

车新颖,刘明,王飞宇,等.黄河水下三角洲表层沉积物汞(Hg)分布特征及其影响因素[J].中国环境科学,2025,45(5):2806-2815.

Che X Y, Liu M, Wang F Y, et al. Distribution Characteristics and Influencing Factors of Mercury (Hg) in the surface sediment of Yellow River Subaqueous Delta [J]. China Environmental Science, 2025,45(5):2806-2815.

## 黄河水下三角洲表层沉积物汞(Hg)分布特征及其影响因素

车新颖<sup>1</sup>,刘明<sup>1,2\*</sup>,王飞宇<sup>1</sup>,陈竞博<sup>1</sup>,孙学诗<sup>1,2</sup>,范德江<sup>1,2</sup> (1.中国海洋大学海洋地球科学学院,山东青岛266100; 2.海底科学与探测技术教育部重点实验室,山东青岛266100)

**摘要:** 基于对黄河水下三角洲表层沉积物的物质组成和汞(Hg)含量的分析,以期了解黄河水下三角洲Hg分布特征及影响因素.结果表明,黄河水下三角洲表层沉积物中的Hg含量介于15.09~53.11 $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,平均含量为36.32 $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,相较于其他国内外海域较低.沉积物中Hg含量由岸向海呈现“低-高-低-高”的间隔分布,切变锋位置和 offshore 细颗粒沉积区Hg含量出现峰值,南部靠近莱州湾区域沉积物中Hg含量也较高.Hg以自然来源为主,同时受人类活动排放的影响.水动力条件对沉积物中Hg的分布有显著的控制作用,Hg倾向于在细颗粒沉积物中富集,河口的“过滤器”效应尤其是切变锋的作用显著影响了Hg的空间分布和向远海的迁移.沉积物中Hg的分布还与有机碳、碳酸盐矿物和铁锰氧化物等其在沉积物中的赋存载体有关,一方面,这些赋存载体直接与Hg结合影响其在沉积物中的分布,另一方面这些赋存载体还会影响沉积物的性质进而间接影响Hg的分布.

**关键词:** 黄河水下三角洲; 汞; 空间分布; 影响因素

中图分类号: X53 文献标识码: A 文章编号: 1000-6923(2025)05-2806-10

**Distribution characteristics and influencing factors of Mercury (Hg) in the surface sediment of Yellow River Subaqueous Delta.** CHE Xin-ying<sup>1</sup>, LIU Ming<sup>1,2\*</sup>, WANG Fei-yu<sup>1</sup>, CHEN Jing-bo<sup>1</sup>, SUN Xue-shi<sup>1,2</sup>, FAN De-jiang<sup>1,2</sup> (1.College of Marine Geosciences, Ocean University of China, Qingdao 266100, China; 2.Key Laboratory of Submarine Geosciences and Technology, MOE, Ocean University of China, Qingdao 266100, China). *China Environmental Science*, 2025,45(5): 2806-2815

**Abstract:** Based on the analysis of the material composition and mercury (Hg) content in the surface sediments of the Yellow River subaqueous delta, the distribution characteristics and influencing factors of Hg in the region were examined. The results showed that the Hg content in the surface sediments ranged from 15.09 to 53.11 $\mu\text{g}/\text{kg}$ , with an average content of 36.32 $\mu\text{g}/\text{kg}$ , which was relatively low compared to other domestic and international marine areas. The Hg content in the sediments exhibited a 'low-high-low-high' pattern from the shore to the sea, with peak concentrations observed at the shear front and in the fine-grained sediment areas offshore. Elevated Hg levels were also found in the sediments near Laizhou Bay in the southern region. Hg was primarily derived from natural sources but was also influenced by emissions from human activities. Hydrodynamic conditions played a crucial role in controlling the distribution of Hg, with a tendency for Hg to accumulate in fine-grained sediments. The 'filter' effect of the estuary, especially the shear front, significantly influenced the spatial distribution of Hg and its transport to the open sea. The distribution of Hg was also related to its carriers, such as organic carbon, carbonate minerals, and iron-manganese oxides. These carriers directly bound with Hg, affecting its distribution, and also influenced the properties of the sediments, thus indirectly influencing the distribution of Hg.

**Key words:** Yellow River Subaqueous Delta; Mercury; spatial distribution; influencing factors

汞(Hg)是一种具有强烈神经毒素的元素,且具有持久性、富集性和可迁移性,是生态环境研究的重要指标元素<sup>[1-2]</sup>.近几十年随着人类活动的增强,Hg排放量迅速增加,大气Hg排放比自然水平增加450%,地表水的Hg浓度自工业革命以来已经增至3倍左右<sup>[3-6]</sup>.Hg排放量的增长使得Hg污染问题愈发严重<sup>[7-10]</sup>.

在水生系统中,沉积物通常被认为是陆源排放污染物的最终汇<sup>[11]</sup>.河流三角洲处在岩石圈、大气

圈、水圈和生物圈的交互地带,是海陆相互作用非常强烈的区域,同时也是人类活动最为密集的区域<sup>[12-13]</sup>.三角洲独特的环境会使河流输入或者大气沉降等不同方式输入的Hg在此沉积,使其成为重要的汇<sup>[14-16]</sup>;这些Hg在沉积物中积累到一定浓度后,

收稿日期: 2024-10-23

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(41606054);山东省自然科学基金项目(ZR2022MD051)

\* 责任作者, 正高级实验师, mingliuoc@163.com

或在外界条件改变后,会从沉积物中重新向水体释放,这种内源性的 Hg 释放会增加水体中的 Hg 浓度,对生态环境产生重要影响<sup>[17-18]</sup>。

黄河途经黄土高原,具有显著的水少沙多、水沙异源的特点<sup>[19]</sup>。1885 年后黄河由苏北改道大清河注入渤海,大量黄土沉积物在黄河口处沉积,形成了中国面积最大的三角洲以及中国最年轻的河口湿地<sup>[20-21]</sup>。同时,黄河三角洲地下还蕴藏着丰富的石油和天然气资源,兼具生态效益和经济效益,对我国社会发展和生态安全至关重要<sup>[22]</sup>。黄河流域中上游支流众多,人类活动产生的大量污染物通过支流输送进入黄河汇聚到干流的水库中,造成水库中沉积物污染物含量升高,如小浪底水库中 Hg 含量就高出黄土背景值 2~7 倍。调水调沙或者洪水时,这些携带高含量 Hg 的沉积物就会排放入海,在三角洲地区沉积,对该区域的生态环境造成重要影响。然而目前对于黄河水下三角洲沉积物中 Hg 的分布及其控制因素的研究却尚未见报道。

为此,本文基于 2021 年 5 月在黄河水下三角洲采集的表层沉积物样品,开展了其物质组成和 Hg 含量的分析,查明该区域内表层沉积物 Hg 含量的空间分布特征,分析沉积物中 Hg 的来源,探讨了 Hg 在黄河水下三角洲空间分布的控制因素和影响机制。该研究对于认识大河三角洲 Hg 等重金属污染物质的源汇过程及环境效应具有重要意义,同时对于黄河三角洲生态保护和可持续发展也具有一定的参考价值。

## 1 材料与方法

### 1.1 研究站位与样品采集

研究区域位于黄河水下三角洲及邻近海域,包括现行黄河入海口的东汉和北汉以外的海域。于 2021 年 5 月开展研究区 4 个断面共 22 个站位的现场调查和表层沉积物的采集工作,具体采样站位见图 1。表层沉积物使用箱式取样器采集,取表层 2cm 的样品装入聚乙烯袋中,在船载冰柜内于 -20℃ 下冷冻并用于后续实验分析。

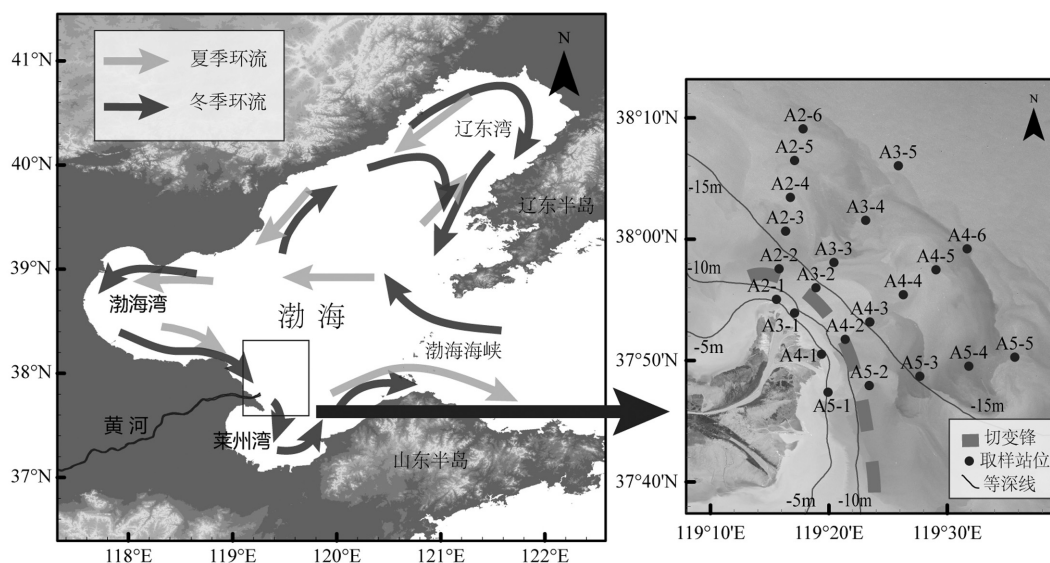


图 1 研究区域及采样站位示意

Fig.1 Location of study area and surface sediment sampling sites

环流、水深和切变锋位置改绘自<sup>[23]</sup>

### 1.2 分析测试方法

**1.2.1 粒度** 表层沉积物的粒度分析测试使用 Malvern 公司的 Mastersizer 3000 型激光粒度仪。取少量沉积物湿样加入  $\text{H}_2\text{O}_2$  溶液和 HCl 去除其中的有机质和碳酸盐,反应完全后,离心去除残留的  $\text{H}_2\text{O}_2$  溶液和 HCl,加入适量 0.5mol/L 的  $(\text{NaPO}_3)_6$  溶液超声振

荡使其充分分散后上机测试。仪器测量的粒度间隔为  $\phi/4$ ,重复测试相对误差小于 2%。粒度相关参数采用 Folk 公式进行计算<sup>[24]</sup>。

**1.2.2 常量元素** 常量元素的测试采用的仪器为 Axios 型 X 射线荧光光谱仪(XRF)。取适量烘干并研磨后的样品,加入复合熔剂搅拌均匀并置入铂金

坩埚中熔融,冷却后制片并上机测试。

微量元素测试采用的仪器为电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS, NexIon 2000)。取适量烘干并研磨后的样品,使用高纯 HNO<sub>3</sub> 和 HF 消解后上机测试。测试过程中,采用国家标准物质水系沉积物(GBW 07309)、近海海洋沉积物(GBW 07314)和空白样品进行质量控制,测试相对标准偏差小于 5%。

**1.2.3 有机碳 表层沉积物的有机碳(TOC)含量测试**采用 TOC-L 总有机碳分析仪。取冷藏的表层沉积物样品,加入 3mol/L 的 HCl 充分反应除去其中的碳酸盐,之后离心除去剩余的 HCl,将处理好的样品于 40℃ 条件下烘干并充分研磨。上机测试时,将样品放入样品舟后推入仪器中,通氧气 2min 排出内部空气后开始测定,待测出数据后取出样品舟,重复上述步骤继续下一个样品的测量。测试过程采用标准物质葡萄糖和平行样品来进行质量控制,多次测量的相对标准偏差小于 5%。

**1.2.4 矿物相分析** 表层沉积物的矿物相分析使用 X 射线衍射仪(Bruker D8ADVANCE 型)。具体条件设置为:使用 Cu 靶 K $\alpha$  射线辐射,管电压/电流为 40kV/100mA,步进扫描,步进长度 0.02°(2 $\theta$ ),预置时间为 0.02s,扫描范围为 3°~65°,扫描速度为 4°/min。对测试结果采用 Jade 6.5 软件进行半定量计算分析。

**1.2.5 Hg 含量** 冷冻干燥后的样品采用 DMA-80 汞分析仪(Milestone Scientific Inc., USA)开展 Hg 含量分析测试。分析测试过程中采用中国环境监测站的环境标准(ESS-4, 0.021 $\mu$ g/g Hg)和中国物探化探研究所的土壤标准物质(GSS-13)进行质量控制。校准曲线包括 8 个浓度梯度 Hg,每 10 个样品测量一次标准物质。标准物质和重复样品分析的相对标准偏差在 2%~5%。

### 1.2.6 Hg 环境质量评价方法

#### (1)富集因子(EF)

富集因子是用于定量评价沉积物重金属污染程度与污染来源的重要指标,通过重金属的实测值与背景值的比值,分辨出来源和富集状况<sup>[25]</sup>。其计算公式如下<sup>[26]</sup>:

$$EF = \frac{(Me/Al_2O_3)_{\text{样品}}}{(Me/Al_2O_3)_{\text{背景}}} \quad (1)$$

式中: Me 为重金属元素含量,单位为  $\mu$ g/kg, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 为沉积物中测得的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 元素含量,单位为  $\mu$ g/kg,作为

标准化元素消除粒度等带来的影响;由于黄河沉积物 90%以上来自中游的黄土高原<sup>[19]</sup>,黄河下游河道高程高于两岸,且基本没有支流汇入,因此黄河水下三角洲的沉积物主要来自于黄土,本研究背景值采用黄土中的元素含量作为背景值,Hg 的背景值取为 14.6  $\mu$ g/kg。根据 EF 的大小,将沉积物中重金属的富集程度分为 7 个等级<sup>[27]</sup>,如表 1 所示。

表 1 EF 指示的重金属富集程度

Table 1 The indication of EF to heavy metal enrichment

无	轻度	中度	中重度	重度	极重度	严重
EF<1	1≤EF<3	3≤EF<5	5≤EF<10	10≤EF<25	25≤EF<50	EF>50

#### (2)潜在生态危害指数

潜在生态危害指数是 Hakanson 在 1980 年提出的,广泛应用于评估重金属的生态风险<sup>[28]</sup>,其计算公式为:

$$E_r = T_r \times C_r = T_r \frac{C_s}{C_n} \quad (2)$$

式中: $E_r$  为 Hg 的潜在生态危害指数; $T_r$  是根据其生态活性制定的毒性系数,Hg 为 40; $C_r$  代表 Hg 的污染指数; $C_s$  是每个样品沉积物中 Hg 的测量浓度; $C_n$  是地球化学背景浓度,本研究同样使用黄土中 Hg 的含量作为背景值。根据计算结果将污染程度分为 5 类<sup>[28]</sup>,如表 2 所示。

表 2  $E_r$  值指示的重金属生态污染程度

Table 2 The indication of  $E_r$  value to heavy metal ecological pollution degree

低	中	较高	高	严重
$E_r \leq 40$	$40 < E_r \leq 80$	$80 < E_r \leq 160$	$160 < E_r \leq 320$	$E_r > 320$

**1.2.7 统计与绘图** 研究区域与采样站位分布图采用 ArcGIS 10.8 软件绘制;沉积物物质组成、Hg 含量等等值线图采用 ArcGIS 10.8 利用插值法绘制;相关性分析和结果的图形绘制由 Origin 2022 完成。

## 2 结果与分析

### 2.1 沉积物组成及其分布特征

**2.1.1 粒度** 根据 Folk 分类方法,研究区沉积物主要为砂质粉砂和粉砂,极少部分站位为粉砂质砂。

如图 2 所示,各站位的中值粒径范围为 7.79~64.10 $\mu\text{m}$ ,平均为 21.40 $\mu\text{m}$ ,最高值区分布在黄河口北汉外.由陆向海,沉积物粒径呈现高-低-高-低的变化趋势,其中临近现行河口北汉处沉积物粒径最

粗,向外到切变锋附近沉积物粒度变细,切变锋外侧沉积物粒径又开始变粗,远海区域沉积物粒径又逐渐变细.粒度组成的结果也说明河口区域粒度粗,切变锋附近和远海沉积物粒度细.

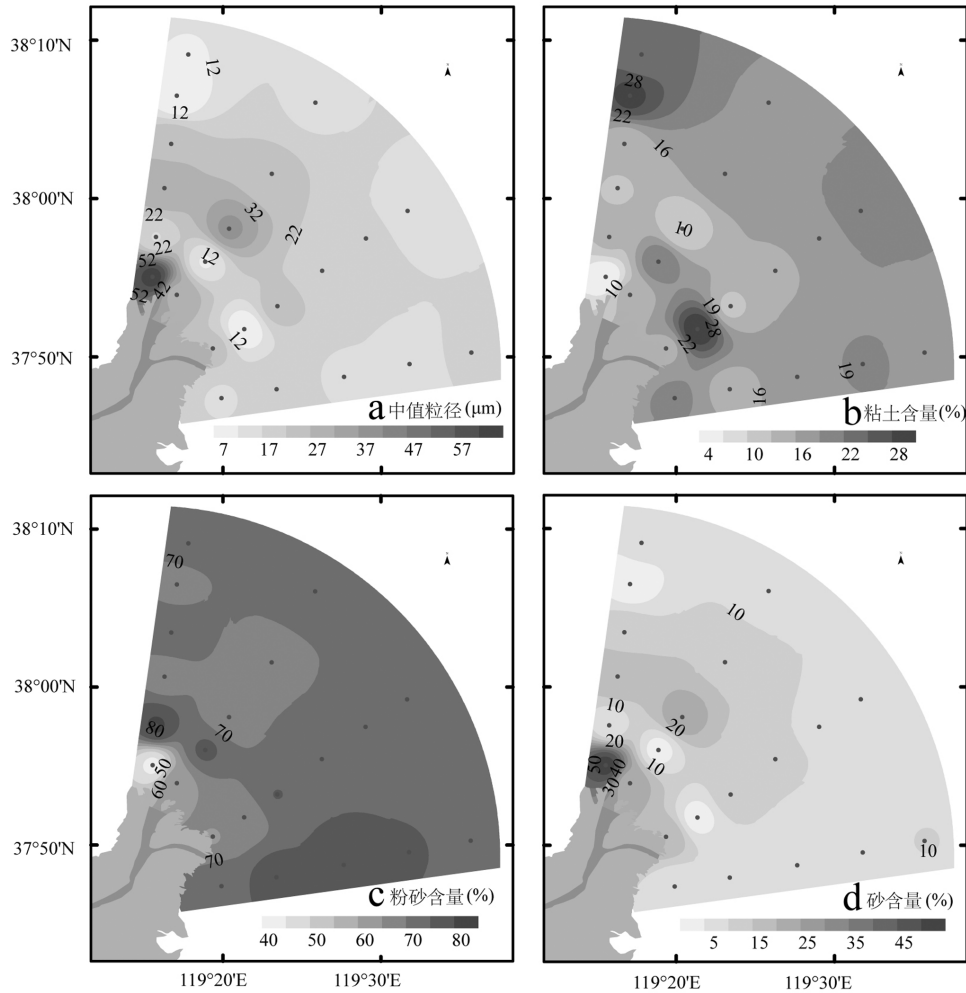


图 2 研究区表层沉积物中值粒径和粒度组成分布

Fig.2 Distribution of median grain size and grain size composition in surface sediments of the study area

**2.1.2 常微量元素** 对沉积物进行常量元素和微量元素地球化学分析,共获取了 SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、CaO、MgO、Na<sub>2</sub>O、K<sub>2</sub>O、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、MnO、TiO<sub>2</sub> 和 P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 共 10 种常量元素以及 Cr、Cu、Zn、Pb、Ni 和 Cd 6 种微量重金属元素,其含量如表 3 所示.常量元素中, SiO<sub>2</sub> 的含量最高,平均值达到 56.88%,其次为 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,平均含量为 11.93%,表明研究区沉积物以硅酸盐和铝硅酸盐矿物为主.微量元素中,Zn 的含量最高,Cd 的含量最低.各元素中 Cu 和 Cd 的变异系数高,与其他微量元素差异较大,说明这两种元素在空间上的分布不均匀,不同站位含量差异较大.

**3.1.3 有机碳** 研究区表层沉积物有机碳含量分布如图 3 所示.沉积物中有机碳含量介于 0.11%~0.63%之间,平均含量为 0.36%.在河口附近沿岸线有机碳含量较低;切变锋处有机碳含量有所增加;远海细颗粒沉积区沉积物有机碳含量高.

**2.1.4 矿物** 研究区表层沉积物中矿物组成差别较大,其主要矿物组成见表 4.石英为研究区平均含量最高的矿物,其高值区与粒度较粗的区域相吻合,表明石英偏向分布在粗颗粒沉积物中,而黏土矿物则与之相反,主要分布在远海细颗粒沉积区中.研究区中碳酸盐矿物主要为方解石,平均含量达到 11.21%,远高于其

他河口,体现了黄河控制下的物质输送<sup>[29]</sup>.

表3 研究区表层沉积物常量元素和微量元素含量

Table 3 The content of major elements and trace elements in the surface sediments

元素	最大值	最小值	平均值	标准偏差	变异系数(%)
SiO <sub>2</sub> (%)	68.20	45.81	56.88	4.63	8.14
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	13.26	9.87	11.93	0.79	6.61
CaO (%)	8.12	5.05	6.59	0.79	12.00
MgO (%)	3.27	1.84	2.65	0.31	11.71
Na <sub>2</sub> O (%)	2.70	2.08	2.40	0.17	6.23
K <sub>2</sub> O (%)	2.60	2.05	2.39	0.13	5.49
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	5.57	3.13	4.53	0.56	12.46
MnO (%)	0.11	0.05	0.09	0.01	15.63
TiO <sub>2</sub> (%)	0.61	0.55	0.59	0.02	2.80
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	0.16	0.13	0.15	0.01	5.57
Cr (mg/kg)	86.55	63.49	74.11	5.61	7.57
Cu (mg/kg)	50.24	10.62	24.66	8.63	35.01
Zn (mg/kg)	91.32	49.13	76.38	10.68	13.98
Pb (mg/kg)	31.28	19.21	25.90	3.32	12.81
Ni (mg/kg)	46.09	21.27	33.12	5.16	15.59
Cd (mg/kg)	0.27	0.12	0.19	0.04	23.36

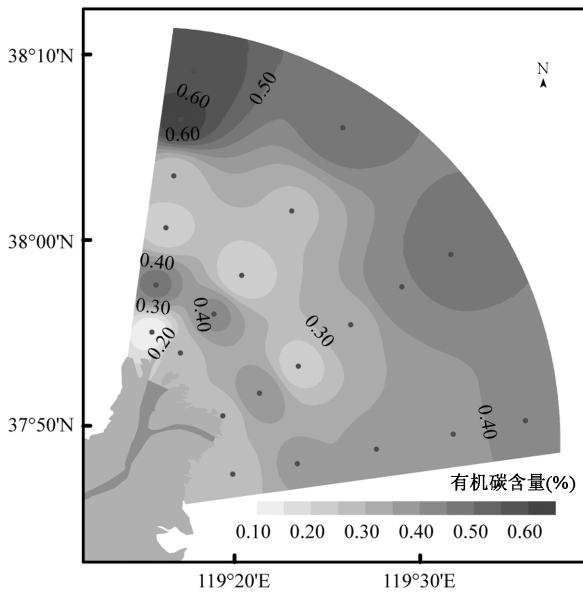


图3 研究区表层沉积物有机碳含量分布

Fig.3 Distribution of TOC content in the surface sediments of the study area

表4 研究区沉积物主要矿物组成(%)

Table 4 The main mineral composition of the sediments in the study area (%)

项目	石英	黏土矿物	斜长石	钾长石	方解石
最大值	49.37	46.10	33.32	8.90	17.72
最小值	24.71	9.66	6.85	1.01	6.26
平均含量	36.69	25.86	19.48	4.44	11.21

## 2.2 Hg 含量及其分布特征

黄河水下三角洲沉积物中 Hg 含量介于 15.09~53.11 $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,平均含量为 36.32 $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,其中最低值出现在靠近黄河口北汊外的 A2-1 站位,最高值出现在黄河口东汊外的 A5-2 站位.由岸向海,沉积物 Hg 含量呈现“低-高-低-高”的间隔分布,与岸线近乎平行,河口和近岸边含量低,随后在切变锋附近含量升高出现峰值,之后含量开始下降,在远海处含量又开始上升(图 4).总体来看,研究区南部靠近莱州湾区域含量更高,临近河口北汊处以及研究区中部 Hg 含量较低.

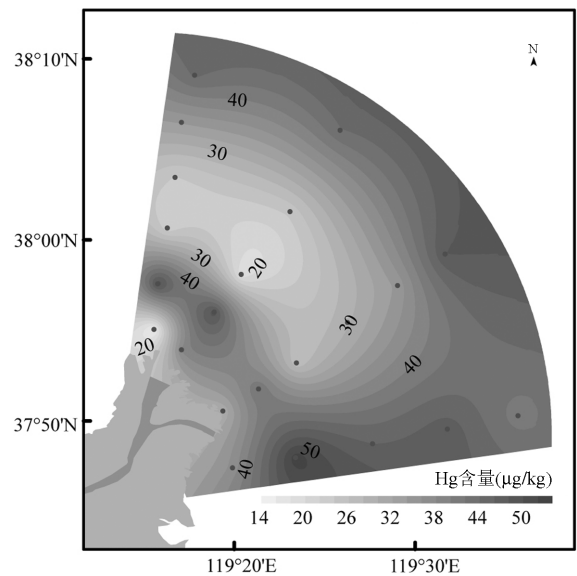


图4 研究区表层沉积物 Hg 含量分布

Fig.4 Distribution of Hg content in the surface sediments of the study area

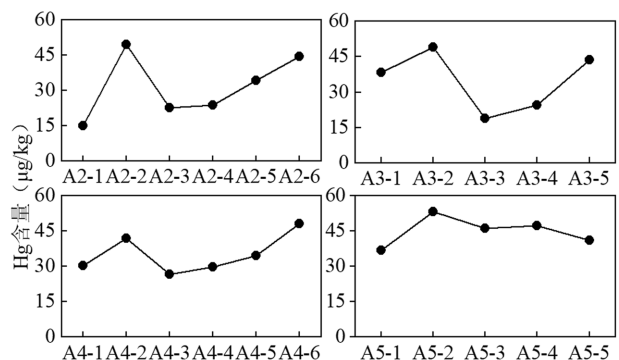


图5 研究区不同断面 Hg 含量分布

Fig.5 Distribution of Hg content across different cross-sections in the study area

从不同断面来看(图 5),各个断面变化较为一致,均呈现先增加后降低再增加的趋势(A5 断面呈现先

增加后降低趋势),最高值出现在切变锋附近的第二站位处.从含量来看,不同断面也有差异,各断面 Hg 含量平均值分别为 31.59, 34.89, 35.16 和 44.82 $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,南部靠近莱州湾区域 Hg 含量更高.

与国内外其他区域相比较(表 5),黄河水下三角洲沉积物中的 Hg 含量都处于正常水平或较低水平,低于其他经济发展水平较高的区域.相较于中国黄土元素背景值,黄河水下三角洲沉积物中 Hg 含量明显升高.相较于中国土壤环境背景值, Hg 含量则相对较低.

表 5 研究区沉积物 Hg 含量与国内外其他区域含量对比  
Table 5 Comparison of Hg content in sediments from the study area and other areas

地区	Hg 含量( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	参考文献
黄河水下三角洲	36.32	本研究
黄河口湿地(2015 年)	40 $\pm$ 20	[30]
渤海	38.8	[31]
黄海	24.2	
东海	32.8	
南海	166.1	
密西西比河	33-91	[32]
埃及地中海海滩	14.938	[33]
多瑙河三角洲	176	[34]
伏尔加河水库	1-234	[35]
中国黄土元素背景值	14.6	[36]
中国水系沉积物背景值	27	[37]
中国土壤环境背景值	65	[38]

### 3 讨论

#### 3.1 Hg 的来源分析

三角洲沉积物的分布格局和性质一般受控于物源和水动力条件,物源是决定沉积物类型的首要条件.为了解黄河水下三角洲沉积物中 Hg 的来源,计算了沉积物中 Hg 的富集因子(EF)和潜在生态危害指数  $E_p$ ,其结果如图 6 所示.

富集因子结果表明 Hg 在研究区大部分区域属于轻度富集,切变锋附近及远海站位出现中度富集,潜在生态危害指数的结果和富集因子结果类似,近岸河口区域及切变锋后海域属于中风险,切变锋处和远海区域是较高风险.二者结果类似,表明研究区沉积物中 Hg 以自然来源为主,但是也受到人类活动的污染.

黄河搬运的泥沙 90%以上来自中游黄土高原的侵蚀,这导致黄河泥沙中部分重金属含量与马兰黄土接近<sup>[19, 39-40]</sup>.而将黄河水下三角洲沉积物中常量元素与黄土元素背景值进行对比(表 6),发现研究区常量元素与黄土非常接近,而几种重金属微量元素则相较于黄土元素含量均有升高,但幅度不大,说明黄土高原的自然风化过程是控制黄河沉积物中重金属浓度的主要因素<sup>[41]</sup>;但是其中的 Hg 和 Cd 含量明显不同于黄土,有较为明显的升高,说明除自然来源,也受到了人类活动的影响.

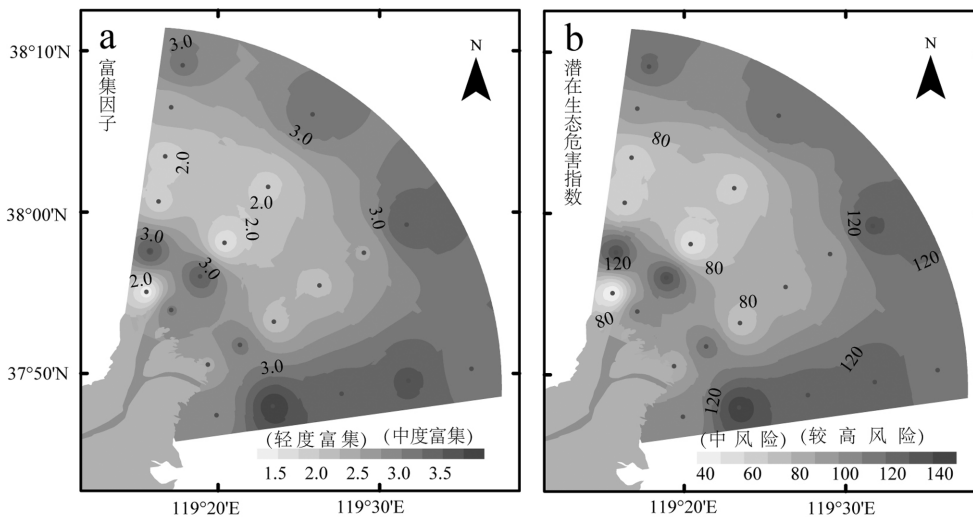


图 6 研究区沉积物中 Hg 的富集因子 EF(a)和潜在生态危害指数  $E_p$ (b)

Fig.6 The enrichment factor (a) and potential ecological risk index (b) of Hg in the sediments of the study area

黄河近年来向海的物质输送显著受控于人类活动,全年超过三分之一的水沙在调水调沙期间入

海<sup>[42-43]</sup>,这不仅显著的改变了黄河物质的输送格局,而且改变了重金属的运输模式<sup>[44]</sup>.中上游占整

个流域面积的 90%以上,工农业产生的污染物通过支流输送到黄河干流,汇聚到干流的水库中,调沙期水库沉积物向外排放,成为一年中重金属向海排放的主要时段,如 Cu、Pb、Cr、Ni 等重金属在这一时期的排放通量占全年的 50%左右<sup>[44]</sup>。所以,中上游的人类活动是黄河水下三角洲沉积物中 Hg

的重要来源。黄河下游由于地形平缓,沉积物不断淤积,难以有污染物通过支流汇入,一般认为对黄河入海物质贡献较少,但也有研究表明,下游地区的人为排放对黄河入海重金属也有贡献,这主要与近几十年来沉积物沿河岸和河床沉积,下游河漫滩改造为耕地有关<sup>[44-45]</sup>。

表 6 研究区沉积物与黄土\*常量元素与微量元素对比

Table 6 Comparison of major elements and trace elements in sediments of the study area and Loess

项目	Na <sub>2</sub> O (%)	MgO (%)	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	SiO <sub>2</sub> (%)	K <sub>2</sub> O (%)	CaO (%)	TiO <sub>2</sub> (%)	MnO (%)	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	Cr (mg/kg)	Ni (mg/kg)	Cu (mg/kg)	Zn (mg/kg)	Cd (mg/kg)	Pb (mg/kg)	Hg (μg/kg)
研究区**	2.40	2.65	11.93	56.88	2.39	6.59	0.59	0.09	4.53	74.11	33.12	24.66	76.38	0.19	25.90	36.32
黄土	1.64	2.27	13.21	57.54	2.58	6.87	0.56	0.10	4.35	67.30	31.00	22.50	65.40	0.10	21.00	14.60

注: \*黄土元素含量参考文献[36]; \*\*研究区元素含量为各站位平均含量。

此外,黄河水下三角洲位于中国东部,是大陆与大洋的交汇区域,同时位于亚洲风尘运输的路径上。在季风的作用下,这些尘土和其中的污染物被向东输送至太平洋。因此黄河三角洲也会沉降大气颗粒物及其携带的 Hg 等污染物<sup>[46]</sup>。

### 3.2 黄河水下三角洲 Hg 分布的影响因素

#### 3.2.1 水动力环境对 Hg 分布的影响

水动力环境在沉积物的搬运沉积过程中起决定作用,是外部因素对沉积物进行改造的条件<sup>[47]</sup>。黄河三角洲沉积物主要来自于黄河运输的黄土高原的物质,决定了沉积物的性质,包括沉积物的物质组成、矿物含量和元素组成等,而水动力条件则对沉积物的搬运沉积产生重要的影响。

粒度可以反映沉积时的水动力环境,对不同断面的 Hg 含量和粒度(中值粒径)进行相关性分析,结果如图 7 所示。根据相关性散点图, A2 至 A4 断面,拟合趋势线的斜率相差不大,均有显著的负相关关系,粒度对 Hg 含量的影响相差不大;而南部的 A5 断面,沉积物中 Hg 含量对粒度的相关性与其他断面明显不同,呈现并不显著的正相关关系。

黄河三角洲是潮控型河口三角洲,潮汐和潮流动力是塑造河口地形及控制沉积物运动的主要动力<sup>[48]</sup>,特别是潮流与地形共同作用形成的潮流切变锋,对沉积物向外扩散具有重要的控制作用。切变锋内侧经过物理、化学和生物等作用,沉积物易发生沉积,难以向外扩散,因此积累大量的细粒沉积物,Hg 含量远远高出附近站位,由于落潮切变锋对沉积物具有更强的捕获作用,落潮流对泥沙的搬运作用强于涨潮流,导致泥沙净通量方向为南向,所以研究区南部靠近莱州湾沉积物中 Hg 含量更高<sup>[20,48]</sup>。在切变锋处达到峰值后,由于切变锋外侧受到环流影响,水动力更强,沉积物中 Hg 含量降低,这一过程体现了河口作为重金属入海过程中的“过滤器”效应,对 Hg 等重金属的向海运输起到了拦截和清除作用<sup>[23]</sup>。当然,河口过程虽然拦截了相当部分的沉积物和 Hg 等重金属元素,但细颗粒的沉积物仍向远海运输,在远海方向,随着水动力的减弱,更细粒的沉积物发生沉积(图 2),这部分沉积物因具有较高的比表面积和较强的吸附能力,因此 Hg 含量又逐渐升高。

河口冲淡水也是控制沉积物分布的因素之一,由于河口处流速大,不利于沉积物沉积,因此在近岸

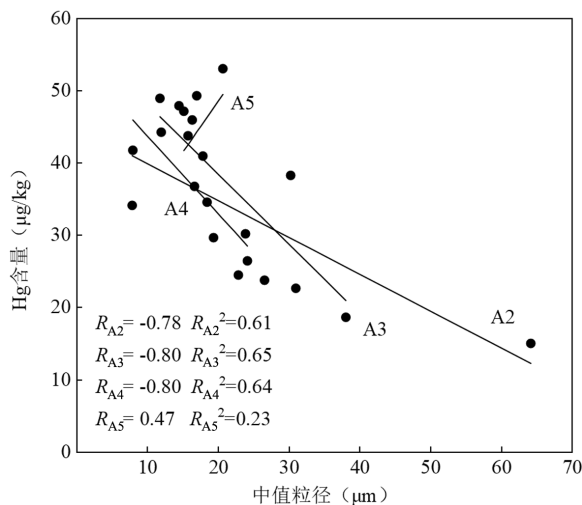


图 7 不同断面中值粒径与 Hg 含量相关性散点图

Fig.7 Scatter plot of the correlation between median grain size and Hg content at different cross-sections

站位 Hg 含量相对较低,而目前黄河入海口在 1996 年改道清 8 汉之后形成了东汉和北汉双槽入海的汉道,北汉是黄河入海径流的主要通道<sup>[49]</sup>,所以此处 Hg 含量更低.从全年来看,黄河三角洲沉积物具有“夏储冬输”的特征,这与冬季环流的搬运等有关,这也进一步解释研究区南部靠近莱州湾沉积物 Hg 含量更高.

**3.2.2 沉积物组成对 Hg 分布的影响** 沉积物中的 Hg 含量与粒度具有直接的关系,前文中相关性分析结果表明 Hg 含量与粒度具有显著的相关性,以往也研究发现沉积物中的 Hg 主要富集在细粒沉积物中.粒度是控制沉积物吸附能力的主要因素,细粒物质具有更大的比表面积,提供了更多的与 Hg 吸附、络合的反应场所,因此对 Hg 的结合能力更强<sup>[50-52]</sup>.沉积物中 Hg 含量受粒度控制影响大,会掩盖其他影响 Hg 在沉积物中分布的因素.为了解影响沉积物中其他影响 Hg 分布的控制因素,消除粒度对 Hg 含量的影响,采用 Al 归一化方法对 Hg 含量和有机碳含量、方解石含量、常量元素等进行了处理,Al 是铝硅酸盐矿物的主要构成元素,自然状态下性质稳定,受人类活动影响小,迁移能力弱,因此常用作参考元素<sup>[53]</sup>.对归一化后 Hg 含量、有机碳含量、方解石含量及常量元素、重金属元素进行了相关性分析,结果如图 8 所示.

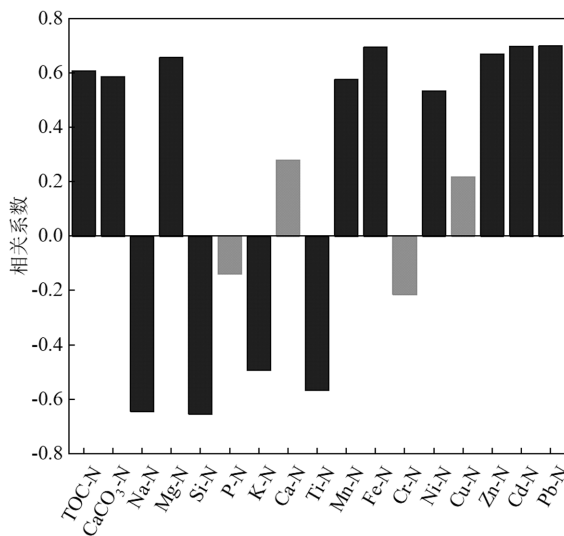


图 8 归一化后 Hg 含量与有机碳含量、方解石含量和常微量元素的相关系数

Fig.8 Correlation coefficients of normalized Hg content with TOC content, calcite content, and major and trace element contents

从图 8 中可以看出,归一化后 Hg 含量与有机碳含量、方解石含量都有较高的正相关关系.有机质含有大量的结合位点,可以结合更多的 Hg,有机质含量增加,Hg 吸附量也会大大增加<sup>[54-56]</sup>,同时有机碳含量还会影响沉积物中金属的流动性,进而影响它们在水体和沉积物之间的分布<sup>[57]</sup>.Hg 与方解石和 CaO 的正相关关系是由于沉积物中碳酸盐对于微量元素的淋溶性和流动性会产生影响<sup>[58]</sup>,黄河三角洲沉积物来自于黄河搬运的黄土高原沉积物,包括原岩风化的产物和孔隙中的次生方解石胶结物,具有粒度细且含量高的特征<sup>[59]</sup>,因此黄河三角洲区域沉积物中的 Hg 含量受碳酸盐含量的影响明显.常量元素中的 MgO 常存在于黏土矿物中,MnO、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 代表了沉积物中的铁锰氧化物,是 Hg 在沉积物中重要载体,因此三者与 Hg 具有正相关关系.

6 种微量重金属元素中,Ni、Zn、Cd、Pb 与 Hg 具有较为显著的正相关关系,而 Cr、Cu 的相关性较差.几种重金属元素的空间分布上也体现了这种差异,Ni、Zn、Cd、Pb 的分布与 Hg 较为相似,高值区与低值区的分布界限明显,由岸向海呈现“低-高-低-高”的条带状分布,切变锋附近第二站位达到或接近峰值.前人对这几种重金属在黄河水下三角洲的具体赋存形态也进行了研究,发现除性质稳定的残渣态外,碳酸盐结合态和铁锰氧化物结合态也是这几种重金属的主要赋存形态,几乎超过 50%<sup>[23]</sup>.综上所述,Hg 在黄河三角洲沉积物中的分布主要受物质来源和水动力的控制,除粒度外,沉积物中 Hg 的分布主要受有机碳、碳酸盐和铁锰氧化物等赋存载体的影响.

## 4 结论

**4.1 黄河水下三角洲表层沉积物中 Hg 含量** 介于 15.09~53.11 μg/kg,平均含量为 36.32 μg/kg,由岸向海,沉积物 Hg 含量呈现“低-高-低-高”的间隔分布,与岸线近乎平行分布,在切变锋处和外海细颗粒沉积区 Hg 含量出现峰值,研究区南部靠近莱州湾区域沉积物中 Hg 含量更高.与其他区域相比,黄河水下三角洲表层沉积物中 Hg 含量呈现正常或较低水平.

**4.2 黄河三角洲沉积物中 Hg 的来源** 主要包括自然来源及人类活动的排放.河口冲淡水、潮流切变锋及环流等水动力条件对沉积物中 Hg 的分布起控制作

用,尤其是切变锋显著影响了 Hg 的分布和向远海的运输;此外,沉积物中 Hg 的分布还受到有机碳、碳酸盐和铁锰氧化物等赋存载体的控制。

#### 参考文献:

- [1] Gworek B, Dmuchowski W, Baczevska-Dabrowska A H. Mercury in the terrestrial environment: a review [J]. *Environmental Sciences Europe*, 2020,32(1):19.
- [2] 刘悦,王灿,刘红昌,等.汞的赋存形态及微生物转化研究进展 [J]. *应用与环境生物学报*, 2022,28(6):1653-1662.  
Liu Y, Wang Z, Liu H C, et al. Research progress on occurrence forms and microbial transformation of mercury [J]. *Chinese Journal of Applied and Environmental Biology*, 2022,28(6):1653-1662.
- [3] Mason R P, Sheu G R. Role of the ocean in the global mercury cycle [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2002,16(4):14.
- [4] Selin N E. Global biogeochemical cycling of mercury: a review [J]. *Annual Review of Environment and Resources*, 2009,34:43-63.
- [5] Lindberg S, Bullock R, Ebinghaus R, et al. A synthesis of progress and uncertainties in attributing the sources of mercury in deposition [J]. *Ambio*, 2007,36(1):19-32.
- [6] 葛梦.黄河三角洲表生环境中汞和砷的分布、赋存及风险评估 [D]. 合肥:中国科学技术大学, 2020.  
Ge M. Distribution, occurrence and risk assessment of mercury and arsenic in the supergene environment of the Yellow River delta, China [D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2020.
- [7] Li P, Feng X B, Shang L H, et al. Human co-exposure to mercury vapor and methylmercury in artisanal mercury mining areas, Guizhou, China [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2011,74(3):473-479.
- [8] Ubonyaem T, Bureekul S, Charoenpong C, et al. Preindustrial levels and temporal enrichment trends of mercury in sediment cores from the Gulf of Thailand [J]. *Environmental geochemistry and health*, 2023, 45(7):4243-4256.
- [9] Gworek B, Bemowska-Kalabun O, Kijenska M, et al. Mercury in marine and oceanic waters—a review [J]. *Water Air and Soil Pollution*, 2016,227(10):371.
- [10] Lavoie R A, Jardine T D, Chumchal M M, et al. Biomagnification of mercury in aquatic food webs: a worldwide meta-analysis [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013,47(23):13385-13394.
- [11] Liu W C, Hu L M, Lin T, et al. Distribution and mass inventory of mercury in sediment from the Yangtze River estuarine-inner shelf of the East China Sea [J]. *Continental Shelf Research*, 2017,132:29-37.
- [12] Ericson J P, Vörösmarty C J, Dingman S L, et al. Effective sea-level rise and deltas: Causes of change and human dimension implications [J]. *Global and Planetary Change*, 2006,50(1/2):63-82.
- [13] 杜文.长江口及邻近海域表层沉积物中微量元素分布特征及环境效应 [D]. 杭州:浙江大学, 2018.  
Du W. Distribution characteristics and environment risk of trace elements in surface sediments of the Yangtze estuary and adjacent waters [D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2018.
- [14] Shetaia S A, Abu Khatita A M, Abdelhafez N A, et al. Human-induced sediment degradation of Burullus lagoon, Nile Delta, Egypt: Heavy metals pollution status and potential ecological risk [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2022,178:113566.
- [15] Petrovic M, Fiket Z. Environmental damage caused by coal combustion residue disposal: A critical review of risk assessment methodologies [J]. *Chemosphere*, 2022,299:134410.
- [16] Liu C, Fan C X, Shen Q S, et al. Effects of riverine suspended particulate matter on post-dredging metal re-contamination across the sediment-water interface [J]. *Chemosphere*, 2016,144:2329-2335.
- [17] 余广彬,刘义,俞慎,等.京杭大运河苏南城市段表层沉积物铜、锌吸附特征及理论环境安全吸附容量 [J]. *生态环境学报*, 2011, 20(3):480-484.  
Yu G B, Liu Y, Yu S, et al. Characterization and theoretical environmental capacity of copper and zinc sorption in surface sediments from urban sections of the Grand Canal of China [J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2011,20(3):480-484.
- [18] Ibanga L B, Nkwoji J A, Usease A I, et al. Hydrochemistry and heavy metals concentrations in sediment of Woji creek and Bonny estuary, Niger Delta, Nigeria [J]. *Regional Studies in Marine Science*, 2019, 25:100436.
- [19] 任美镔,史运良.黄河输沙及其对渤海、黄海沉积作用的影响 [J]. *地理科学*, 1986,6(1):1-12.  
Ren M E, Shi Y L. Sediment discharge of the Yellow River and its effect on sedimentation of the Bohai and Yellow Sea [J]. *Scientia Geographica Sinica*, 1986,6(1):1-12.
- [20] 毕乃双.黄河三角洲毗邻海域悬浮泥沙扩散和季节性变化及冲淤效应 [D]. 青岛:中国海洋大学, 2009.  
Bi N S. Suspended sediment dispersal off the Huanghe (Yellow River) delta and in its adjacent Bohai Sea, its seasonal variation and effect on the delta erosion-accumulation [D]. Qingdao: Ocean University of China, 2009.
- [21] Peng J, Chen S L, Dong P. Temporal variation of sediment load in the Yellow River basin, China, and its impacts on the lower reaches and the river delta [J]. *Catena*, 2010,83(2/3):135-147.
- [22] 许学工,梁泽,周鑫.黄河三角洲陆海统筹可持续发展探讨 [J]. *资源科学*, 2020,42(3):424-432.  
Xu X G, Liang Z, Zhou X. Land and sea coordination for sustainable development in the Yellow River Delta [J]. *Resources Science*, 2020, 42(3):424-432.
- [23] Hu C P, Liu M, Li Y P, et al. Sedimentation and transformation of heavy metals during the transport from the Yellow River estuary to the sea: Evidence from surface sediments of the Yellow River subaqueous delta [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2024,207:116862.
- [24] Folk R L, Ward W C. Brazos River bar [Texas]; a study in the significance of grain size parameters [J]. *Journal of Sedimentary Research*, 1957,27(1):3-26.
- [25] Loring D H. Normalization of heavy-metal data from estuarine and coastal sediments [J]. *ICES Journal of Marine Science*, 1991,48(1): 101-115.
- [26] 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):11.  
Zhu A M, Zhang H, Cui J J, et al. Environmental quality assessment and influence factor of heavy metals in the surface sediments from the Bohai Sea [J]. *Haiyang Xuebao*, 2019,41(12):134-144.
- [27] Williams J A, Antoine J. Evaluation of the elemental pollution status of Jamaican surface sediments using enrichment factor, geoaccumulation index, ecological risk and potential ecological risk index [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2020,157:111288.
- [28] Hakanson L. An ecological risk index for aquatic pollution control: a sedimentological approach [J]. *Water Research*, 1980,14(8):975-1001.
- [29] 杨作升,王海成,乔淑卿.黄河与长江入海沉积物中碳酸盐含量和矿物颗粒形态特征及影响因素 [J]. *海洋与湖沼*, 2009,40(6):674-681.  
Yang Z S, Wang H C, Qiao S Q. Carbonate minerals in estuary sediments of the Changjiang(Yangtze River) and Huanghe(Yellow River): the content, morphology, and influential factors [J]. *Oceanologia et Limnologia Sinica*, 2009,40(6):674-681.
- [30] 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.

- [31] Meng M, Shi J B, Yun Z J, et al. Distribution of mercury in coastal marine sediments of China: Sources and transport [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2014,88(1/2):347-353.
- [32] Gray J E, Van Metre P C, Pribil M J, et al. Tracing historical trends of Hg in the Mississippi River using Hg concentrations and Hg isotopic compositions in a lake sediment core, Lake Whittington, Mississippi, USA [J]. *Chemical Geology*, 2015,404:183-183.
- [33] Hamed M A, Mohamedein L I, El-Sawy M A, et al. Mercury and tin contents in water and sediments along the Mediterranean shoreline of Egypt [J]. *Egyptian Journal of Aquatic Research*, 2013,39(2):75-81.
- [34] Gati G, Pop C, Brudasca F, et al. The ecological risk of heavy metals in sediment from the Danube Delta [J]. *Ecotoxicology*, 2016,25(4):688-696.
- [35] Udodenko Y G, Komov V T, Zakonov V V. Total mercury in surficial bottom sediments of Volga River's reservoirs in Central Russia [J]. *Environmental Earth Sciences*, 2018,77(19):692.
- [36] 田均良,李雅琦,陈代中.中国黄土元素背景值分异规律研究 [J]. *环境科学学报*, 1991,11(3):253-262.  
Tian J L, Li Y Q, Chen, D Z. Elemental background variation pattern of loess in China [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 1991,11(3):253-262.
- [37] 史长义,梁萌,冯斌.中国水系沉积物 39 种元素系列背景值 [J]. *地球科学*, 2016,41(2):234-251.  
Shi C Y, Liang M, Feng B. Average background values of 39 chemical elements in stream sediments of China [J]. *Earth Science*, 2016,41(2):234-251.
- [38] 郑春江.中华人民共和国土壤环境背景值图集 [M]. 北京:中国环境科学出版社, 1994.  
Zheng C J. Soil Environmental Background Value Atlas of the People's Republic of China [M]. Beijing: China Environmental Science Press, 1994.
- [39] Bi N S, Yang Z S, Wang H J, et al. Impact of artificial water and sediment discharge regulation in the Huanghe (Yellow River) on the transport of particulate heavy metals to the sea [J]. *Catena*, 2014, 121:232-240.
- [40] Huang W W, Jing Z. Effect of particle-size on transition-metal concentrations in the Changjiang (Yangtze-River) and the Huanghe (Yellow River), China [J]. *Science of the Total Environment*, 1990, 94(3):187-207.
- [41] Qiao S Q, Yang Z S, Pan Y J, et al. Metals in suspended sediments from the Changjiang (Yangtze River) and Huanghe (Yellow River) to the sea, and their comparison [J]. *Estuarine Coastal and Shelf Science*, 2007,74(3):539-548.
- [42] Wang H J, Bi N S, Saito Y, et al. Recent changes in sediment delivery by the Huanghe (Yellow River) to the sea: Causes and environmental implications in its estuary [J]. *Journal of Hydrology*, 2010,391(3/4):302-313.
- [43] 杨作升,李国刚,王厚杰,等.55 年来黄河下游逐日水沙过程变化及其对干流建库的响应 [J]. *海洋地质与第四纪地质*, 2008,28(6):9-18.  
Yang Z S, Li G G, Wang H J, et al. Variation of daily water and sediment discharge in the Yellow River Lower reaches in the past 55 years and its response to the dam operation on its main stream [J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 2008,28(6):9-18.
- [44] Chen J B, Liu M, Bi N S, et al. Variability of heavy metal transport during the water-sediment regulation period of the Yellow River in 2018 [J]. *Science of the Total Environment*, 2021,798:149061.
- [45] 谢羽倩,程舒鹏,张燕青,等.黄河下游滩地土地利用/覆盖现状及影响因素分析 [J]. *北京大学学报:自然科学版*, 2019,55(3):489-500.  
Xie Y Q, Cheng S P, Zhang Y Q, et al. Land use/cover and influence factors in the lower Yellow River [J]. *Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Pekinensis*, 2019,55(3):489-500.
- [46] Hu L M, Lin T, Shi X F, et al. The role of shelf mud depositional process and large river inputs on the fate of organochlorine pesticides in sediments of the Yellow and East China seas [J]. *Geophysical Research Letters*, 2011,38(3):L03602-1-L03602-6.
- [47] 张晋,李安春,万世明,等.南海南部表层沉积物粒度分布特征及其影响因素 [J]. *海洋地质与第四纪地质*, 2016,36(2):1-10.  
Zhang J, Li A C, Wan S M, et al. Grain size distribution of surface sediments in the southern south China sea and influencing factors [J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 2016,36(2):1-10.
- [48] 王楠.现代黄河口沉积动力过程与地形演化 [D]. 青岛:中国海洋大学, 2014.  
Wang N. Sedimentary dynamics process and topographic evolution in the modern Yellow River Mouth [D]. Qingdao: Ocean University of China, 2014.
- [49] 葛春海,范勇勇,巴旗,等.现行黄河口分汊河道的分流特征及其影响机制 [J]. *海洋地质与第四纪地质*, 2024,44(2):131-145.  
Ge C H, Fan Y Y, Ba Q, et al. Diversion characteristics of the branching channels in the Yellow River mouth and its influencing mechanisms [J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 2024,44(2):131-145.
- [50] 王静.黄海沉积物中汞的形态分布及其吸附与老化行为的研究 [D]. 济南:山东大学, 2022.  
Wang J. Speciation and distribution of mercury in the Yellow Sea of China and their adsorption and aging behaviors study [D]. Jinan: Shandong University, 2022.
- [51] Xiao C L, Jian H M, Chen L F, et al. Toxic metal pollution in the Yellow Sea and Bohai Sea, China: distribution, controlling factors and potential risk [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2017,119(1):381-389.
- [52] Yuan H M, Song J M, Li X G, et al. Distribution and contamination of heavy metals in surface sediments of the South Yellow Sea [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2012,64(10):2151-2159.
- [53] 刘素美,张经.沉积物中重金属的归一化问题——以 Al 为例 [J]. *东海海洋*, 1998,(3):49-56.  
Liu S, Zhang J. Normalization of heavy metals to aluminum in marine sediments [J]. *Donghai Marine Science*, 1998,(3):49-56.
- [54] Chakraborty P, Babu P V R, Vudamala K, et al. Mercury speciation in coastal sediments from the central east coast of India by modified BCR method [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2014,81(1):282-288.
- [55] Li Y B, Duang Z W, Liu G L, et al. Evaluation of the possible sources and controlling factors of toxic metals/metalloids in the florida everglades and their potential risk of exposure [J]. *Environmental science & technology*, 2015,49(16):9714-9723.
- [56] Asasian N, Kaghazchi T. Sulfurized activated carbons and their mercury adsorption/desorption behavior in aqueous phase [J]. *International Journal of Environmental Science and Technology*, 2015, 12(8):2511-2522.
- [57] Gao X L, Li P M. Concentration and fractionation of trace metals in surface sediments of intertidal Bohai Bay, China [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2012,64(8):1529-1536.
- [58] Sahuquillo A, Rigol A, Rauret G. Overview of the use of leaching/extraction tests for risk assessment of trace metals in contaminated soils and sediments [J]. *Trac-Trends in Analytical Chemistry*, 2003, 22(3):152-159.
- [59] 王艳君,金秉福.黄河河口段与海河河口段沉积物碳酸盐对比分析 [J]. *海洋科学*, 2017,41(7):94-104.  
Wang Y J, Jin B F. Comparative analysis of carbonates in sediments of the Yellow River and the Haihe River estuaries [J]. *Ocean Science*, 2017,41(7):94-104.

**作者简介:** 车新颖(2000-),男,山东蒙阴人,中国海洋大学硕士研究生,主要从事重金属的沉积源汇过程研究.发表论文 2 篇.253283558@qq.com.