

王海根, 顾效源, 王庆同, 等. 渤海海峡南部近百年来重金属沉积记录的环境意义[J]. 海洋地质前沿, 2024, 40(9): 73-83.

WANG Haigen, GU Xiaoyuan, WANG Qingtong, et al. Environmental significance of heavy metal deposition records in the last 100 years in the southern Bohai Strait[J]. Marine Geology Frontiers, 2024, 40(9): 73-83.

渤海海峡南部近百年来重金属沉积记录的环境意义

王海根^{1,2}, 顾效源^{1,2}, 王庆同^{1,2}, 杨鹏^{1,2}, 宇星辰^{1,2}, 张家浩^{1,2}, 毛方松^{1,2}, 葛祥威^{1,2}

(1 中国地质调查局烟台海岸带地质调查中心, 烟台 264000;

2 自然资源部黄河入海口陆海交互作用野外科学观测研究站, 烟台 264000)

摘要:对取自渤海海峡南部海域的柱状样沉积物进行了粒度、²¹⁰Pb 和 ¹³⁷Cs 同位素测年和重金属元素含量分析,并用地累积指数和潜在生态风险指数法评价了研究区近百年来重金属污染的过程及程度。结果表明:柱状样沉积物的平均沉积速率为 0.505 cm/a,重金属元素的含量与平均粒径在垂向上的变化趋势基本一致,表现出一定的粒级效应;各元素的地累积指数表明,研究区重金属污染程度较低;潜在生态风险指数则表明,研究区重金属处于中等潜在生态风险,且自 2013 年以来呈明显降低的趋势。重金属沉积记录显示出 3 个阶段特征:1977 年以前,经济发展缓慢的阶段;1977—2001 年,改革开放以来经济快速发展和环境问题突出的阶段;2001—2021 年,经济发展与环境保护并行的阶段。研究区沉积物重金属含量的变化受控于沉积环境的变化和人类活动的共同作用。

关键词:重金属;沉积记录;环境意义;污染评价;渤海海峡

中图分类号:P736.2;P736.4

文献标识码:A

DOI:10.16028/j.1009-2722.2024.024

0 引言

随着环渤海地区的经济高速发展,大量的重金属元素通过地表径流和大气沉降等方式进入渤海,并通过附着于悬浮颗粒沉降于沉积物中^[1]。柱状沉积物中的重金属元素可以反映海洋地质和环境信息,揭示重金属污染状况。其含量随时间的变化特征能够反映不同时期自然因素和人类活动作用的强弱^[2]。因此,可以通过重金属元素含量在垂向上的变化特征来揭示人类活动对环境的影响。利用同位素测年结合柱状样中重金属元素含量垂向上的变化特征,可以定量评价一定时间尺度内沉积物重金属污染情况和沉积演化特征,进而探讨人类活动对重金属元素迁移和沉积的影响^[3-4]。

目前,针对渤海的重金属研究主要集中在渤海湾^[5-7]、辽东湾^[8-9]、莱州湾^[10-11]表层沉积物重金属

的分布特征和风险评价等方面,一些学者在整个渤海区域^[12-13]也开展了表层沉积物、潮滩^[14]以及沿岸河口^[15]柱状沉积物重金属元素的相关研究,结合同位素测年分析重金属元素的时空变化特征及其来源,认为重金属元素的分布受沉积物粒度和水动力条件的影响,稳定的沉积环境有利于重金属元素的沉积。为了进一步通过沉积物重金属质量浓度的年际变化特征掌握环境质量现状及其动态变化趋势,恢复渤海海峡南部海域重金属的污染历史,探讨其对人类活动的响应,本文利用 2021 年在渤海海峡南部海域采集的柱状样,对其进行粒度、Pb 和 Cs 测年以及重金属、主量元素含量的测定,通过分析重金属元素的垂向分布特征,结合粒度和测年结果,揭示渤海海峡南部海域百年尺度的重金属沉积记录,利用地累积指数和潜在风险指数法对柱状样沉积物中重金属的污染状况进行评价,探讨经济发展和人类活动对研究区重金属沉积记录的影响。

1 研究区概况

渤海海峡地处山东半岛和辽东半岛之间,南北

收稿日期:2024-01-18

资助项目:中国地质调查局项目(DD20211578, DD20243125, DD20230412, DD20243132)

第一作者:王海根(1987—),男,工程师,主要从事海洋与海岸带环境地质方面的研究工作。E-mail:183649943@qq.com

分别连接登州角和老铁山角,海峡中南部为庙岛群岛,发育老铁山水道、长山水道、登州水道等主要水道,地形条件复杂,沉积物类型丰富^[16-18]。研究区位于渤海海峡南部,大黑山岛西侧海域,水深为16~22 m,潮汐为不规则半日潮。渤海海峡连接渤海和黄海,是渤海和黄海物质交换的通道,周边入海河流是渤海陆源沉积物的主要来源^[19],其中黄河的输沙量占周边主要入海河流的约90%,是影响渤海沉积物特征和沉积作用的重要因素^[20]。随着人工养殖区的增多和近岸污染的加剧,海洋生态环境日益恶化,2021年中国海洋生态环境状况公报显示,

渤海劣四类水质面积为1 600 km²,主要分布在辽东湾和渤海湾近岸海域。

2 材料与方法

2.1 样品采集

2021年10月,利用振动取样器在渤海海峡南部海域取得1根柱状样HZ12(37°57'07.81"N、120°31'45.84"E),样品岩性较单一,为灰黄色黏土质粉砂,水深16 m,采样位置如图1所示。

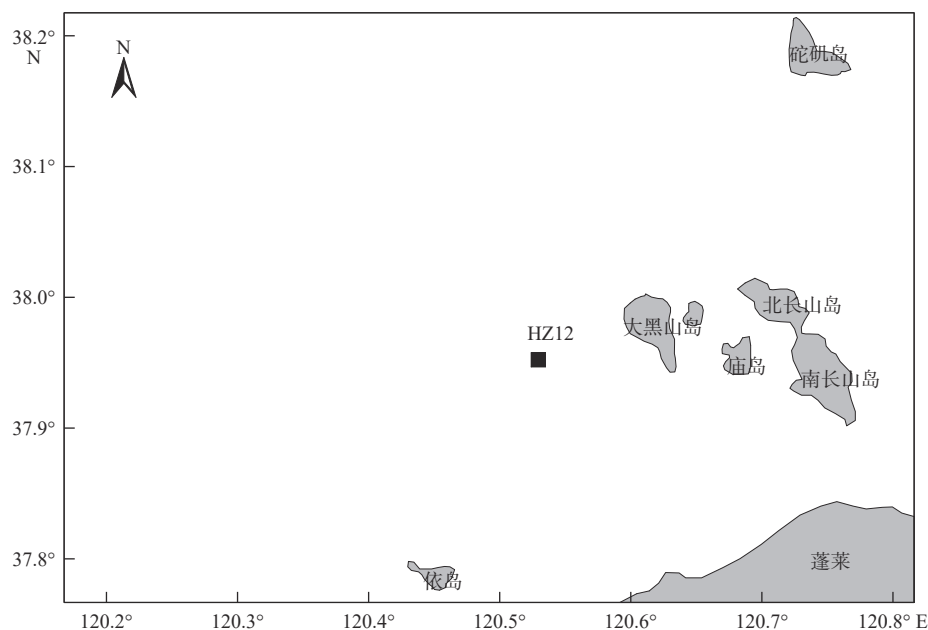


图1 柱状沉积物采样位置

Fig.1 Core sediments sampling site in the southern Bohai Strait

2.2 测试分析

按照2 cm间隔对柱状样品进行分样,用于粒度和测年分析;按照4 cm间隔进行分样,用于重金属元素测定。

粒度分析由中国地质调查局烟台海岸带地质调查中心实验室完成。采用安东帕PSA1190LD激光粒度仪对样品进行粒度测量,粒度测量范围为0.02~2 000 μm,多次测量的相对误差一般<2%。

测年由核工业北京地质研究院分析测试研究中心完成。样品经过烘干、研磨、过筛、称重后进行封蜡处理,采用GMX-50A-Plus高纯锗γ能谱仪测试²¹⁰Pb和¹³⁷Cs含量,利用²¹⁰Pb和²²⁶Ra的差值得到²¹⁰Pb_{ex}的比活度,结合²¹⁰Pb_{ex}的垂向分布特征计算沉积速率^[21-23]。

重金属元素测定由中国地质调查局烟台海岸带地质调查中心实验室完成。样品经过烘干、研磨、过筛、酸解后采用电感耦合等离子体质谱法(ICP-MS)对Ni、Cu、Pb、Cd、Zn元素进行检测,采用原子荧光光谱法(AFS)对As、Hg元素进行检测,为确保测试结果的准确性,分析过程中样品按规范要求加10%空白样和3次平行样进行测定,并随机插入标准样品GBW07307a、GBW07308a进行质量控制,测试过程未受到污染,相对偏差<5%,测试结果可靠。

2.3 评价方法

2.3.1 地累积指数

1969年德国科学家MÜLLER^[24]提出了地累积指数法,在评价土壤重金属污染程度方面有比较广泛的应用,其公式为

$$I_{\text{geo}} = \log_2 \left(\frac{C_i}{k \times S_i} \right)$$

式中: I_{geo} 为重金属元素 i 的地累积指数;

C_i 为重金属元素 i 的含量;

S_i 为沉积物中重金属元素的背景值, 本文采用中国陆架海洋沉积物中重金属丰度值^[25]。

k 为背景系数, 考虑到岩石岩性变化率, $k=1.5$ 。

2.3.2 潜在生态风险指数

潜在生态风险指数法是由 HAKANSON^[26] 提出对重金属污染进行评价的方法, 结合重金属背景值和毒性系数系统评价重金属潜在污染程度。

$$RI = \sum_{i=1}^m E_r^i = \sum_{i=1}^m T_r^i \cdot \frac{C_s^i}{C_n^i}$$

式中: RI 为综合潜在生态风险指数;

E_r^i 为单因子潜在生态风险指数;

C_s^i 为重金属 i 的实测值;

C_n^i 为中国陆架海洋沉积物中重金属丰度值;

T_r^i 为重金属毒性系数, 本文选取 As、Hg、Cr、Zn、Cu、Ni、Pb 的毒性系数分别为 10、40、2、1、5、5、5^[27]。

3 结果

3.1 沉积速率

柱状样品 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 的测试结果如图 2 所示, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 随深度的变化呈现出比较明显的三段式特征, 表层 0~6 cm 是由于受表层沉积物混合的影响而导致的扰动段^[28], 6~42 cm 呈现指数型衰减, 42 cm 以下为背景值段。根据线性拟合的结果, 按照常量初始浓度(CIC)模式计算 6~42 cm 深度的平均沉积速率为 0.505 cm/a, 与前人在附近海域得到的 ^{210}Pb 沉积速率基本一致^[29]。

^{137}Cs 垂向放射性活度曲线有 2 个峰值, 在 26 cm 处出现最大蓄积峰, 基本判定为 1963 年, 在 10 cm 处出现次蓄积峰, 基本判定为 1986 年, 由此得出 0~10 cm 的沉积速率为 0.286 cm/a, 10~26 cm 的沉积速率为 0.696 cm/a, 0~26 cm 的沉积速率为 0.448 cm/a, 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在 6~42 cm 深度的沉积速率基本一致。渤海海峡南部海域沉积物的年代框架由 ^{210}Pb 进行标定, 0 cm 处为采样时间 2021 年, 按照 0.505 cm/a 的沉积速率标定各层年代。

前人研究表明, 黄河口及莱州湾西部海域沉积

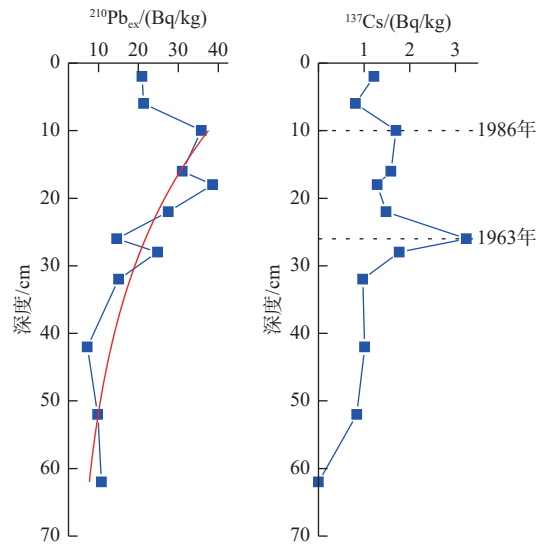


图 2 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 垂向放射性活度曲线

Fig.2 Vertical curves of ^{210}Pb and ^{137}Cs radioactivity

速率最高可达 9 cm/a, 辽东湾沉积速率较低, 渤海海峡附近海域沉积速率也相对偏低, 接近 0.4 cm/a, 黄海海域的现代沉积速率较低, 一般为 0.3 cm/a。整体而言, 渤海海域的现代沉积速率高于黄海, 这与渤海海域较高的沉积物沉积通量有关, 百年尺度内渤海沉积物年均沉积通量约占中国东部海域的 32%^[30]。

3.2 沉积物粒度特征

沉积物粒度的变化受沉积环境的影响, 粒度的参数特征是研究沉积环境的重要指标。HZ12 柱状样沉积物的粒度参数特征如图 3 所示, 粉砂的含量为 41.74%~83.47%, 平均为 69.83%, 砂的含量为 6.91%~56.50%, 平均为 24.43%, 黏土的含量为 1.76%~11.51%, 平均为 5.75%。沉积物的平均粒径为 3.87 Φ ~5.69 Φ , 平均为 4.82 Φ , 粒度的垂向变化基本表现为从上至下粒度逐渐变粗的趋势, 同时伴随着一定深度区间内的突变, 反映出不同时期沉积环境的差异(图 3)。分选系数为 0.76~1.60, 平均为 1.20, 分选较差; 偏态为 0.06~0.41, 平均为 0.29, 属正偏; 沉积物颗粒以细粒为主, 峰态为 1.03~1.58, 平均为 1.30。从图中可以看出(图 3), 柱状样上部 0~20 cm 沉积的分选系数、偏态和峰态的变化较小, 而柱状样下部这些参数波动显著, 推测沉积环境发生了显著变化。

3.3 重金属垂向分布特征

沉积物重金属元素的垂向变化特征如图 4 所

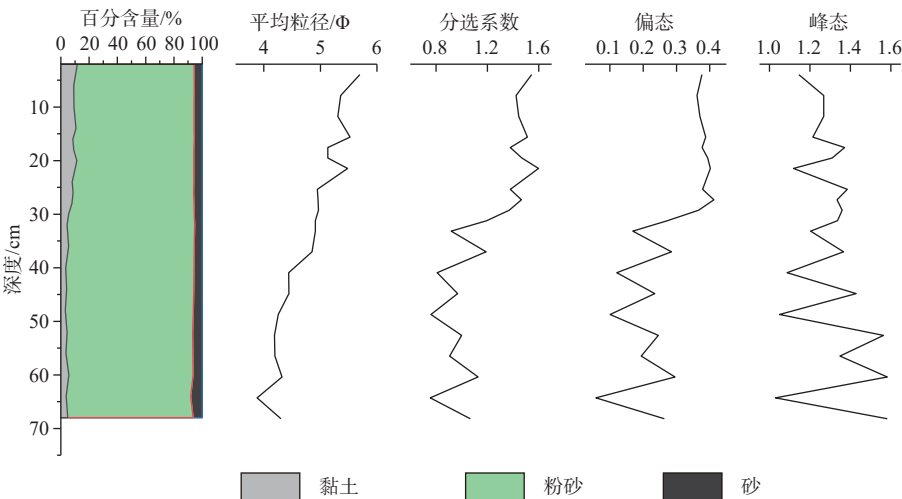


图3 粒度参数的垂向分布

Fig.3 Vertical distribution of the grain size parameters

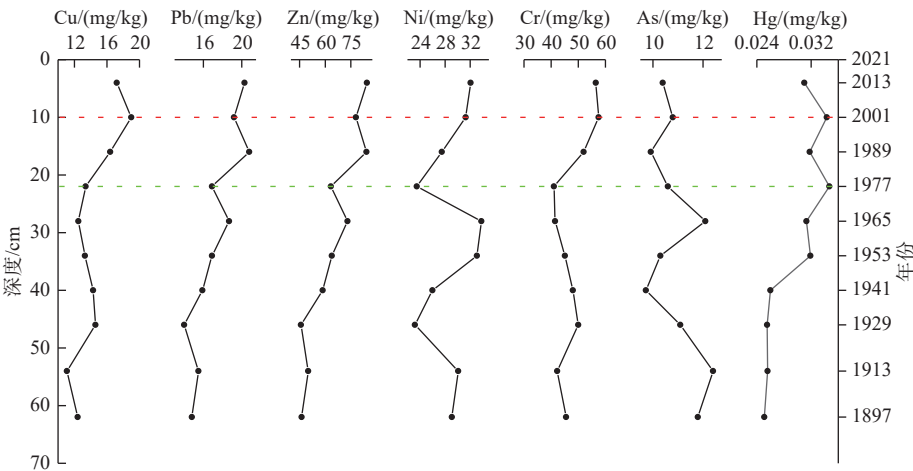


图4 重金属含量的垂向分布

Fig.4 Vertical distribution of the heavy metals contents

示。Cu、Pb、Zn、Ni、Cr、As、Hg 的含量分别为 11.1~19、14~20.8、45.9~84.3、23.2~33.8、41~57.5、9.72~12.4、0.025 1~0.034 7 mg/kg, 平均含量分别为 14.42、17.3、64.74、28.97、47.93、10.91、0.029 7 mg/kg。

与周边海域沉积物重金属含量相比(表 1), 研究区重金属平均含量低于渤海湾和莱州湾, 略高于渤海海峡, 主要原因是黄河入海物质部分在入海口

发生沉积, 部分在洋流的作用下向东北方向运移至渤海湾沉积或向东南方向运移至莱州湾沉积, 使得渤海湾、莱州湾以及河口地区沉积速率较高^[29], 因而沉积的重金属元素含量较多。还有少量入海物质在山东半岛沿岸流的作用下通过渤海海峡运移至北黄海, 其中一部分在运移途中落於, 使得渤海海峡南部海域沉积物质相对较多, 重金属含量略高于渤海海峡整体平均含量。

表 1 渤海不同海域沉积物重金属平均含量

Table 1 The average content of heavy metals in sediments in different sea areas of the Bohai Sea								mg/kg
海域	Cu	Pb	Zn	Ni	Cr	As	Hg	参考文献
渤海湾	28.02	24.34	87.63	33.00	72.36	11.81	0.03	[13]
莱州湾	18.59	20.74	57.20	26.72	61.44	11.47	0.05	[13]
渤海海峡	14.28	22.01	48.80	18.89	46.88	7.72	0.03	[13]
渤海海峡南部	14.42	17.30	64.74	28.97	47.93	10.91	0.029 7	本研究

在垂向分布上, Cu 的含量在 10 cm 以浅随深度不断增加, 在 10 cm 以深其含量呈降低趋势; Pb、Zn 的含量随深度增加不断降低, 且二者趋势基本一致; Ni 的含量随深度增加呈先降低后升高的趋势, 在 28 cm 处出现最大值; Cr 的含量在 22 cm 以浅随深度增加不断降低, 之后随深度缓慢升高; As 的含量在波动中呈上升的趋势, 在 54 cm 处出现最大值; Hg 的含量在波动中呈下降的趋势。整体来看, Cu、Pb、Zn、As、Hg 的含量均为随深度增加而降低, 深度 10 cm 处即 2001 年存在拐点; Pb、Zn、Ni、Hg 在 22 cm 处即 1977 年发生突变, 且基本均表现出随深度有一定的波动, 说明研究区重金属含量的变化不仅受自然条件的限制, 且明显受到了人为作用

的影响。

3.4 相关性分析

相关系数是用于研究变量之间相关程度的一种统计性指标^[31]。研究区重金属的相关性系数如图 5 所示, 除了 As 以外, 其他重金属元素的含量均与黏土、平均粒径呈正相关关系, 表明该区域重金属元素主要富集于细颗粒的沉积物中, 沉积物粒度影响着重金属的分布。Pb 和 Zn 的相关系数为 0.99, Cr 和 Cu 的相关系数为 0.93, 存在极显著的正相关关系, 推测 Pb 和 Zn、Cr 和 Cu 具有相似的物质来源和迁移特征。

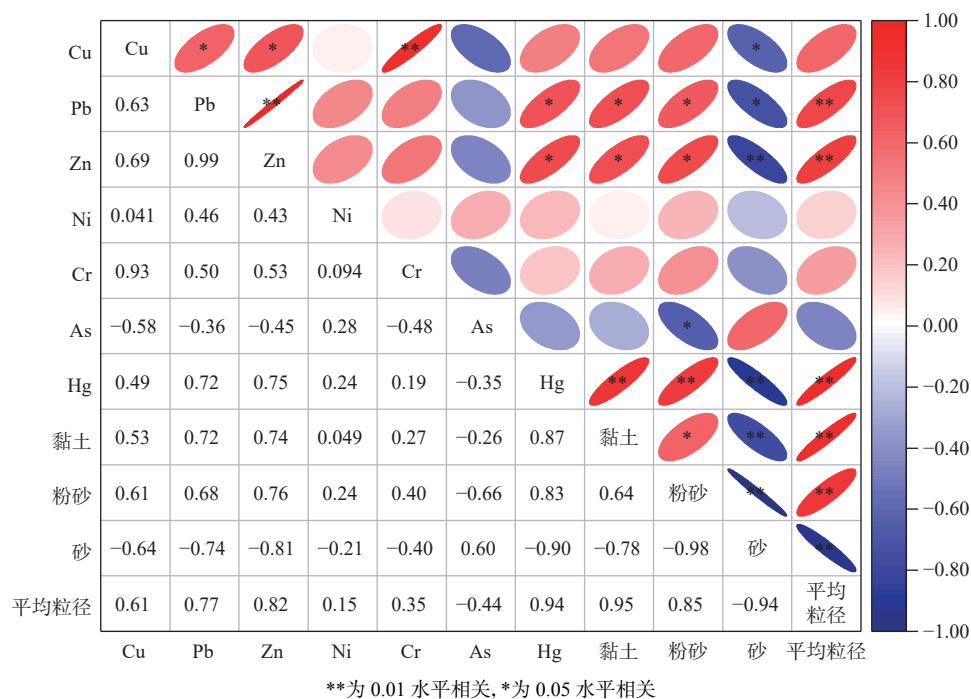


图 5 重金属相关性分析

Fig.5 Correlation analysis results of the heavy metals

3.5 地累积指数

柱状样中 7 种重金属的地累积指数平均值均 < 0, 未受到污染, 其垂向分布特征如图 6 所示, 与重金属含量的垂向分布特征基本保持一致, 10 cm 以浅即 2001 年以来 Pb、Zn、Ni 的地累积指数呈不同程度的上升趋势, Cu、Cr、As、Hg 的地累积指数则逐渐降低。22~10 cm 深度内即 1977—2001 年 Cu、Ni、Cr 的地累积指数均为逐渐上升的趋势, Pb、Zn、As、Hg 则呈现波动中不断上升的趋势, 22 cm 以深均表现为随深度增加而波动中降低的趋势。

3.6 潜在风险指数

柱状样中 Hg 的单因子潜在风险指数平均值为 48, 属于中等潜在生态风险, 其余元素的单因子潜在风险指数平均值均 < 40, 属于低潜在生态风险, 重金属元素的潜在风险指数与其含量的垂向分布特征基本一致(图 7)。柱状样综合潜在生态风险指数平均值为 80, 属于中等潜在生态风险, 10 cm 以浅综合潜在生态风险指数逐渐降低, 22~10 cm 深度内综合潜在生态风险指数波动中上升, 在 10 cm 处达到最大值。0~34 cm 深度内, 重金属元素的综

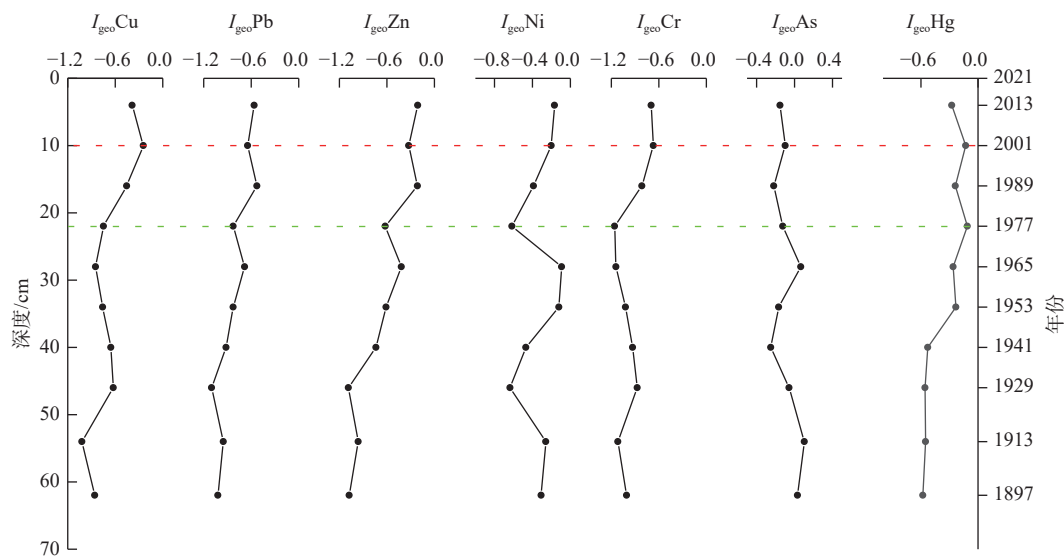


图 6 地累积指数的垂向分布

Fig.6 Vertical distribution of geoaccumulation index

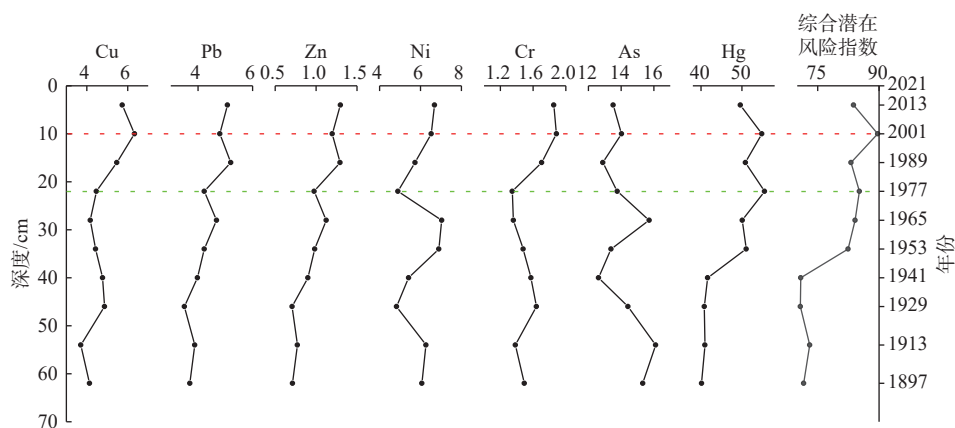


图 7 潜在生态风险指数的垂向分布

Fig.7 Vertical distribution of potential ecological risk index

合潜在生态风险指数均 >80 ,表明从 1953 年以来,新中国刚刚成立,百废待兴,工业经济迅速发展,造成重金属污染的加剧;自 2013 年以来,综合潜在生态风险指数明显降低,即党的“十八大”以来,绿水青山的发展理念取得实效。

4 讨论

4.1 重金属沉积记录

研究区内重金属含量与平均粒径均呈不同程度的正相关,为了减弱粒度对重金属含量的影响,本文对 7 种重金属进行归一化处理。AI 是黏土矿物的主要组分,其含量是表征粒度粗细的重要指标,所以采用 AI 元素为参比元素进行归一化处理^[32],重金属元素含量经 AI 校正后的垂向分布特征变化

波动较小(图 8)。渤海沉积物主要来源于黄河,同时也受周边其他河流的共同作用。除了受物源影响外,重金属含量的变化还受经济发展、工业污水排放等人类活动的影响^[4,33]。因此,根据山东省 GDP 和工业污水排放以及黄河入海重金属通量和渤海海域水质的年际变化特征,结合²¹⁰Pb 和¹³⁷Cs 测年结果和校正后的重金属含量垂向分布特征,将渤海海峡南部重金属的沉积历史分为 3 个阶段:

第 1 阶段:1977 年以前,除了 Pb、Zn 和 Hg 元素含量略有波动以外,其余重金属元素含量基本保持不变。19 世纪 90 年代至 1977 年,中国经济发展停滞不前,导致人类活动产生的重金属元素含量相对较少,渤海表层沉积物中重金属富集程度也相应较低^[34]。

第 2 阶段:1977—2001 年,重金属元素含量均呈现波动中不断上升的趋势,其中,Cu、Cr 上升幅

度较大。1978 年改革开放以后, 环渤海地区工业化开始蓬勃发展, 山东省 GDP 增长了约 8 倍^[35-36], 经济高速增长的同时也产生了大量的重金属污染物, 沿黄河和渤海周边入海河流排放至渤海。据统计, 山东省工业废水排放量由 1981 年的 87 637 万 t 增加至 2001 年的 115 233 万 t^[36], 1976—2001 年黄河口底泥中重金属 Cu、Pb、Zn、Hg、Zn 的含量增长约 2 倍^[37], 渤海沉积物中重金属元素含量大幅升高。

第 3 阶段: 2001—2021 年, Ni、Cr、As 重金属元素含量均呈现不断上升的趋势, 但上升幅度不大, Cu 和 Hg 的含量逐步降低, Pb、Zn 重金属含量则呈现较大幅度的增长。21 世纪以来, 国内经济突飞猛进, 山东省 GDP 增长了约 9 倍, 而同时 2010 年工

业废水的排放量达到最高值 208 257 万 t。2010 年出台的《中华人民共和国环境保护法》对废水排放进行了严格限制^[12], 随后工业废水的排放量逐步降低至 133 854 万 t^[36]。黄河入海的重金属年均总量由 2000 年的 260 t 增加至 2006 年的 1 251 t, 2009 年降低至 731 t^[38]。中国近岸海域生态环境质量公报显示, 渤海海域四类和劣四类海水 2001 年占 44.9%, 2004 年达到最高, 占 45.3%, 2017 年降低至 17.3%。以上数据资料表明, 煤炭燃烧、化工、交通等行业的迅速发展导致重金属元素含量增加, 而随着国家绿色发展理念主导企业实施节能减排举措的实施, 使得在经济增长的同时保持重金属污染物排放逐渐降低。因此, 研究区重金属含量的变化与经济社会的发展以及人类活动密切相关。

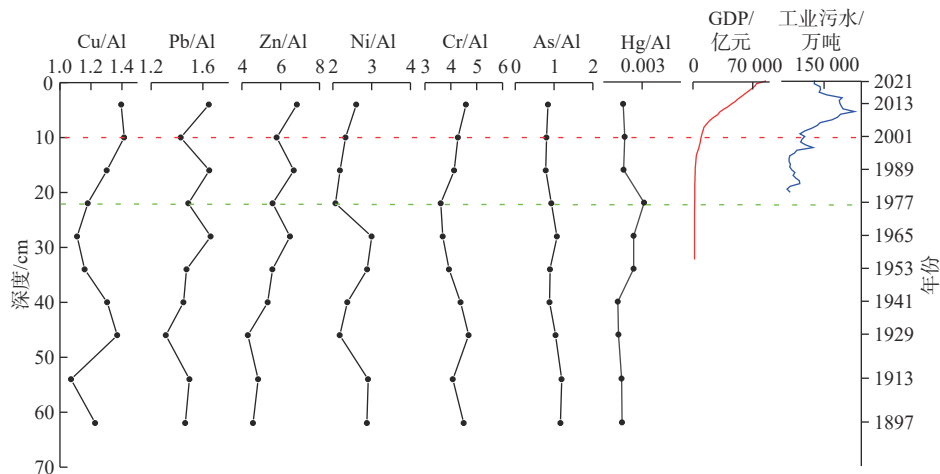


图 8 归一化后的重金属含量垂向分布

Fig. 8 Vertical distribution of the heavy metals contents after normalization

4.2 重金属污染评价

研究区柱状样重金属含量垂向分布特征基本表现为随深度逐渐降低的趋势, 表层元素含量要高于底部, 这与污染物质输入的增加以及表层沉积物所处的氧化环境有关^[15]。地累积指数显示研究区重金属元素均处于无污染状态, 重金属污染程度由强到弱分别是 As>Ni>Hg>Zn>Cu>Pb>Cr, 在垂向上按照划分的 3 个重金属沉积阶段可以发现, 重金属地累积指数的平均值由第 1 阶段向第 3 阶段逐渐升高, 且第 1 阶段到第 2 阶段的增长幅度最大, 与 1977—2001 年环渤海地区工业化高速发展的实际相对应^[34]。

综合潜在生态风险指数分级显示, 研究区处于中等潜在生态风险, 按照重金属沉积 3 个阶段来看,

综合潜在生态风险指数平均值表现为先升高后降低的趋势, 与环渤海地区经济的高速发展阶段和经济发展与生态环境保护并行的阶段相对应。单因子潜在生态风险指数由高到低分别是 Hg>As>Ni>Cu>Pb>Cr>Zn, 且只有 Hg 处于中等潜在生态风险, 这一结果与地累积指数略有不同, 主要原因是在潜在生态风险评价中 Hg 的毒性系数较高, 导致其潜在生态风险也相对较高^[39]。1977—2001 年, 除了 As 的单因子潜在风险指数波动中上升外, 其余元素的单因子潜在风险指数均呈不断上升的趋势, 且综合潜在风险指数在 2001 年达到最高值, 表明改革开放后, 经济的高速增长和人类活动共同影响着渤海南部海域的生态环境质量。

地累积指数和潜在生态风险指数在垂向上的分布均与重金属含量的垂向分布保持一致, 且在垂

向变化中均有不同程度的波动,主要是由于研究区重金属含量不仅受人类活动制约,而且也受沉积物自身理化性质的控制,表明重金属元素除了外源输入,沉积物自然特征也是影响重金属含量的主要因素^[40]。

4.3 沉积环境变化特征

渤海是半封闭型的陆架浅海,接受周边入海河流携带的陆源物质。同时,渤海洋流主要受黄海暖流和沿岸流的共同作用,影响着沉积物的运移。现代沉积速率受物源和沉积环境的影响,与周边海域现代沉积速率相比^[21],研究区沉积速率相对较低,黄河口、莱州湾、渤海湾以及辽东湾内的沉积速率较高,主要原因是入海河流携带的大量陆源沉积物中的粗颗粒会沉积在入海口处,而细颗粒物质随着洋流的作用在三大海湾中沉积,导致海湾区域沉积速率相对较高,而研究区位于渤海海峡南部,黄河输入的陆源物质一部分在此处沉积,一部分在山东半岛沿岸流的作用下通过渤海海峡进入黄海,导致研究区接受的陆源沉积物相对较少。

柱状沉积物重金属含量与平均粒径在垂向上的变化趋势基本一致,随着粒径的变细体现了一定的元素粒度控制规律。沉积物粒度能够直接反映沉积物特征并指示不同沉积环境的变化^[41],垂向上平均粒径逐渐变小,但在16~14和22~20 cm段平均粒径明显变大,表明此阶段研究区处于高能的水动力环境^[42];在4~10 cm段平均粒径变化不大,但Pb、Zn、Ni的含量却急剧上升,表明此阶段内重金属含量的变化与水动力的关系不大,主要原因可能是陆源输入中重金属元素的含量增多。

重金属元素附着在颗粒悬浮物上沉积在底泥中,其含量受沉积作用的影响。研究区计算得到的沉积速率与前人在渤海海峡南部海域获得的沉积速率接近^[29],说明百年来研究区海域的沉积环境处于相对稳定的状态。²¹⁰Pb比活度在垂向上表现出明显的三段式特征,表明研究区海域在一定时间内受较强水动力环境的影响^[43]。已有研究在渤海海域利用沉积物年代学结合沉积物质量计算得到沉积物质量累积速率与线性沉积速率结果一致,因此,利用沉积物质量累积速率可以反映线性沉积速率的变化^[44]。根据研究区重金属含量垂向的变化特征划分了3个沉积阶段,分别对应已有研究沉积物质量累积速率变化的3个阶段,即1946—1969年几乎保持不变、1970年之后随时间波动呈增大趋

势和1996年以后变化趋缓,表明重金属元素含量垂向变化受沉积环境的影响。因此,研究海域沉积物中重金属元素含量变化不仅受陆源污染物质的输入和水动力条件的影响,还受沉积环境的制约。

5 结论

(1)研究区柱状沉积物粒度在垂向上基本表现为自上而下逐渐变粗的趋势,同时伴随着一定深度区间内的突变;平均沉积速率为0.505 cm/a,低于渤海其他海域的现代沉积速率。

(2)重金属元素含量呈现自下而上波动中不断升高的趋势。地累积指数和潜在生态风险指数变化趋势与重金属含量的变化基本一致,地累积指数显示研究区未受污染,综合潜在生态风险指数则表明研究区处于中等潜在生态风险。

(3)对重金属含量归一化处理后,可将重金属沉积记录划分为3个阶段:第1阶段(1977年以前)重金属含量基本保持不变;第2阶段(1977—2001年)重金属含量波动中不断上升;第3阶段(2001—2021年)重金属增速逐渐减缓。

(4)研究海域沉积物中的重金属含量变化受沉积环境和陆源污染物输入的共同作用,人类活动对其含量的变化影响显著。

参考文献:

- [1] VALLIUS H. Heavy metal content rations in sediment cores from the northern Baltis Sea: declines over the last two decades[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2014, 79(12): 359-364.
- [2] 万瑞安, 胡恭任, 韩璐, 等. 厦门西港近岸海域柱状沉积物重金属形态分布及生态风险评价[J]. *华侨大学学报(自然科学版)*, 2019, 40(4): 515-521.
WAN Ruian, HU Gongren, HAN Lu, et al. Speciation and ecological risk assessment of heavy metals in coastal core sediments from Xiamen Western Bay[J]. *Journal of Huaqiao University(Natural Science)*, 2019, 40(4): 515-521.
- [3] 刘月, 程岩, 杜益晓, 等. 1939年以来鸭绿江中游重金属的沉积记录[J]. *海洋湖沼通报*, 2023, 45(2): 55-63.
LIU Yue, CHENG Yan, DU Yixiao, et al. Sedimentary records of heavy metals in the middle reaches of the Yalu River since 1939[J]. *Transactions of Oceanology and Limnology*, 2023, 45(2): 55-63.
- [4] 张振, 刘健, 陈彬, 等. 浙江近岸泥质区近140年来重金属元素沉积记录及其对长江流域人类活动的响应[J]. *海洋地质与第四纪地质*, 2016, 36(3): 23-33.
ZHANG Zhen, LIU Jian, CHEN Bin, et al. Depositional records of heavy metals for the last 140 years in the Zhejiang

- coastal muddy area of the Yangtze River Basin and their responses to human activities[J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 2016, 36(3): 23-33.
- [5] 毛天宇, 戴明新, 彭士涛, 等. 近10年渤海湾重金属(Cu, Zn, Pb, Cd, Hg)污染时空变化趋势分析[J]. *天津大学学报*, 2009, 42(9): 817-825.
- MAO Tianyu, DAI Mingxin, PENG Shitao, et al. Temporal-spatial variation trend analysis of heavy metals (Ca, Zn, Pb, Cd, Hg) in Bohai Bay in 10 years[J]. *Journal of Tianjin University*, 2009, 42(9): 817-825.
- [6] Hu B Q, Li G G, Li J, et al. Spatial distribution and ecotoxicological risk assessment of heavy metals in surface sediments of the southern Bohai Bay, China[J]. *Environmental Science & Pollution Research*, 2012, 20(6): 4099-4110.
- [7] 陈秀, 李爽兆, 袁德奎, 等. 渤海湾沉积物重金属的分布特征及影响因素[J]. *海洋科学进展*, 2017, 35(3): 382-391.
- CHEN Xiu, LI Shuangzhao, YUAN Dekui, et al. Distribution characteristics of sediment heavy metals in Bohai Bay and its effect factors[J]. *Advances in Marine Science*, 2017, 35(3): 382-391.
- [8] 蓝先洪, 孟祥君, 梅西, 等. 辽东湾表层沉积物的重金属污染特征与质量评价[J]. *海洋学报*, 2018, 40(6): 60-73.
- LAN Xianhong, MENG Xiangjun, MEI Xi, et al. Pollution characteristics and quality assessment of heavy metals in surface sediments from the Liaodong Bay[J]. *Acta Oceanologica Sinica*, 2018, 40(6): 60-73.
- [9] 陈生涛, 苗安洋, 温婷婷, 等. 辽东湾表层沉积物重金属污染特征及潜在生态危害评价[J]. *海洋环境科学*, 2019, 38(2): 256-262.
- CHEN Shengtao, MIAO Anyang, WEN Tingting, et al. Heavy metals in the surface sediment of Liaodong Bay and their potential ecological risk[J]. *Marine Environmental Science*, 2019, 38(2): 256-262.
- [10] 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[J]. *生态环境学报*, 2010, 19(2): 262-269.
- LUO Xianxiang, ZHANG Rui, YANG Jianqiang, et al. Distribution and pollution assessment of heavy metals in surface sediment in Laizhou Bay[J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2010, 19(2): 262-269.
- [11] 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 Yunying, PEI Shaofeng, LIAO Mingwen, 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.
- [12] 许艳, 王秋璐, 李潇, 等. 环渤海典型海湾沉积物重金属环境特征与污染评价[J]. *海洋科学进展*, 2017, 35(3): 428-438.
- XU Yan, WANG Qiulu, LI Xiao, et al. Distribution and pollution assessment of heavy metals in sediments from typical bays in the Bohai Sea[J]. *Advances in Marine Science*, 2017, 35(3): 428-438.
- [13] 朱爱美, 张辉, 崔菁菁, 等. 渤海沉积物重金属环境质量评价及其影响因素[J]. *海洋学报*, 2019, 41(12): 134-144.
- ZHU Aimei, ZHANG Hui, CUI Jingjing, et al. Environmental quality assessment and influence factor of heavy metals in the surface sediments from the Bohai Sea[J]. *Acta Oceanologica Sinica*, 2019, 41(12): 134-144.
- [14] 秦延文, 孟伟, 郑丙辉, 等. 渤海湾天津段潮间带沉积物柱状样重金属污染特征[J]. *环境科学*, 2006, 27(2): 268-273.
- QIN Yanwen, MENG Wei, ZHENG Binghui, et al. Contaminative features of heavy metals for tidal sediment cores in Tianjin Bohai Bay[J]. *Environmental Science*, 2006, 27(2): 268-273.
- [15] 于文金, 邹欣庆, 朱大奎. 曹妃甸老龙口现代沉积环境及重金属污染特征研究[J]. *中国环境科学*, 2011, 31(8): 1366-1376.
- YU Wenjin, ZOU Xinqing, ZHU Dakui. CaoFeidian Laolongkou modern sedimentary environments and heavy metal pollution[J]. *China Environmental Science*, 2011, 31(8): 1366-1376.
- [16] 成海燕, 姜胜辉, 张超, 等. 渤海海峡表层沉积物地球化学特征[J]. *海洋地质前沿*, 2020, 36(8): 19-28.
- CHENG Haiyan, JIANG Shenghui, ZHANG Chao, et al. Geochemical characteristics of surface sediments in Bohai Strait and controlling factors[J]. *Marine Geology Frontiers*, 2020, 36(8): 19-28.
- [17] 张伟, 周连成, 吴建政, 等. 渤海海峡南部海域表层沉积物分布特征及控制因素[J]. *海洋地质与第四纪地质*, 2015, 35(5): 19-28.
- ZHANG Wei, ZHOU Liancheng, WU Jianzheng, et al. Distribution pattern of the surface sediments in southern Bohai Strait and controlling factors[J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 2015, 35(5): 19-28.
- [18] 虞义勇, 褚宏宪, 杨慧良, 等. 渤海海峡表层沉积物常量元素分布特征及其地质意义[J]. *海洋地质前沿*, 2019, 35(9): 51-62.
- YU Yiyong, CHU Hongxian, YANG Huiliang, et al. Distribution of major elements in surface sediments of Bohai Strait and its geological significance[J]. *Marine Geology Frontiers*, 2019, 35(9): 51-62.
- [19] 王海根, 王庆同, 杨鹏, 等. 庙岛群岛西部海域表层沉积物常量和稀土元素的分布特征及其物源指示意义[J]. *海洋通报*, 2023, 42(6): 695-706.
- WANG Haigen, WANG Qingtong, YANG Peng, et al. Distribution features of major elements and rare earth elements of the surface sediments in the western Miaodao Archipelago and their provenance implications[J]. *Haiyang Tongbao*, 2023, 42(6): 695-706.
- [20] 郑世雯, 范德江, 刘明, 等. 渤海中部现代黄河沉积物影响范围的稀土元素证据[J]. *中国海洋大学学报*, 2017, 47(6): 95-103.
- ZHENG Shiwen, FAN Dejiang, LIU Ming, et al. Rare earth element evidence for the modern Yellow River origin sediments in the middle Bohai Sea[J]. *Periodical of Ocean University of China*, 2017, 47(6): 95-103.

- [21] 王福,王宏,李建芬,等.渤海地区 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 同位素测年的研究现状[J].*地质论评*,2006,52(2):244-250.
WANG Fu, WANG Hong, LI Jianfen, et al. Current study of ^{210}Pb and ^{137}Cs Geochronology in the circum-Bohai Sea region[J]. *Geological Review*, 2006, 52(2): 244-250.
- [22] 柴社立,高丽娜,邱殿明,等.吉林省西部月亮湖沉积物的 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 测年及沉积速率[J].*吉林大学学报(地球科学版)*,2013,43(1):134-141.
CHAI Sheli, GAO Lina, QIU Dianming, et al. ^{210}Pb and ^{137}Cs dating of the sediment core and its recent accumulation rates in Yueliang Lake in west Jilin Province[J]. *Journal of Jilin University(Earth Science Edition)*, 2013, 43(1): 134-141.
- [23] 陈诗越,王苏民,陈影影,等.东平湖沉积物 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 垂直分布及年代学意义[J].*第四纪研究*,2009,29(5):981-987.
CHEN Shiyue, WANG Sumin, CHEN Yingying, et al. Vertical distribution and chronological implication of ^{210}Pb and ^{137}Cs in sediments of Dongping Lake, Shandong Province[J]. *Quaternary Sciences*, 2009, 29(5): 981-987.
- [24] MÜLLER G. Index of geo-accumulation in sediments of the Rhine River[J]. *GeoJournal*, 1969, 2(3): 108-118.
- [25] 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)*,1993,23(10):1084-1090.
ZHAO Yiyang, YAN Mingcai. Concentration of chemical elements of sediments in the China Shelf Sea[J]. *Science in China(series B)*, 1993, 23(10): 1084-1090.
- [26] HAKANSON L. An ecological risk index for aquatic pollution control. a sedimentological approach[J]. *Water Research*, 1980, 14(8): 975-1001.
- [27] 李一蒙,马建华,刘德新,等.开封城市土壤重金属污染及潜在生态风险评价[J].*环境科学*,2015,36(3):1037-1044.
LI Yimeng, MA Jianhua, LIU Dexin, et al. Assessment of heavy metal pollution and potential ecological risks of urban soils in Kaifeng City, China[J]. *Environmental Science*, 2015, 36(3): 1037-1044.
- [28] 万国江.现代沉积的 ^{210}Pb 计年[J].*第四纪研究*,1997,17(3):230-239.
WAN Guojiang. ^{210}Pb dating for recent sedimentation[J]. *Quaternary Sciences*, 1997, 17(3): 230-239.
- [29] 胡邦琦,李国刚,李军,等.黄海、渤海铅-210沉积速率的分布特征及其影响因素[J].*海洋学报*,2011,33(6):981-987.
HU Bangqi, LI Guogang, LI Jun, et al. Spatial variability of the ^{210}Pb sedimentation rates in the Bohai and Huanghai Seas and its influencing factors[J]. *Acta Oceanologica Sinica*, 2011, 33(6): 981-987.
- [30] 李军,胡邦琦,窦衍光,等.中国东部海域泥质沉积区现代沉积速率及其物源控制效应初探[J].*地质论评*,2012,58(4):745-756.
LI Jun, HU Bangqi, DOU Yanguang, et al. Modern sedimentation rate budget and supply of the muddy deposits in the East China Seas[J]. *Geological Review*, 2012, 58(4): 745-756.
- [31] 孟利,左锐,王金生,等.基于PCA-APCS-MLR的地下水污染源定量解析研究[J].*中国环境科学*,2017,37(10):3773-3786.
MENG Li, ZUO Rui, WANG Jinsheng, et al. Quantitative source apportionment of groundwater pollution based on PCA-APCS-MLR[J]. *China Environmental Science*, 2017, 37(10): 3773-3786.
- [32] 李红军,程岩,刘月,等.鸭绿江口重金属沉积记录的环境意义[J].*环境科学学报*,2017,37(6):2296-2306.
LI Hongjun, CHENG Yan, LIU Yue, et al. Environmental significance of heavy metals in the core sediments of the Yalu River estuary[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2017, 37(6): 2296-2306.
- [33] 刘希青,韩宗珠,艾丽娜,等.渤海中部BZ01与B62孔岩芯粘土矿物组成和稀土元素地球化学特征对物源的指示意义[J].*中国海洋大学学报*,2018,48(增刊1):106-114.
LIU Xiqing, HAN Zongzhu, AI Li'na, et al. Composition of clay minerals and REE geochemical characteristics of BZ01 and B62 core and provenance analysis in the center of Bohai Sea[J]. *Periodical of Ocean University of China*, 2018, 48(S1): 106-114.
- [34] 林霖,苗晓明,韩宗珠,等.渤海中部海域黏土粒级沉积物中重金属的变化及其对160年来人类活动的指示[J].*海洋环境科学*,2022,41(1):99-105.
LIN Lin, MIAO Xiaoming, HAN Zongzhu, et al. Changes in heavy metals in clay-grain sediments in the Bohai Sea and their indication of human activity over the past 160 years[J]. *Marine Environmental Science*, 2022, 41(1): 99-105.
- [35] CHEN B, FAN D J, LI W R, et al. Enrichment of heavy metals in the inner shelf mud of the East China Sea and its indication to human activity[J]. *Continental Shelf Research*, 2014, 90: 163-169.
- [36] 山东省统计局.山东统计年鉴[M].北京:中国统计出版社,2022:41-250.
Shandong Provincial Bureau of Statistics. Shandong Statistics Yearbook[M]. Beijing: China Statistics Press, 2022: 41-250.
- [37] 刘成,何耘,王兆印.黄河口的水质、底质污染及其变化[J].*中国环境监测*,2005,21(3):58-61.
LIU Cheng, HE Yun, WANG Zhaoyin. Water and sediment pollutions and their changes at the Yellow River Mouth[J]. *Environmental Monitoring in China*, 2005, 21(3): 58-61.
- [38] 霍素霞,邢聪聪,朱超祁,等.渤海沉积物重金属含量时间演化特征及影响因素研究[J].*中国海洋大学学报*,2017,47(10):42-49.
HUO Suxia, XING Congcong, ZHU Chaoqi, et al. The temporal distribution characters of heavy metal contents and its influence factors on sediments in Bohai Sea[J]. *Periodical of Ocean University of China*, 2017, 47(10): 42-49.
- [39] 杨颖,孙文,刘吉宝,等.北运河流域沙河水库沉积物重金属分布及生态风险评估[J].*环境科学学报*,2021,41(1):217-227.
YANG Ying, SUN Wen, LIU Jibao, et al. Distribution and ecological risk assessment of heavy metals in sediments of Shahe Reservoir in Northern Canal Basin[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2021, 41(1): 217-227.
- [40] 张栋华,吕钊臻,邵主峰,等.胶州湾沉积物柱状样重金属垂

- 向分布特征及其控制因素 [J]. 海洋环境科学, 2020, 39(5): 664-675.
- ZHANG Donghua, LYU Zhaozhen, SHAO Zhufeng, et al. The vertical distribution patterns of heavy metals in a sediment core of the Jiaozhou Bay and their controlling factors[J]. Marine Environmental Science, 2020, 39(5): 664-669, 675.
- [41] 王中波, 陆凯, 温珍河, 等. 中国东部海域表层沉积物粒度组成及影响因素 [J]. 地球科学, 2020, 45(7): 2709-2721.
- WANG Zhongbo, LU Kai, WEN Zhenhe, et al. Grain size compositions and their influencing factors of the surface sediments in eastern China seas[J]. Earth Science, 2020, 45(7): 2709-2721.
- [42] 王晓磊, 冯秀丽, 刘潇, 等. 冬、夏季渤海海表层沉积物粒度特征差异及其成因分析 [J]. 海洋科学, 2015, 39(8): 63-69.
- WANG Xiaolei, FENG Xiuli, LIU Xiao, et al. Particle size differences of surface sediments in the Bohai Sea and the Yellow Sea between winter and summer and the genetic analysis[J]. Marine Sciences, 2015, 39(8): 63-69.
- [43] 范德江, 杨作升, 郭志刚. 中国陆架²¹⁰Pb 测年应用现状与思考 [J]. 地球科学进展, 2000, 15(3): 297-302.
- FAN Dejiang, YANG Zuosheng, GUO Zhigang. Review of ²¹⁰Pb dating in the continental shelf of China[J]. *Advance in earth sciences*, 2000, 15(3): 297-302.
- [44] 杜金秋, 王震, 林武辉, 等. 渤海沉积物中放射性核素分布及其对沉积环境变化的响应 [J]. 地球科学, 2021, 46(12): 4503-4516.
- DU Jinqiu, WANG Zhen, LIN Wuhui, et al. Distribution of radionuclides in sediments of Bohai Sea and their response to changes in sedimentary environment[J]. *Earth Science*, 2021, 46(12): 4503-4516.

Environmental significance of heavy metal deposition records in the last 100 years in the southern Bohai Strait

WANG Haigen^{1,2}, GU Xiaoyuan^{1,2}, WANG Qingtong^{1,2}, YANG Peng^{1,2}, YU Xingchen^{1,2},
ZHANG Jiahao^{1,2}, MAO Fangsong^{1,2}, GE Xiangwei^{1,2}

(1 Yantai Center of Coastal Zone Geological Survey, China Geological Survey, Yantai 264000, China;

2 Observation and Research Station of Land-Sea Interaction Field in the Yellow River Estuary, Ministry of Natural Resources, Yantai 264000, China)

Abstract: A sediment core was collected in the southern Bohai Strait. The particle size, radioactive dating of ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs, and contents of the heavy metals were measured on the sediment samples. In addition, the geoaccumulation index and potential ecological risk index were used to evaluate the contamination history of heavy metals in the study area in the past 100 years. Results indicate that the average sedimentation rate was 0.505 cm/a, the contents of heavy metals and the grain size show a similar trend in vertical direction and a certain grain size effect. The geoaccumulation index indicates that the heavy metals pollution degree was low in the study area, while the potential ecological risk index indicates that the pollution of heavy metals was in the middle potential ecological risk in the study area in a significant decreasing trend since 2013. The heavy metal deposition record could be divided into three stages. From 1897 to 1977 was the stage of slow economic development, during which the heavy metal contamination was low. From 1977 to 2001 was the stage of rapid economic development due to China's reform and opening-up, during which environmental problems were prominent. From 2001 to 2021 was the stage of economic development and environmental protection, during which the contamination of heavy metals was controlled by the combined effects of sedimentary environment and human activities.

Key words: heavy metals; deposition records; environmental significance; pollution assessment; Bohai Strait