于土壤以及沉积物^[11, 18-21]. 鄱阳湖、杏林湾近郊流域以及黄河流域的沉积物源解析中表明正定矩阵因子分析法与传统源解析方法具有一致的结果且更能解析出各污染源的贡献率^[21, 25-26]. 大量研究表明正定矩阵因子分析法适用于我国土壤及沉积物的重金属污染来源解析中, 因而本文采取美国环保署发布的 PMF5.0 对定海-黄岐湾的重金属进行来源分析, PMF 模型是将样品数据分解为污染源的贡献率矩阵以及污染源成分谱矩阵并运用最小二乘法迭代进行运算. 贡献率矩阵与成分谱矩阵经过不断优化可得到目标函数 Q 的最优化从而达到最优效果^[18, 24].

在 PMF 中, 样品浓度矩阵用 X 表示, 污染源贡献因子矩阵用 G 表示, 污染源因子含量矩阵用 F 表示, 残差矩阵用 e 表示. a 为定海-黄岐湾采集的沉积物样本数量; c 为样品测试重金属类别; b 为污染源数量, 计算公式如下^[19-20].

$$X_{a \times b} = G_{a \times b} \times F_{b \times c} + e_{a \times c} \quad (3)$$

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n \left(\frac{e_{ij}}{u_{ij}} \right)^2 = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n \left(\frac{x_{ij} - \sum_{l=1}^b g_{il} f_{lj}}{u_{ij}} \right)^2 \quad (4)$$

式中, u_{ij} 即第 i 个样品中第 j 个元素浓度的不确定性, δ 为标准偏差, C 为重金属元素实测含量, MDL 为方法检出限^[27], 不确定性计算公式如下.

$$U_{ij} = \frac{5}{6} \times \text{MDL} \quad (C \leq \text{MDL}) \quad (5)$$

$$U_{ij} = \sqrt{(\delta \times C) + 0.5 \times \text{MDL}} \quad (C > \text{MDL}) \quad (6)$$

2 结果与讨论(Results and Discussion)

2.1 定海-黄岐湾重金属分布特征

在对定海-黄岐湾重金属进行描述性统计时发现(表 2), 定海-黄岐湾中 V、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Cd、Pb 元素的重金属平均含量分别为 86.55、61.50、13.50、30.42、30.60、116.58、0.11、39.94 mg kg⁻¹,

8 种重金属元素平均含量均超出福建省近岸浅海沉积物背景值^[23]. V 和 Pb 的平均含量为背景值的 1.34 倍和 1.30 倍, Cu、Cd 的平均含量分别为背景值的 2.15 倍和 1.76 倍.

表 2 定海-黄岐湾样点重金属描述性特征(mg·kg⁻¹)

Table 2 Heavy metal content at sample sites in Huangqi Bay, Dinghai (mg·kg⁻¹)

	V	Cr	Co	Ni	Cu	Zn	Cd	Pb
最小值	11.55	3.33	2.23	2.76	2.33	40.42	0.01	3.36
最大值	119.50	106.71	18.68	45.30	209.10	404.56	0.72	113.04
平均值	86.55	61.50	13.50	30.42	30.60	116.58	0.11	39.94
变异系数	34%	42%	33%	42%	91%	43%	79%	35%
福建近岸浅海沉积物背景值 ^[28]	79.8	57.4	11.81	27.4	21.9	95.9	0.08	37.1
中国浅海沉积物背景值 ^[29]	71	61	12	24	15	65	0.065	20

变异系数是能够反映总体样本中各采样点平均变异程度, $CV < 15\%$ 表示弱变化, $15\% \leq CV \leq 36\%$ 表示中等变化; $CV > 36\%$ 表示高变化^[20]. 若变异大于 50%, 表明环境中重金属含量空间分布不均匀, 局部存在点源污染^[30]. 定海-黄岐湾中 V、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Cd 和 Pb 元素的变异系数分别为 34%、42%、33%、42%、91%、43%、79% 和 35%^[23]. 其中 V、Co 和 Pb 为中等变异, Ni、Cr、Zn 的变异系数相似, 分别为 42%、42% 和 43%, 均已超过 36% 为高度变异. 同时 Cu 和 Cd 的变异系数更是高达 91% 和 79%. 上述表明定海-黄岐湾中 Cu 和 Cd 的含量空间分布不均匀, 受外界的影响大, 存在着明显的点源污染.

由定海-黄岐湾表层沉积物重金属含量空间分布可知(图 2), V、Cr、Co、Ni 元素含量的低值区均出现在东北部和西部, 重金属含量高值区出现在中部, 且内部差异变化较小. Cu 整体含量较低, 只在黄岐镇码头避风港(LJA22)和海湾内定海村码头(LJB31、LJB32)出现明显高值区. Cd 的分布与其他元素存在比较明显的差异, 其高值区主要出现在湾内中部偏南的大面积开阔海域, 及定海村码头(LJB32)和黄岐镇码头避风港(LJA22)处. Pb 低值区出现在西部和湾内中部偏东大部分海域, 海湾内中部偏西较高, 而东北部高塘港(LJA22)和中部沿海定海村码头(LJB32)表现为明显高值. Zn 含量的低值区分布在西北部以及北部的零散区域, 高值区分布在中部沿岸的定海村码头(LJB32), 筱埕村码头(LJB31)及东北部沿岸的高塘港(LJA21)、黄岐镇码头避风港(LJA22)附近, 及个别有渔船停泊(LJA8)和片状鱼排养殖区附近(LJA6)的样点, 说明 Zn 可能与航运养殖等人为活动的排污有关.

2.2 重金属污染特征

通过内梅罗指数法对沉积物重金属进行污染评价结果如下所示(表 3). 对定海-黄岐湾沉积物进行内梅罗指数评价可知(表 3). 重金属 V 最小单项污染指数为 0.23, 最大单项污染指数为 1.53, 出现在海湾中部海域(LJA14). 重金属 Cr 最小单项污染指数为 0.08, 最大单项污染指数为 2.58, 出现在黄岐镇码头避风港(LJA22). 重金属 Co 最小单项污染指数为 0.30, 最大单项污染指数为 2.52 出现在海湾中部海域(LJA13). 重金属 Ni 的最大污染指数为 3.36 出现在海湾中部海域(LJA14), 最小单项污染指数为 0.20. 重金属 Cu 元素的最大单项污染指数为 9.68 并出现在黄岐镇码头避风港(LJA22), 最小污染指数为 0.11. 重金属元素 Zn 单项污染指数最大值为 4.89 并出现在黄岐镇码头避风港(LJA22), 最小值为 0.49. 重金属元素 Cd 单项污染指数最大值 13.27 出现在黄岐镇码头避风港(LJA22), 最小值为 0.18. 重金属元素 Pb 单项污染指数最大值为 3.24 出现在黄岐镇码头避风港(LJA22), 最小值为 0.1. 综上所述定海-黄岐湾重金属污染形势严峻, 其中重金属元素 Cr、Cu、Zn、Cd、Pb 的最大单项污染指数均出现在黄岐镇避风港码头内, 说明黄岐镇避风码头可能存在重金属混合污染, Cr、Cu、Zn、Cd、Pb 可能存在点源污染.

由定海-黄岐湾沉积物重金属内梅罗污染指数可知, 元素 V、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Cd、Pb 的平均单项污染指数分别为 1.11、1.49、1.82、2.25、1.42、1.41、2.13、1.14, 平均单项污染指数从高到低依次为

Ni>Cd>Co>Cr>Cu>Zn>Pb>V. 单项污染指数能反映某一个站点的污染状况,其数值大于1即表明存在污染.在定海-黄岐湾共采集的54个样品中,重金属V、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Cd、Pb的单项污染指数大于1的,分别占72%、80%、83%、85%、74%、83.3%、90%、78%.元素V、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Cd、Pb的综合污染指数分别为1.34、2.11、2.20、2.86、6.92、3.60、4.90、2.25,其中8种元素的综合污染指数均大于1,表明定海-黄岐湾存在着不同程度的重金属污染.而其中Cu的综合污染指数更是高达6.92,而最小的V也明显大于1.结合表3可知定海-黄岐湾中重金属V为轻度污染;Cr、Co、Ni、Pb均为中度污染;而Cu、Zn、Cd为重污染.综上所述内梅罗指数分析表明定海-黄岐湾重金属污染严重.8种重金属元素污染状况从高到低分别为Cd>Cu>Zn>Ni>Pb>Co>Cr>V,其中Cd、Cu和Zn为定海-黄岐湾的最主要污染源.

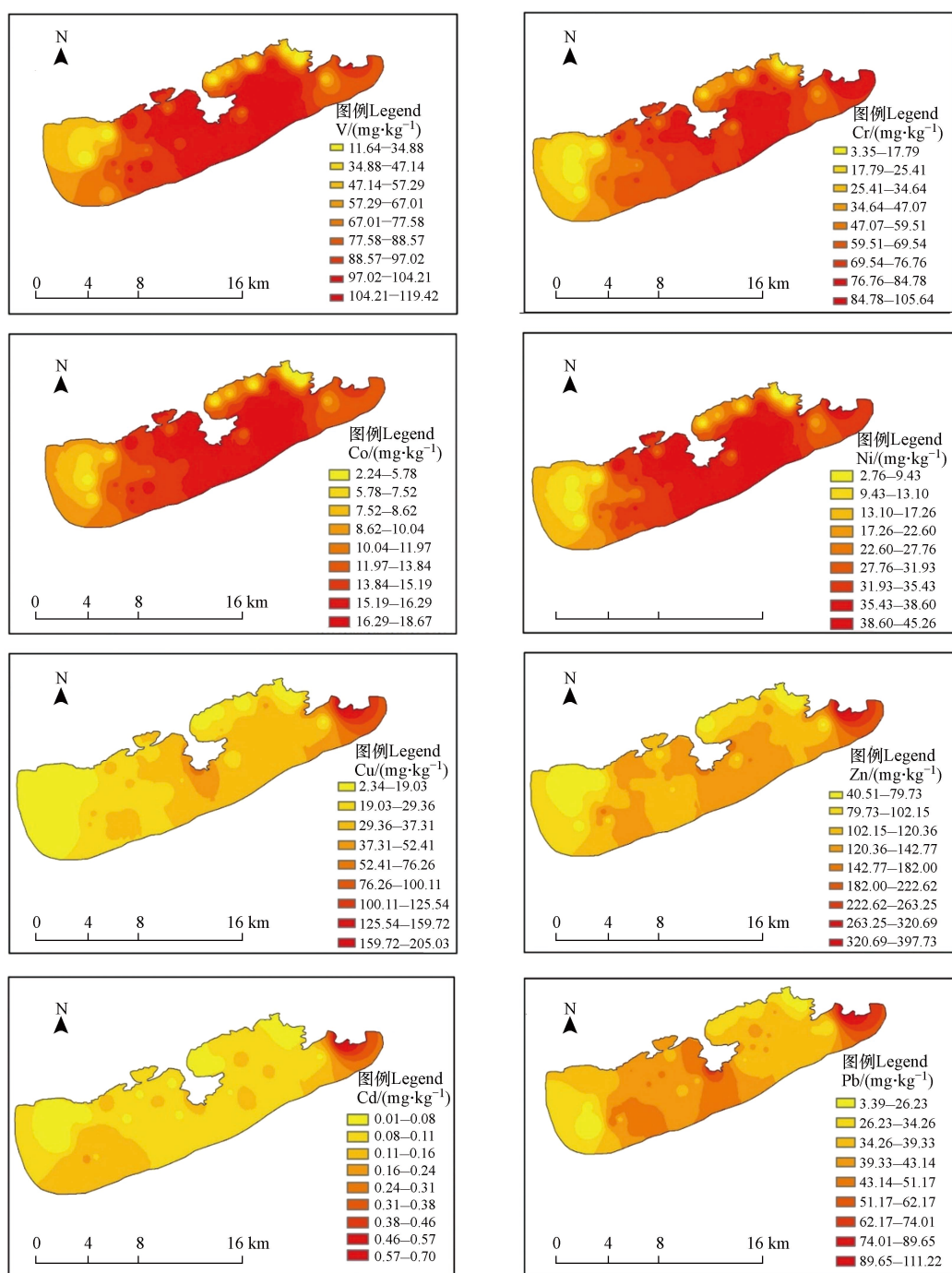


图2 重金属含量空间分布图

Fig.2 Spatial distribution of heavy metal content.

表 3 定海-黄岐湾沉积物重金属内梅罗污染指数

Table 3 Heavy metal Nemeró pollution index for sediments in Huangqi Bay, Dinghai

	V	Cr	Co	Ni	Cu	Zn	Cd	Pb
平均单项污染指数	1.11	1.49	1.82	2.25	1.42	1.41	2.13	1.14
最小单项污染指数	0.23	0.08	0.30	0.20	0.11	0.49	0.18	0.10
最大单项污染指数	1.53	2.58	2.52	3.36	9.68	4.89	13.27	3.24
综合污染指数	1.33	2.11	2.20	2.86	6.92	3.60	9.50	2.43
污染等级	轻度污染	中度污染	中度污染	中度污染	重污染	重污染	重污染	中度污染

2.3 污染来源解析

本文采取美国环保署发布的 PMF5.0 对定海-黄岐湾的重金属进行来源分析. 由于正定矩阵因子分析模型是对未知污染源进行源解析, 为避免误差需要对因子数进行多次测试选择合适的因子数, 实现 Q 值最小化才可达到最优结果. 本文选择了 1—7 个因子数进行调试, 采用 Robust 模式, 经过多次运算操作最终选择 4 个因子. 元素 V、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Cd、Pb 的相关系数 r^2 均大于 0.8, 表明 PMF 拟合结果好, 最终运算结果见图 3.

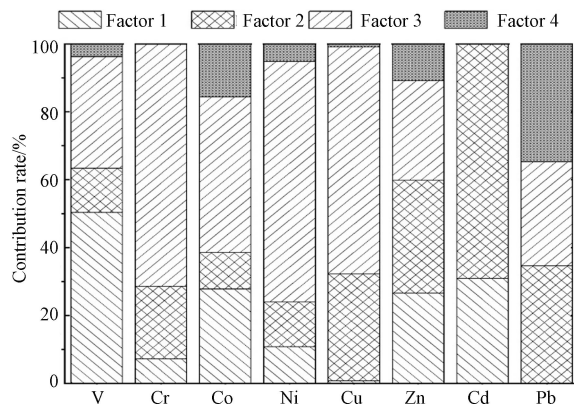


图 3 各污染源因子贡献率图

(注: Factor1 代表自然源、Factor2 代表生活排污源、Factor3 代表工业污染源、Factor4 代表交通污染源)

Fig.3 Factor contribution blots

(Note: Factor1 represents natural sources, Factor2 represents domestic sewage sources, Factor3 represents industrial pollution sources, Factor4 represents traffic pollution sources)

由表 4 可以发现, V 对因子 1 的贡献率为 50.4%, 为因子 1 的主导元素. 有研究显示沉积物中的 V 主要来自于成土母质或岩石风化侵蚀而成的自然源^[26, 31]. 结合定海-黄岐湾中 V 较低的内梅罗指数和变异系数, 表明 V 受人为因素影响较少, 可能来自于区域岩石如石英、高岭土和长石风化侵蚀的自然来源. 因而因子 1 代表区域岩石风化的自然源.

Zn 和 Cd 对 4 个因子均有相应的贡献率, 但是对因子 2 的贡献率明显高于其余因子 (33.1%, 69.1%), 故 Zn 和 Cd 为因子 2 的主导元素. Zn 和 Cd 为高度分异, 表明 Zn 和 Cd 的空间分布不均匀, 可能来自人为源. 在 Zn 和 Cd 空间分布图中 (图 2) 发现两者均在东北部高塘港 (LJA22) 和中部沿岸的定海村码头 (LJB32), 筱埕村码头 (LJB31) 表现出异常高值, 说明 Zn 和 Cd 元素存在着明显的点源污染, Zn 和 Cd 的内梅罗指数分别为 3.6 和 4.9 也印证这一点. 定海村码头、筱埕村码头和高塘港避风港是人类活动密集区, 人类生产生活活动频繁. 在高塘避风港中观察到多条排污管道, 人们生活污水主要是通过排泄管道排入海洋中^[4]. 这致使富含 Zn 和 Cd 等重金属元素的生活污水通过排污管道直接进入海洋中, 导致局部地区 Zn 和 Cd 异常. 与此同时在海水的顶托下, Zn 和 Cd 元素容易在浅海区域沉降积累造成区域 Zn 和 Cd 污染. 由此可知 Zn 和 Cd 元素可能来自于生活污水, 经过排泄管道以及河流汇入海洋中. 总而言之, 因子 2 代表生活排污源.

表 4 重金属元素源贡献率(%)

Table 4 Heavy metal elemental source contribution				
元素 Elements	因子1 Factor 1	因子2 Factor 2	因子3 Factor 3	因子4 Factor 4
V	50.4	13.0	32.9	3.8
Cr	7.2	21.4	71.4	—
Co	27.8	10.7	45.8	15.7
Ni	10.8	13.2	70.7	5.3
Cu	0.7	31.6	66.7	1.0
Zn	26.6	33.1	29.3	10.9
Cd	30.9	69.1	—	—
Pb	—	34.6	30.6	34.8
相对贡献率	19.3	28.3	43.4	8.9

因子 3 中, Cr、Co、Ni、Cu 为主导元素, 其贡献率分别为 71.4%、45.8%、70.7% 和 66.7%。由 Cr、Co、Ni、Cu 的空间分布图可知, Cr、Co、Ni 元素在个别区域和样点处没有出现明显高值分布的相对均匀, 主要分布在研究区的中南部, 结合 Cr、Co、Ni 的中等到高变异系数, 表明 Cr、Co、Ni 污染面积较广; Cu 在东北部高塘港(LJA22)和海湾内黄岐镇避风港码头(LJB31、LJB32)表现出异常高值, 且变异系数为高度变异表明 Cu 受外在点源干扰影响。Ni、Co、Cr 主要被用来制造不锈钢和其他抗蚀合金, 是冶炼工业标识元素^[32]。现代渔船主要采用不锈钢等结构并在船体涂上耐蚀的金属涂层。在海湾中部的定海村、筱埕村码头和黄岐镇码头避风港内船只往来频繁, 往来的船只与当地渔民的渔船就近停泊在码头, 繁忙的交通活动致使该区域容易发生船只碰撞摩擦, 从而导致船体表面金属材料及涂层的剥落, 其中便包括防污涂料识别元素的 Cu 和 Cr。因而重金属 Ni、Co、Cr 和 Cu 来自于船只表面金属涂层剥落。

因子 4 中, 重金属 Pb 的贡献率最高(34.8%)为主导元素。有研究表明 Pb 主要来源于工矿业活动及交通排放^[11, 25]。Pb 在黄岐湾东北部高塘港(LJA22)和海湾内黄岐镇避风港码头(LJB32)表现为明显高值, 为中等变异程度, 表明 Pb 空间分布不均匀。结合黄岐镇高塘港的瀚海船业码头为交通部所属的“国际船舶航行临时停靠点”, 大型船只在此停泊交通活动频繁。船只在停泊运行过程中会泄露富含 Pb 的油料, 并不断富集累积^[33], 表明 Pb 主要来自于船只海上交通泄露的油料。由上所述可知, 因子 4 主要为交通排放源。

进一步根据每种重金属的因子指纹计算每种来源的总体贡献百分比可以发现, 定海-黄岐湾自然源、生活排污源、工业污染源和交通排放源的相对贡献率分别为 19.3%、28.3%、43.4% 和 8.9%, 其中贡献率最高的为工业污染源表明定海-黄岐湾重金属污染主要受工业污染影响。

3 结论(Conclusion)

(1) 闽东定海-黄岐湾表层沉积物中重金属 V、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Cd、Pb 元素的平均含量均超出福建省近岸浅海沉积物背景值, 表明定海-黄岐湾潜在重金属污染。

(2) 重金属 V、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Cd、Pb 的含量空间分布均表现出差异性, 但是八种重金属的高值区均出现在中部人类活动密集区且呈现出明显的一致性, 表明重金属空间分布受人类活动影响较大。

(3) 根据内梅罗指数法可知 V 为轻度污染; Cr、Co、Ni、Pb 均为中度污染; 而 Cu、Zn、Cd 为重污染。正定矩阵因子分析模型获取了 4 个来源, 8 种重金属元素污染受多种因素影响而定海-黄岐湾中 V 主要来自区域岩石风化侵蚀的自然源; 重金属 Zn 和 Cd 元素主要来自于生活排污源; Ni、Cr、Co 和 Cu 主要来自于工业污染源; 重金属 Pb 主要来自于交通排放源。4 种污染源的相对贡献率最高的为工业污染源表明人类工农业活动对定海-黄岐湾重金属污染具有突出影响, 后续环境污染修复中对此应有所侧重。

致谢: 感谢范逸飞在文章撰写过程中提供的帮助。

参考文献 (References)

- [1] 公金文, 陈发荣, 郑立, 等. 红海湾表层海水重金属含量与污染评价 [J]. 海洋科学进展, 2021, 39(4): 570-580.
GONG J W, CHEN F R, ZHENG L, et al. The concentrations and pollution assessment of heavy metal in surface seawater in Honghai Bay [J]. *Advances in Marine Science*, 2021, 39(4): 570-580 (in Chinese).
- [2] 贾广宁. 重金属污染的危害与防治 [J]. 有色矿冶, 2004, 20(1): 39-42.
JIA G N. Harm and defence of heavy metals [J]. *Non-Ferrous Mining and Metallurgy*, 2004, 20(1): 39-42 (in Chinese).
- [3] 田金, 李超, 宛立, 等. 海洋重金属污染的研究进展 [J]. 水产科学, 2009, 28(7): 413-418.
TIAN J, LI C, WAN L, et al. The advances of heavy metal pollution in marine environment [J]. *Fisheries Science*, 2009, 28(7): 413-418 (in Chinese).
- [4] 曹胜伟, 刘春雷, 李亚松, 等. 福建泉州湾近岸海域沉积物重金属来源分析与生态风险评价 [J]. 中国地质, 2022, 49(5): 1841-1896
CAO S W, LIU C L, LI Y S, et al. Source analysis and ecological risk assessment of heavy metals in sediments of the coastal waters of Quanzhou Bay, Fujian Province [J]. *Geology in China*, 2022, 49(5): 1841-1896 (in Chinese)
- [5] 段云莹, 裴绍峰, 廖名稳, 等. 莱州湾表层沉积物重金属分布特征、污染评价与来源分析 [J]. 海洋地质与第四纪地质, 2021, 41(6): 67-81.
DUAN Y Y, PEI S F, LIAO M W, et al. Spatial distribution of heavy metals in the surface sediments of Laizhou Bay and their sources and pollution assessment [J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 2021, 41(6): 67-81 (in Chinese).
- [6] 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 [J]. 海洋科学进展, 2011, 29(1): 63-72.
HU N J, SHI X F, LIU J H, et al. Distributions and impacts of heavy metals in the surface sediments of the Laizhou Bay [J]. *Advances in Marine Science*, 2011, 29(1): 63-72 (in Chinese).
- [7] 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 [J]. 生态环境学报, 2015, 24(3): 452-456.
ZHOU X B, MEI P Y, PENG L L, et al. Contents and potential ecological risk assessment of selected heavy metals in the surface sediments of Bohai Bay [J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2015, 24(3): 452-456 (in Chinese).
- [8] 魏璟强, 张焕玲, 李铁, 等. 胶州湾及青岛近海表层沉积物重金属赋存形态研究 [J]. 中国海洋大学学报(自然科学版), 2012, 42(S1): 157-164.
WEI J T, ZHANG H L, LI T, et al. Study of the geochemical forms of heavy metals in surface sediments of Jiaozhou Bay and Qingdao inshore areas [J]. *Periodical of Ocean University of China*, 2012, 42(Sup 1): 157-164 (in Chinese).
- [9] 郑钦华. 三沙湾海水增殖区沉积物重金属变化特征及污染状况评价 [J]. 宁德师范学院学报(自然科学版), 2019, 31(4): 432-440.
ZHENG Q H. Changing characteristics and pollution evaluation of heavy metals in sediment in mariculture area of Sansha Bay [J]. *Journal of Ningde Normal University (Natural Science)*, 2019, 31(4): 432-440 (in Chinese).
- [10] 王恩康, 丰爱平, 张志卫, 等. 兴化湾海域水体和表层沉积物中重金属分布及其源解析 [J]. 海洋科学进展, 2019, 37(4): 696-708.
WANG E K, FENG A P, ZHANG Z W, et al. Heavy metal distribution and its source analysis in seawater and sediments of Xinghua Bay [J]. *Advances in Marine Science*, 2019, 37(4): 696-708 (in Chinese).
- [11] 陈斌, 尹晓娜, 姜广甲, 等. 珠江口外陆架海域表层沉积物重金属潜在生态风险评价及来源分析 [J]. 应用海洋学学报, 2021, 40(3): 520-528.
CHEN B, YIN X N, JIANG G J, et al. Assessment of the potential ecological risk of heavy metals in the sediments of continental shelf and their sources off the Pearl River Estuary [J]. *Journal of Applied Oceanography*, 2021, 40(3): 520-528 (in Chinese).
- [12] 施亚盛, 李光耀, 吴爱静, 等. 东苕溪沉积物重金属生态风险评价和源解析 [J]. 生态科学, 2021, 40(6): 67-74.
SHI Y S, LI G Y, WU A J, et al. Ecological risk assessment and source identification of heavy metals in surface sediments of East Tiaoxi River [J]. *Ecological Science*, 2021, 40(6): 67-74 (in Chinese).
- [13] 尚婷婷, 张亚群, 周静, 等. 多元统计分析在农田土壤重金属污染源解析中的应用 [J]. 环境生态学, 2022, 4(4): 93-97.
SHANG T T, ZHANG Y Q, ZHOU J, et al. Application of multivariate statistical analysis in the analysis of heavy metal pollution sources in farmland soil [J]. *Environmental Ecology*, 2022, 4(4): 93-97 (in Chinese).
- [14] 陈雪, 刘鸿雁, 吴攀, 等. 基于GIS和PMF的铜仁植烟土壤重金属污染特征与来源解析 [J]. 农业环境科学学报, 2022, 41(4): 794-801.
CHEN X, LIU H Y, WU P, et al. Contamination characteristics and source apportionment of heavy metals in tobacco-planting soils in Tongren County based on GIS and PMF methods [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2022, 41(4): 794-801 (in Chinese).
- [15] 阿地拉·艾来提, 麦麦提吐尔逊·艾则孜, 怕提古力, 等. 基于BM和PMF模型的库尔勒市地表灰尘重金属来源解析 [J]. 环境监测管理 & 技术, 2021, 33(5): 31-35.
HAYRAT Adila, EZIZ Mamattursun, Patigu, et al. Source analysis of heavy metals in surface dust in Korla based on barycenter model and PMF model [J]. *The Administration and Technique of Environmental Monitoring*, 2021, 33(5): 31-35 (in Chinese).
- [16] 任万辉, 李云丹, 苏枫枫, 等. 沈阳市大气PM_{2.5}中重金属污染特征、来源解析及健康风险评估 [J]. 环境化学, 2021, 40(4): 1029-1037.
REN W H, LI Y D, SU C C, et al. Pollution characteristics, source apportionment and health risk assessment of heavy metals in PM_{2.5} in Shenyang [J]. *Environmental Chemistry*, 2021, 40(4): 1029-1037 (in Chinese).

- [17] 吕建树. 烟台海岸带土壤重金属定量源解析及空间预测 [J]. *地理学报*, 2021, 76(3): 713-725.
LYU J S. Source apportionment and spatial prediction of heavy metals in soils of Yantai coastal zone [J]. *Acta Geographica Sinica*, 2021, 76(3): 713-725 (in Chinese).
- [18] 魏迎辉, 李国琛, 王颜红, 等. PMF模型的影响因素考察: 以某铅锌矿周边农田土壤重金属源解析为例 [J]. *农业环境科学学报*, 2018, 37(11): 2549-2559.
WEI Y H, LI G C, WANG Y H, et al. Investigating factors influencing the PMF model: A case study of source apportionment of heavy metals in farmland soils near a lead-zinc ore [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2018, 37(11): 2549-2559 (in Chinese).
- [19] 比拉力·依明, 阿不都艾尼·阿不里, 师庆东, 等. 基于PMF模型的准东煤矿周围土壤重金属污染及来源解析 [J]. *农业工程学报*, 2019, 35(9): 185-192.
Bilal Imin, Abdugheni Abliz, SHI Q D, et al. Pollution and source identification of heavy metals in surrounding soils of Eastern Junggar Coalfield based on PMF model [J]. *Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering*, 2019, 35(9): 185-192 (in Chinese).
- [20] 王星蒙. 基于PMF模型的葫芦岛锌厂周边农田土壤重金属源解析 [J]. *农业与技术*, 2021, 41(13): 137-139.
WANG X M. Analysis of heavy metal sources in farmland soil around Huludao zinc plant based on PMF model [J]. *Agriculture and Technology*, 2021, 41(13): 137-139 (in Chinese).
- [21] 庞阔, 李敏, 刘璐, 等. 基于蒙特卡罗模拟与PMF模型的黄河流域沉积物重金属污染评价及源解析 [J]. *环境科学*, 2022, 43(8): 4008-4017.
PANG K, LI M, LIU L, et al. Evaluation and source analysis of heavy metal pollution in sediments of the Yellow River Basin based on Monte Carlo simulation and PMF model [J]. *Environmental Science*, 2022, 43(8): 4008-4017 (in Chinese).
- [22] 蔡继哈, 李凯, 郑向勇, 等. 水产养殖重金属污染现状及治理技术研究进展 [J]. *水产科学*, 2010, 29(12): 749-752.
CAI J H, LI K, ZHENG X Y, et al. Advancement in researches and treatment technology of heavy metals in aquaculture [J]. *Fisheries Science*, 2010, 29(12): 749-752 (in Chinese).
- [23] 卢欣. 闽东近海水产养殖区表层沉积物重金属元素分布特征及来源解析[D]. 福州: 福建师范大学, 2020.
LU X. Distribution characteristics and sources of heavy metals in surface sediments from offshore aquaculture areas of eastern Fujian[D]. Fuzhou: Fujian Normal University, 2020 (in Chinese).
- [24] 张金婷, 孙华. 内梅罗指数法和模糊综合评价法在土壤重金属污染评价应用中的差异分析 [J]. *环境监测管理与技术*, 2016, 28(4): 27-31.
ZHANG J T, SUN H. Differences of nemerow index method and fuzzy comprehensive evaluation method in evaluation heavy metal pollution in soil [J]. *The Administration and Technique of Environmental Monitoring*, 2016, 28(4): 27-31 (in Chinese).
- [25] 沈宸宇, 闫钰, 于瑞莲, 等. APCS-MLR结合PMF模型解析厦门杏林湾近郊流域沉积物金属来源 [J]. *环境科学*, 2022, 43(5): 2476-2488.
SHEN C Y, YAN Y, YU R L, et al. APCS-MLR combined with PMF model to analyze the source of metals in sediment of xinglin bay suburban watershed, Xiamen [J]. *Environmental Science*, 2022, 43(5): 2476-2488 (in Chinese).
- [26] 匡荟芬, 胡春华, 吴根林, 等. 结合主成分分析法(PCA)和正定矩阵因子分解法(PMF)的鄱阳湖丰水期表层沉积物重金属源解析 [J]. *湖泊科学*, 2020, 32(4): 964-976.
KUANG H F, HU C H, WU G L, et al. Combination of PCA and PMF to apportion the sources of heavy metals in surface sediments from Lake Poyang during the wet season [J]. *Journal of Lake Sciences*, 2020, 32(4): 964-976 (in Chinese).
- [27] 雷国建, 陈志良, 刘千钧, 等. 广州郊区土壤重金属污染程度及潜在生态危害评价 [J]. *中国环境科学*, 2013, 33(S1): 49-53.
LEI G J, CHEN Z L, LIU Q J, et al. The assessments of polluted degree and potential ecological hazards of heavy metals in suburban soil of Guangzhou City [J]. *China Environmental Science*, 2013, 33(Sup 1): 49-53 (in Chinese).
- [28] 张开毕. 福建省近岸浅海沉积物地球化学环境质量 [J]. *海洋地质与第四纪地质*, 2008, 28(2): 45-52.
ZHANG K B. Geochemistry environment quality of littoral and neritic sediments in Fujian Province [J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 2008, 28(2): 45-52 (in Chinese).
- [29] 赵一阳, 鄢明才. 中国浅海沉积物化学元素丰度 [J]. *中国科学(B辑 化学 生命科学 地学)*, 1993, 23(10): 1084-1090.
ZHAO Y Y, YAN M C. Abundance of chemical elements in shallow sea sediments in China [J]. *Science in China, SerB*, 1993, 23(10): 1084-1090 (in Chinese).
- [30] 林绍霞, 柳小兰, 张转铃, 等. 贵州草海表层沉积物重金属污染特征与源解析 [J]. *农业环境科学学报*, 2021, 40(2): 390-399.
LIN S X, LIU X L, ZHANG Z L, et al. Heavy metal pollution characteristics and source apportionment in overlying deposits of Caohai Lake, Guizhou Province [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2021, 40(2): 390-399 (in Chinese).
- [31] 李丽蓉, 王玉杰, 秦玉春. 三亚市生活污水中的重金属分布特性研究 [J]. *资源节约与环保*, 2013(12): 162.
LI L R, WANG Y J, QIN Y C. Study on distribution characteristics of heavy metals in domestic sewage in Sanya City [J]. *Resources Economization & Environmental Protection*, 2013(12): 162 (in Chinese).
- [32] 钱力. 永康市城市表层土壤重金属污染现状及来源分析[D]. 杭州: 浙江农林大学, 2015: 45-46.
QIAN L. Situation analysis and source identification of heavy metals pollution in the urban topsoil of Yongkang City[D]. Hangzhou: Zhejiang A & F University, 2015: 45-46. (in Chinese)
- [33] 黄磊, 孙桂华, 袁晓婕. 福建近岸海域表层沉积物重金属、PCBs潜在生态风险评价 [J]. *海洋环境科学*, 2017, 36(2): 167-172, 185.
HUANG L, SUN G H, YUAN X J. Potential ecological risk assessment of heavy metals and PCBs in surface sediments at Fujian coastal sea area [J]. *Marine Environmental Science*, 2017, 36(2): 167-172, 185 (in Chinese).