

文章编号: 1674-5566(2020)05-0685-14

DOI:10.12024/jsou.20200503063

长江口口门海域水体重金属时间变化趋势及预测

潘宇迪¹, 杨红¹, 吴建辉², 王春峰¹

(1. 上海海洋大学 海洋生态与环境学院, 上海 201306; 2. 上海市水生野生动植物保护研究中心, 上海 200092)

摘要: 通过对 2004—2017 年长江口口门区域水体中 Cu、Zn、Pb、Hg 和 As 5 种重金属含量的调查, 分析了北支、南支北港和北港北沙 3 个区域水体重金属含量的变化趋势及影响因素, 并对未来几年重金属的含量进行了预测研究。结果显示, Cu 和 Pb 在 2011—2017 年间整体呈现下降趋势, 下降幅度低于 2004—2008 年, Zn 和 As 在 2011—2017 年间一直处于稳定的下降趋势, Hg 的下降趋势较小, 5 种重金属均在 2011 年和 2015 年前后污染物排放量增加时出现不同幅度的增长, 且径流量较大的区域增长幅度较大; 分析其影响因素得出, 由于早期水体中重金属含量较高, 治理投入成效大于污染物排放的影响, 故 2004—2008 年 Cu、Zn、Pb 和 As 含量与环境治理投入呈显著负相关, 与排污量之间相关性不显著; 而在重金属含量控制到较低水平后, 治理难度增加, 成效减弱, 污染物排放量成为了控制重金属含量的主要影响因素, 故 2011—2017 年的重金属含量与环境治理投入相关性不显著, 与排污量呈显著正相关; 由于长江口 3 个区域在盐度和径流量等因素上存在差异, 采用了 ARIMA 模型对不同区域的重金属分别进行预测, 预测得出 2020—2022 年长江口口门处 3 个区域水体中重金属含量较低, 变化趋势较为平稳, 该模型具有较高的精度, 误差在 5.19% ~ 11.82% 之间, 分区域预测可以突出不同区域重金属含量及变化特征, 预测结果更具针对性, 能够为未来治理方案的拟定提供一定依据。

关键词: 长江口; 时间序列; 重金属; 预测; 影响因素

中图分类号: X 131.2 **文献标志码:** A

长江口作为我国最大的河口, 以多年平均 $9.33 \times 10^{11} \text{ m}^3$ 的径流量占据全国入海总径流量的 51%^[1], 强大的径流携带大量重金属等污染物^[2]。自改革开放以来, 长三角地区工业化发展使海洋水体重金属污染日益严重^[3], 不仅使社会经济遭受巨大损失, 破坏海洋生态系统平衡, 还严重威胁到了人类健康^[4-5]。目前, 国内很多学者对珠江口海域^[6]、大亚湾^[7]、长江口海域^[8-13]和渤海海域^[14-16]的重金属污染情况展开了研究, 研究表明, 我国东部绝大多数海域存在不同程度的重金属污染问题, 并且污染较为普遍。由于重金属难降解和富集的特性, 会在环境之中逐渐累积, 所以对重金属时间序列的研究也是有必要的。有研究表明, 海水中重金属来源主要为陆源污染物的排放, 海水的自净能力有限, 人为活动是影响水体中重金属含量变化的主要因素^[17]。

通常测定重金属的步骤较为繁琐, 采用预测

模型对重金属含量的预测能够较为简便地提供一定精度的数据。目前, 国内外学者已经建立了较为完善的预测模型, 对重金属预测模型的研究较为成熟。由 BOX 等^[18]开发的 ARIMA 模型作为最典型的时间序列预测技术, 已广泛应用于各个领域的时序预测研究。潘怡^[19]应用 ARIMA 时间序列预测模型较为准确地预测了上海海域水体的水质污染状况, 发现重金属是主要的污染物之一。饶运章等^[20]运用 ARIMA 模型对矿区未来重金属的污染情况进行了评价, 拟合精度较高。但近年来对长江口海域水体重金属时间变化特征及预测的研究较少, 本文拟以长江口海域 2004—2017 年 Cu、Pb、Zn、Hg 和 As 5 种重金属为对象, 分析其 2011—2017 年间重金属含量变化趋势, 结合 2004—2010 年含量变化情况对其含量变化影响因素进行分析讨论, 对未来几年重金属的含量情况进行了预测, 并对长江口区域进行分区

收稿日期: 2020-05-26 修回日期: 2020-07-07

基金项目: 海洋公益性行业科研经费专项(2012050-10); 长江口中华鲟保护区及附近海域重金属监测项目(D-8006-18-0040)

作者简介: 潘宇迪(1994—), 男, 硕士研究生, 研究方向为海洋环境监测与评价。E-mail: 1024139066@qq.com

通信作者: 杨红, E-mail: hyang@shou.edu.cn

分析,从趋势分析和预测模型方面都突出了长江口不同区域的水域特征,获得的预测数据与结论特征性更明显,旨在为长江口未来的重金属污染治理方案的拟定提供一定的基础。能够更好地为研究长江河口区域重金属污染治理与管控提供一定科学依据。

1 材料与方法

1.1 研究区概况

于长江口口门处选取站点 14 个,长江口口门区域站点位置布置如图 1 所示。根据其所处的地理位置及水流来源差异将其分为北支、北港北沙和南支北港 3 个区域,其中 1、2 号站点位于南支北港,3、4、5、6、7 号站点位于北支,8、9、10、11、12、13、14 号站点位于北港北沙。

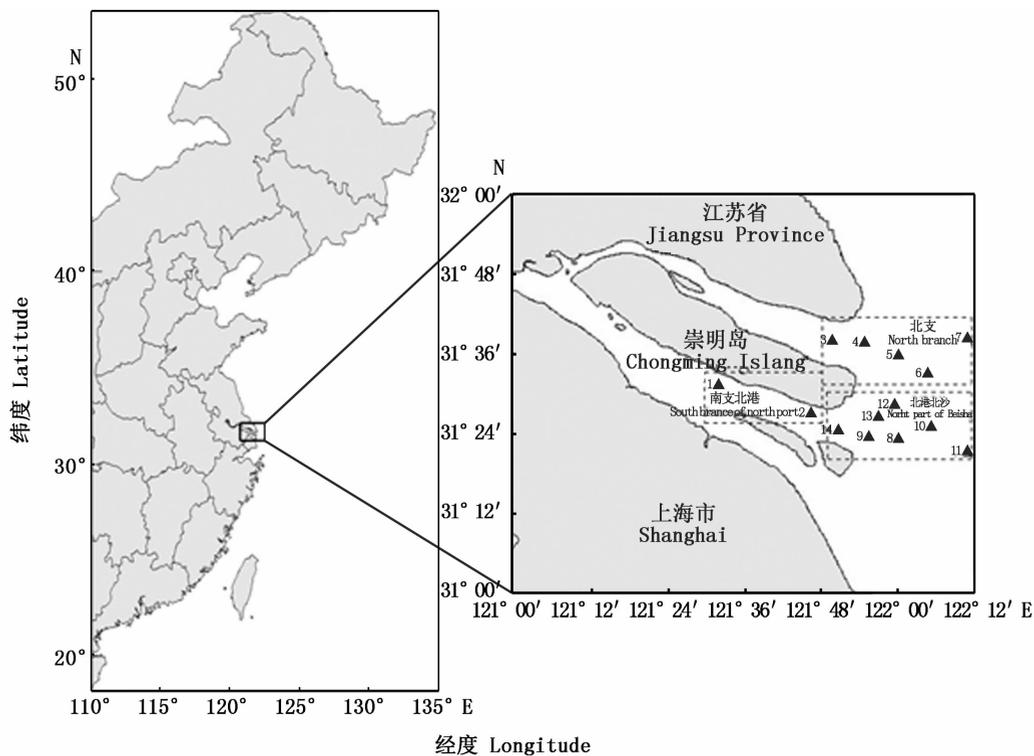


图 1 长江口采样站点分布图

Fig. 1 Sampling site distribution of the Yangtze Estuary

1.3 水样重金属测定分析方法

5 种重金属分析方法见表 2 所示。

1.4 趋势分析

本次研究对于测定的重金属数据,首先采用 $X \pm 3S$ 法^[21](X 为平均值, S 为标准差)对数据进行异常值的判定并对异常值进行剔除。由于

1.2 数据来源

包括了 2004—2017 年间每一季节的长江口口门海域海水重金属数据以及同期的水温、盐度、溶解氧(DO)及 pH 数据,考虑到涨落潮对其的影响,每一站点均在涨落潮时分别采样,所用数据为其算术平均值。建立模型时,采用临近点均值法对个别年份和季节缺失的数据进行补充。具体数据缺失情况如表 1 所示,2004—2013 年重金属数据和全部水温、盐度、溶解氧(DO)和 pH 数据由上海市中华鲟保护区管理处提供,其余数据由实验室自行测定完成。

同时收集同时期废水治理投入金额与长江流域重金属污染物排放量的相关数据,该数据通过查阅中国环境质量报告和中国海洋生态环境状况公报获得。

2004—2010 年间数据存在缺失情况,不对其进行趋势分析和建模,仅在分析讨论时使用该部分数据,其次对 2011—2017 年间 5 种重金属的年平均数据和季节平均数据分别进行平滑处理,消除或减弱了时间序列数据的不规则变动,能更好地揭示其变化趋势,其计算公式如下:

表 1 重金属、水温、盐度、DO、pH 数据缺失情况

Tab.1 Missing data of heavy metals, water temperature, salinity, DO, pH

年份 Years	重金属 Heavy metals	水温 Temperature	盐度 Salinity	DO	pH
2004	春	√	√	√	√
2005	夏	√	√	√	√
2006	秋、冬	√	√	√	√
2007	春、夏	√	√	√	√
2008	秋、冬	√	√	√	√
2009	×	×	×	×	×
2010	×	×	×	×	×
2011	√	√	√	√	√
2012	√	√	√	√	√
2013	√	√	√	√	√
2014	√	√	√	√	√
2015	√	√	√	√	√
2016	√	√	√	√	√
2017	√	√	√	√	√

注:√表示数据齐全,×表示缺失,备注的季节为未采样缺失的数据

Notes:√ indicates complete data, × indicates missing, and the season of remarks refers to unsampled missing data

表 2 5 种重金属测定方法

Tab.2 5 determination methods of heavy metals

重金属种类 Types of heavy metals	测定方法 Method of determination	方法来源 Source of method
Cu	无火焰原子吸收分光光度法	《GB17378.4—2007 海洋监测规范第四部分:海水分析》 ^[22]
Zn	火焰原子吸收分光光度法	
Pb	无火焰原子吸收分光光度法	
Hg	原子荧光法	
As	原子荧光法	

$$X = \frac{X_{n-a} + \dots + X_n + \dots + X_{n+a}}{2a+1} \quad (1)$$

1.5 相关分析

采用相关系数的方法对相关性进行分析,数据在 SPSS 中进行分析,相关系数计算方法如下:

$$R_{xy} = \frac{S_{xy}}{S_x \cdot S_y} \quad (2)$$

式中: S_{xy} 为样本的协方差; S_x 表示 x 样本的标准差; S_y 表示样本 y 的标准差。

1.6 预测模型

对重金属预测采用了差分整合移动平均自回归模型 (ARIMA) 进行,ARIMA 模型是最早由 BOX 等^[18]开发出来的最典型的时间序列模型之一,ARIMA 模型的建立不需要考虑其他相关随机变量的变化,只对数据的稳定性有要求,已经广泛地运用于水质领域的时间序列预测研究^[23-26]。刘潭秋等^[27]运用 ARIMA 模型对河流重金属进行预测,得出的结果预测水平较高。模型一般式为

$$X_t = \varphi_1 X_{t-1} + \dots + \varphi_p X_{t-p} + \theta_1 \varepsilon_{t-1} + \dots +$$

$$\theta_q \varepsilon_{t-q} + \varepsilon_t \quad (3)$$

式中: t 表示时间序列序号; $\varphi_i (i=1, \dots, p)$ 和 $\theta_i (i=1, \dots, q)$ 表示模型参数; ε_t 是均值为 0 的白噪声序列。

由于 ARIMA 模型的建立对数据的平稳性有一定要求,首先需要对数据进行平稳处理,对于原始数据平稳性较差的情况,通常采用差分的方法对数据进行处理,公式如下:

$$\Delta f(x_k) = f(x_k) - f(x_{k-1}) \quad (4)$$

对模型中自相关项数 p 和偏自相关项数 q 的确定,采用 AIC 标准法,即 AIC 值越低,对应 p 和 q 的模型精度越高,通过此方法确定模型的阶数后,即可对模型进行验证并完成预测。AIC 计算公式如下:

$$AIC = \frac{-2}{T} L + \frac{2}{T} \times (p+q) \quad (5)$$

式中: L 表示最大似然估计值所对应的对数似然函数; T 表示样本容量; $(p+q)$ 表示模型参数个数。

2 结果与分析

2.1 长江口水体重金属变化趋势分析

2.1.1 长江口水体重金属季节含量变化趋势分析

为了研究5种重金属在2004—2017年间的变化情况,分别将14个站点每次采样测得的重金属数据取平均,并采用移动平均的方法对数据进行处理,消除或减弱了时间序列数据的不规则变动,由于2004—2010年间的數據存在部分缺失,故不在此时间段的数据进行详细分析,仅对其变化情况进行叙述,2011—2017年重金属变化如图2所示。

2004—2008年Cu的年平均浓度为16.34、13.82、8.96、5.46和5.32 $\mu\text{g/L}$,在此期间,Cu含量出现较为明显的下降,2011—2017年间的下降幅度与之相比较小,且在2012年和2015年前后出现小幅度的增长,总体上呈现下降趋势。

2004—2008年Zn的年平均浓度为38.30、35.78、33.37、24.78和20.74 $\mu\text{g/L}$,5年期间存在一定程度的下降,下降比例为37.76%,2011—2017年下降幅度高于2004—2008年,下降趋势较为明显,且在2011年和2015年前后出现一定幅度的增长,整体上呈现下降趋势。

2004—2008年Pb的年平均浓度为15.98、9.82、2.87、1.42和1.30 $\mu\text{g/L}$,这5年期间Pb的下降幅度较大,下降比例超过90%,2011—2017年的下降幅度与之相比较小,但仍呈现下降趋势,且在2011年和2015年前后出现一定幅度增长。

2004—2008年Hg的年平均浓度为0.16、0.11、0.11、0.12和0.14 $\mu\text{g/L}$,Hg在这5年期间未出现明显的浓度变化,2011—2017年期间在2013年前后出现小幅度下降,2012和2015年出现小幅度增长,整体上下降趋势不显著。

2004—2008年As的年平均浓度为4.72、4.17、3.84、4.04和3.90 $\mu\text{g/L}$,As这5年间的存在小幅度的下降,2011—2017年间的下降趋势较为明显,整体上保持平稳的下降,仅在2015年前后出现小幅度的增长。

由于近十几年来的五年计划都将环境放在重要的地位,发展经济的同时越来越重视环境保护。图3为国家对环境废水治理方面的投入资金,从2004年的不到100亿元增长到2017年的近2500亿元,增长幅度明显,使得水体中重金属含量出现了不同程度的下降。2004年颁布并实施了《长江口综合整治规划要点报告》,对长江口的综合整治包括水环境和航道等多个方面,实施周期长达10年之久,这一政策的实施对长江口重金属含量变化有着极大的正面影响。大量人力物力的投入使得研究区域重金属的含量出现了明显的变化,Cu、Zn、Pb、Cd、Hg和As污染物总排放量如图4所示,2004—2009年期间重金属污染物排放量无明显变化,2010—2012期间出现增长,随后出现较为明显的下降并在2015年出现小幅度增长,导致了重金属含量在2011年前后和2015年前后出现不同程度增长,整体上呈现了先下降,后逐渐趋于稳定的变化趋势。

2.1.2 长江口不同区域水体重金属含量年变化趋势分析

由于长江口不同区域水文等因素的差异,本文将长江口分成了北支、南支北港和北港北沙3个区域分别进行分析,将每年四个季节的数据按3个区域分别取算数平均后进行分析。

2011—2017年5种重金属变化情况如图5所示,3个区域整体上变化趋势与前文分析得出的整体变化情况基本一致,但由于3个区域径流量存在一定差异,北支径流量小于其他2个区域,使北支的重金属含量略低,重金属的下降趋势也存在一定差异。

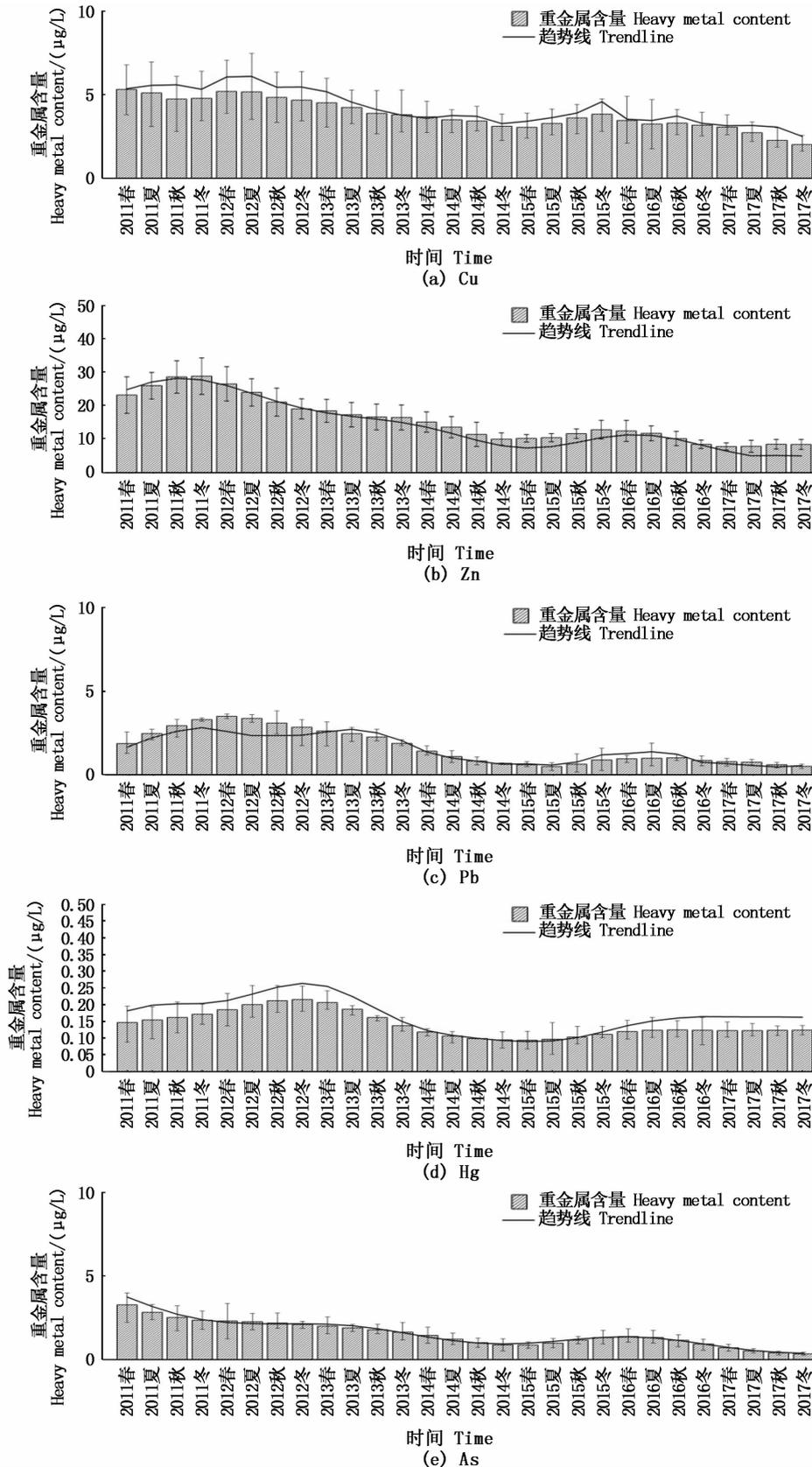


图 2 2011—2017 年重金属季节含量及趋势变化图

Fig. 2 Seasonal content and trends of heavy metals from 2011 to 2017

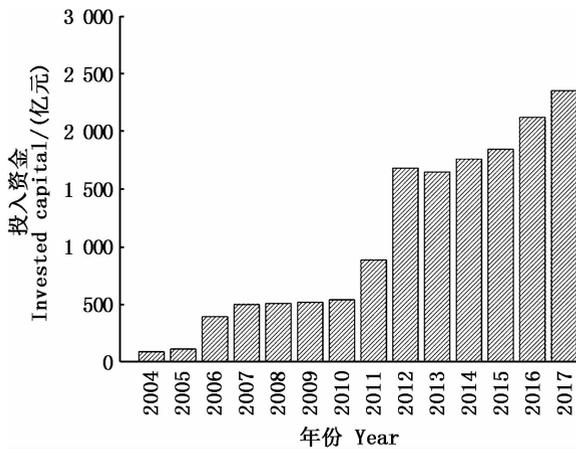


图3 历年废水治理投入资金情况

Fig. 3 Investment in waste water treatment over the years

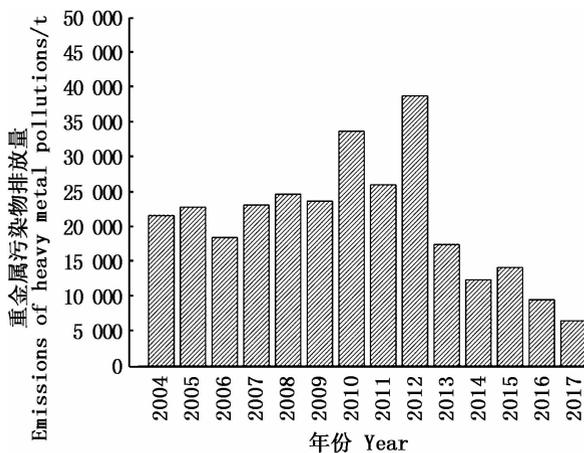


图4 长江历年重金属污染物排放量变化

Fig. 4 Changes in the discharge of heavy metal pollutants into the Yangtze River over the years

2.2 重金属与环境因子相关性分析

为研究温度、盐度、pH 和 DO 4 个环境因子对 Cu、Pb、Zn、Hg 和 As 5 种重金属的影响,首先对温度、盐度、pH 和 DO 的时间序列数据与重金属含量的时间序列数据进行分析,温度、盐度、pH 和 DO 的变化趋势如图 6 所示,对比这 4 种环境因子与重金属的时间变化趋势发现,这 4 种环境因子与重金属含量的变化趋势明显不同,重金属在研究时间跨度内呈现明显的下降趋势,而环境

因子较为平稳,对其分别进行相关性分析得出,5 种重金属的时间变化趋势与环境因子无明显相关性($P > 0.05$)。

2.3 重金属与社会经济因素相关性分析

为研究社会因素对重金属含量变化的影响,本次研究对废水治理资金投入、重金属排污情况和总重金属含量进行了相关性分析,分为 2004—2008 年和 2011—2017 年两组,如表 3 所示,随着资金投入的力度加大,2004—2008 年 Cu、Zn、Pb 和 As 含量呈现下降趋势,两者呈显著负相关,与 2011—2017 年的重金属相关性不显著;2004—2008 年重金属含量与排污量之间相关性不显著,2011—2017 年 5 种重金属的含量均与排污量有显著相关性。这可能由于在早期重金属污染较为严重,环境治理效率较高,故在早期重金属含量较高时,治理投入对其影响较大,排污量的影响相对不够显著。而在重金属浓度控制到一定水平后,治理难度上涨,此时污染物排放量的影响更为突出,成为了控制重金属含量变化的主要影响因素。

2.4 重金属变化趋势预测

2.4.1 模型的建立与验证

前文分析得出 3 个区域重金属变化存在一定差异,采用 ARIMA 模型对 3 个区域的重金属分别进行预测能够更好的突出不同区域重金属的变化特征。ARIMA 模型预测对时间序列数据的稳定性有较高要求,首先对于建模的 2011—2017 年数据进行平稳化处理,并采用 ADF 单位根检验判定,直至时间序列数据平稳方可进行下一步。

针对已经经过平稳化处理后的数据,本研究采用 R 语言对模型进行建立,通过 auto.arima 函数查看并确定 ARIMA 函数的自相关系数 p 和偏自相关系数 q ,经 auto.arima 函数的筛选和逐一尝试,采用了 AIC 准则确定了 p 和 q 的值,即 AIC 值越小,自相关系数和偏自相关系数对应的模型精度越高,并对对应模型的参数 AR 和 MA 进行估计,即公式 3 中的 φ_p 和 θ_q ,模型结果如表 4 所示。

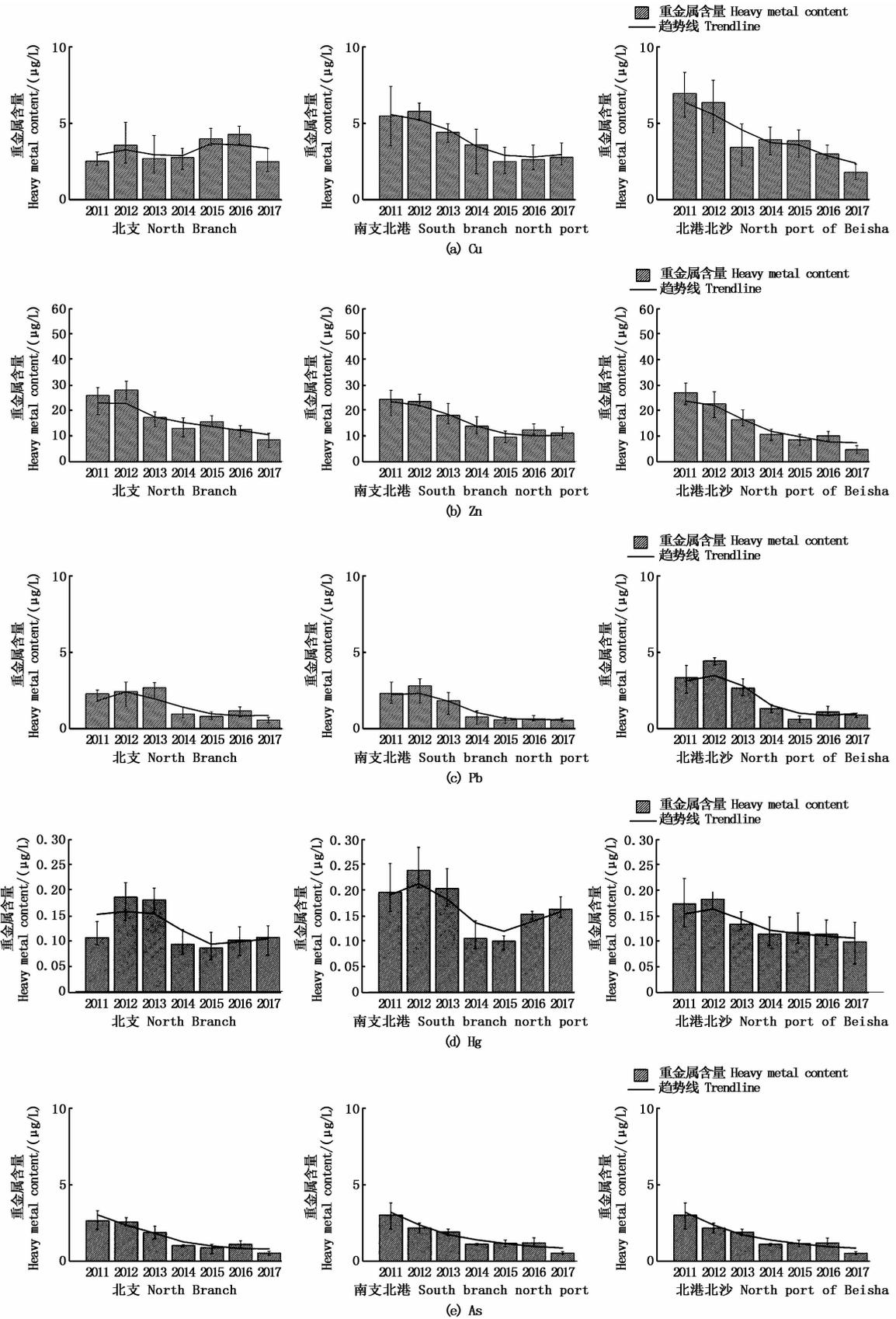


图5 2011—2017年不同区域重金属年变化及趋势线

Fig. 5 Annual changes and trend lines of heavy metals in different regions from 2011 to 2017

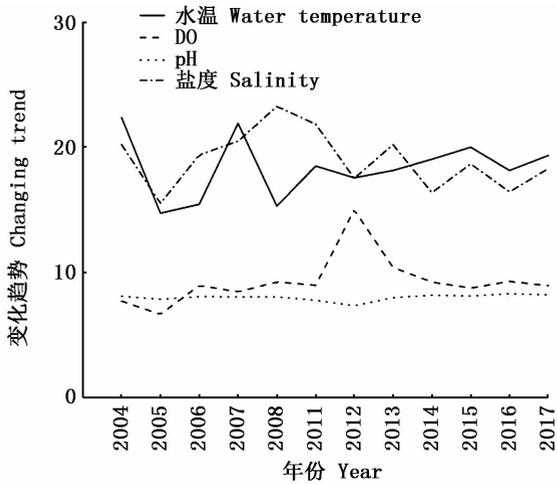


图 6 4 种环境因子变化趋势图
Fig. 6 Four kinds of environmental factors change trend chart

为保证模型预测的精度,本研究将 2015 年秋至 2017 年冬的数据用于模型精度的检验,将实测数据与预测数据进行拟合,拟合结果如图 7 所示,根据图中数据可知,预测值与实测值拟合情况较好,预测值的变化趋势与实测值基本保持一致。对预测值和实测值的残差情况进行了残差分析,标准化残差随机分布在 95% 置信区间内,仅有少数值标准化残差点散分在置信区间外,证明模型较为合理,可靠性较强。Cu、Zn、Pb、Hg 和 As 平均误差分别为 5.19%、5.78%、11.82%、9.63% 和 7.77%,与饶运章等^[20]得出的 ARIMA 预测模型精度相近,精度较高,能够满足对重金属变化趋势的预测精度要求。

表 3 5 种重金属与社会经济因素相关性分析结果

Tab. 3 Correlation analysis results of five heavy metals and socioeconomic factors

重金属种类 Types of heavy metals	废水治理投入 Input in wastewater treatment		排污量 Pollutant discharge	
	2004—2008 年	2011—2017 年	2004—2008 年	2011—2017 年
Cu	-0.571 *	-0.264	0.311	0.394 *
Zn	-0.556 *	-0.236	0.213	0.491 **
Pb	-0.534 *	-0.315	0.204	0.474 **
Hg	-0.465	-0.302	0.234	0.363 *
As	-0.531 *	-0.281	0.258	0.457 *

注: * 表示具有显著相关性, ** 表示具有极显著相关性; 2004—2008 年 $n = 12$, 2011—2017 年 $n = 28$

Notes: * indicates significant correlation, and ** indicates very significant correlation; $n = 12$ from 2004 to 2008, $n = 28$ from 2011 to 2017

表 4 3 个区域不同重金属模型结果

Tab. 4 Results of different heavy metal models in three regions

区域 Region	重金属种类 Types of heavy metals	ARIMA(p, d, q)	模型结果 The result of the model
北支 North branch	Cu	ARIMA(2, 1, 1)	$X_t = -0.147X_{(t-1)} + \varepsilon_t - 0.794X_{(t-2)} + 0.491\varepsilon_{(t-1)}$
	Zn	ARIMA(1, 2, 2)	$X_t = -0.294X_{(t-1)} + \varepsilon_t + 1.339\varepsilon_{(t-1)} - 0.412\varepsilon_{(t-2)}$
	Pb	ARIMA(2, 1, 2)	$X_t = 0.637X_{(t-1)} - 0.313X_{(t-2)} + \varepsilon_t + 1.384\varepsilon_{(t-1)} - 0.997\varepsilon_{(t-2)}$
	Hg	ARIMA(1, 1, 2)	$X_t = 0.319X_{(t-1)} + \varepsilon_t + 1.258\varepsilon_{(t-1)} - 0.882\varepsilon_{(t-2)}$
	As	ARIMA(3, 1, 2)	$X_t = -0.715X_{(t-1)} - 0.118X_{(t-2)} + 0.046X_{(t-3)} + \varepsilon_t + 0.137\varepsilon_{(t-1)} + 0.860\varepsilon_{(t-2)}$
南支北港 South branch north port	Cu	ARIMA(2, 1, 1)	$X_t = -0.129X_{(t-1)} + \varepsilon_t - 0.417X_{(t-2)} + 0.381\varepsilon_{(t-1)}$
	Zn	ARIMA(1, 2, 2)	$X_t = 0.378X_{(t-1)} + \varepsilon_t + 1.943\varepsilon_{(t-1)} - 0.959\varepsilon_{(t-2)}$
	Pb	ARIMA(2, 1, 2)	$X_t = -0.335X_{(t-1)} + 0.926X_{(t-2)} + \varepsilon_t - 0.185\varepsilon_{(t-1)} - 0.753\varepsilon_{(t-2)}$
	Hg	ARIMA(1, 1, 2)	$X_t = -0.415X_{(t-1)} + \varepsilon_t + 0.214\varepsilon_{(t-1)} - 0.150\varepsilon_{(t-2)}$
	As	ARIMA(2, 1, 2)	$X_t = -0.412X_{(t-1)} - 0.106X_{(t-2)} + \varepsilon_t + 0.003\varepsilon_{(t-1)} + 0.995\varepsilon_{(t-2)}$
北港北沙 North port of Beisha	Cu	ARIMA(1, 1, 2)	$X_t = -0.623X_{(t-1)} + \varepsilon_t + 0.547\varepsilon_{(t-1)} + 0.515\varepsilon_{(t-2)}$
	Zn	ARIMA(1, 2, 2)	$X_t = -0.712X_{(t-1)} + \varepsilon_t + 0.483\varepsilon_{(t-1)} + 0.542\varepsilon_{(t-2)}$
	Pb	ARIMA(1, 1, 0)	$X_t = -0.356X_{(t-1)} + \varepsilon_t$
	Hg	ARIMA(1, 1, 2)	$X_t = -0.187X_{(t-1)} + \varepsilon_t + 0.694\varepsilon_{(t-1)} + 0.305\varepsilon_{(t-2)}$
	As	ARIMA(2, 1, 2)	$X_t = -0.437X_{(t-1)} - 0.365X_{(t-2)} + \varepsilon_t + 0.595\varepsilon_{(t-1)} + 0.404\varepsilon_{(t-2)}$

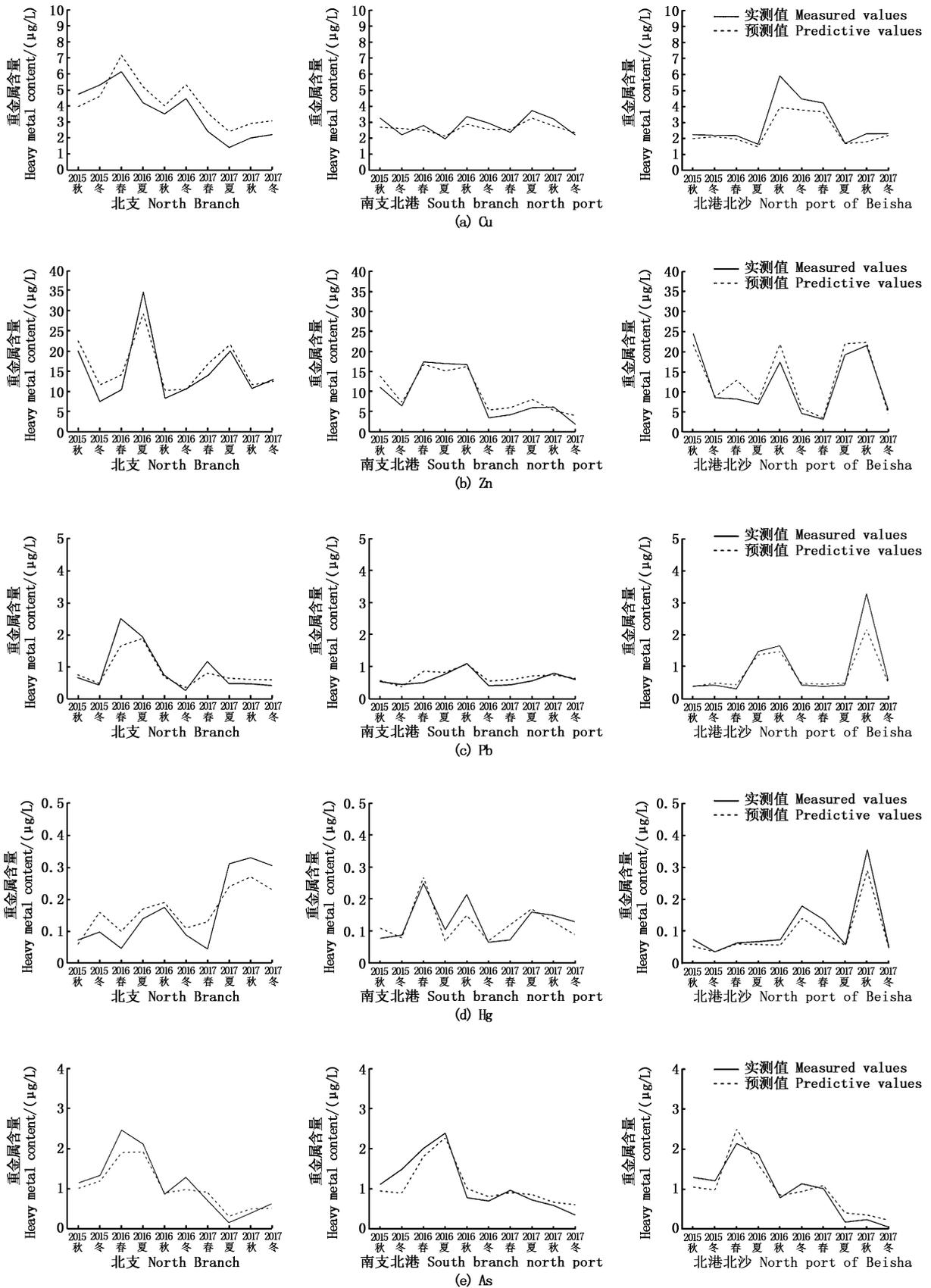


图 7 长江口不同区域重金属模型预测与实测值拟合曲线图
 Fig.7 Fitting curve diagram of heavy metal model prediction and measured value in different regions of the Yangtze River Estuary

表 5 5 种重金属平均残差

重金属种类 Types of heavy metals	北支 North branch	南支北港 South branch north port	北港北沙 North port of Beisha
Cu	0.879	0.352	0.459
Zn	2.357	1.546	2.102
Pb	0.205	0.112	0.185
Hg	0.055	0.028	0.020
As	0.195	0.194	0.194

2.4.2 重金属含量预测及趋势分析

根据上文所建立的预测模型,对长江口口门区域 2020—2022 年的重金属含量情况进行预测并对预测数据进行趋势分析,由图 8 可知,预测数据均处在置信区间内,模型可靠性较高,2020—2022 年的重金属含量相比于早些年重金属含量处于较低水平,根据趋势分析可知,5 种重金属的变化趋势基本相同,在这 3 年间仅出现小幅度的增加,整体处于稳定的水平,这与 2011—2017 年数据趋势分析得出的重金属数据由高到低,并逐渐趋于稳定的结论一致,进一步证实了该模型对研究区重金属含量预测具有较高精度,能够帮助了解未来几年重金属含量水平。

3 讨论

Cu 和 Pb 在 2011—2017 年间整体呈现下降趋势,下降幅度低于 2004—2008 年,Zn 和 As 在 2011—2017 年间一直处于稳定的下降趋势,Hg 的下降趋势较小,且 5 种重金属均在 2011 年和 2015 年前后出现不同幅度的增长。分析得出,出现这种变化是由于 2011—2017 年间重金属的综合排放量由 25 984 t 下降到了 6 506 t,使得 Cu、Zn、Pb、As 4 种重金属呈现显著的下降趋势,Hg 的单体年排放量一直维持在 50 t 左右,使其含量下降趋势较小。如图 4 所示 2010—2012 年和 2015 年前后,重金属综合排放量出现增长,导致这段时间内重金属出现不同程度的增长。

对不同区域水体重金属含量的变化研究发现,3 个区域重金属的时间变化趋势与整体的变化趋势基本一致,但在重金属污染物排放量增加的年份,北港北沙和南支北港径流量较大的区域变化幅度相对较高,这是由于重金属污染物随着

径流进入长江口海域,径流量较大的区域汇入的重金属相对较多。

对比环境因子和重金属的时间序列数据变化发现,环境因子与重金属之间无明显相关性 ($P > 0.05$),这可能是由于在长时间序列上,环境因子的变化较小,对重金属含量的影响远小于人为因素的影响。

分析了重金属含量与废水治理投入和重金属污染物排放量的相关性,2004—2008 年 Cu、Zn、Pb 和 As 含量与环境治理投入呈显著负相关,与 2011—2017 年的重金属相关性不显著;2004—2008 年重金属含量与排污量之间相关性不显著,2011—2017 年 5 种重金属的含量均与排污量有显著相关性。这可能由于在早期重金属污染较为严重,环境治理效率较高,故在早期重金属含量较高时,治理投入对其影响较大,排污量的影响相对不够显著。而在重金属浓度控制到一定水平后,治理难度增加,此时污染物排放量的影响更为突出,成为了控制重金属含量变化的主要影响因素。结果表明,重金属的持续下降是污染物排放量和废水治理投资共同作用的结果,污染物排放量控制在稳定或下降的前提下,逐步增加环境治理的资金投入,能够有效地降低环境中的重金属含量。

由于长江口北支、南支北港、北港北沙 3 个区域的盐度和径流量等因素的差异,采用 ARIMA 模型分别对 3 个区域进行建模预测,预测得出 2020—2022 年长江口口门区域重金属含量较低,且趋势较为稳定,经验证,模型具有较高的精度,分区进行预测能够突出不同区域的特征,预测结果更具针对性,为拟定长江口重金属治理方案提供更为详细的依据。

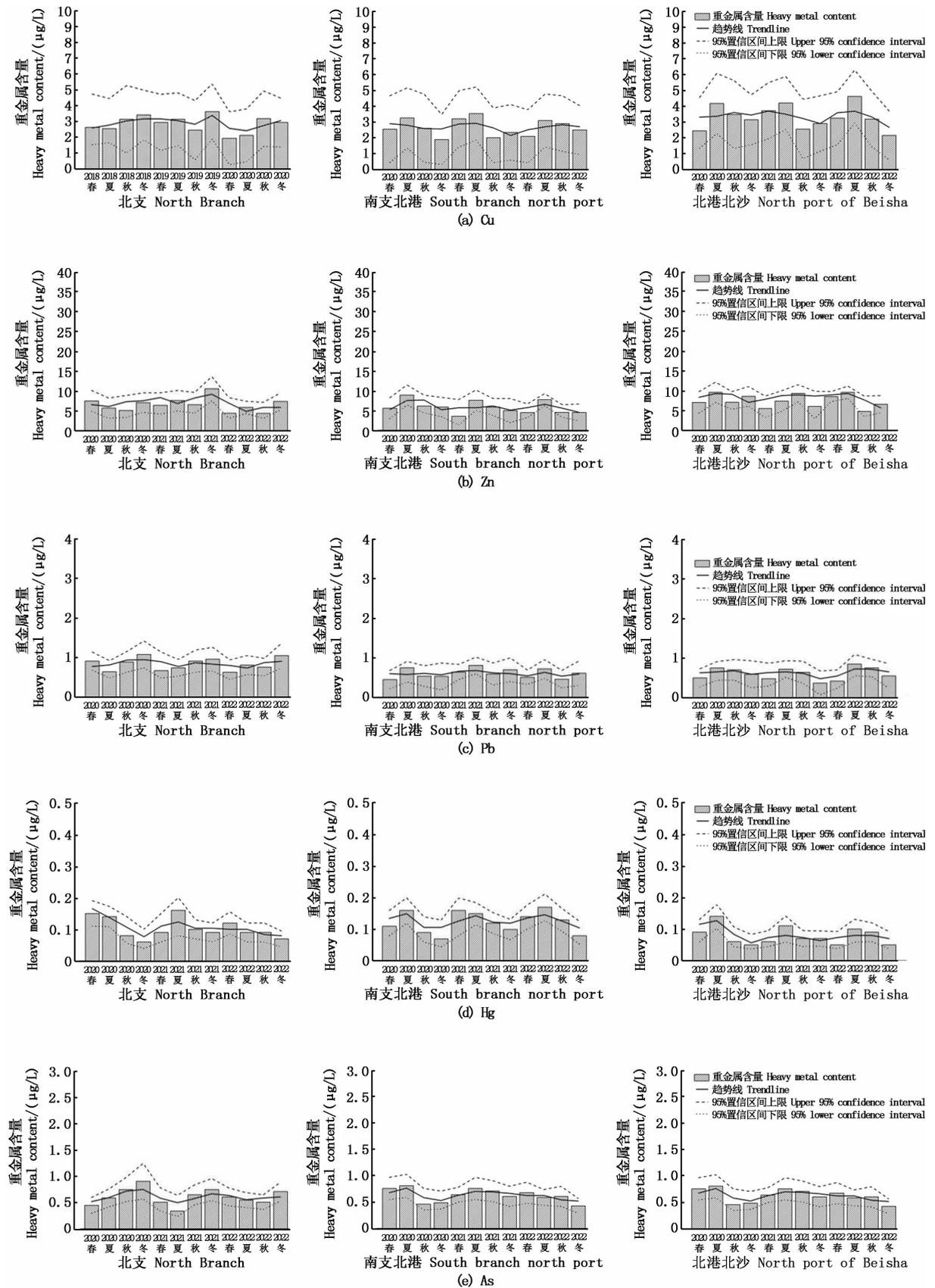


图 8 2020—2022 年重金属含量预测及趋势分析图

Fig. 8 2020 – 2022 heavy metal content prediction and trend analysis chart

参考文献:

- [1] 王金辉, 黄秀清, 刘阿成, 等. 长江口及邻近水域的生物多样性变化趋势分析[J]. 海洋通报, 2004, 23(1): 32-39.
WANG J H, HUANG X Q, LIU A C, et al. Tendency of the biodiversity variation nearby Yangtze River Estuary [J]. Marine Science Bulletin, 2004, 23(1): 32-39.
- [2] 张丽旭, 蒋晓山, 赵敏, 等. 长江口海域表层沉积物污染及其潜在生态风险评价[J]. 生态环境学报, 2007, 16(2): 389-393.
ZHANG L X, JIANG X S, ZHAO M, et al. Pollution of surface sediments and its assessment of potential ecological risk in the Yangtze River Estuary [J]. Ecology and Environment, 2007, 16(2): 389-393.
- [3] KRISHNA A K, SATYANARAYANAN M, GOVIL P K. Assessment of heavy metal pollution in water using multivariate statistical techniques in an industrial area: A case study from Patancheru, Medak District, Andhra Pradesh, India[J]. Journal of Hazardous Materials, 2009, 167(1-3): 366-373.
- [4] 罗昆, 李亮, 龙根元, 等. 海南岛南部海域沉积物重金属污染及潜在生态风险评价[J]. 上海海洋大学学报, 2017, 26(1): 85-93.
LUO K, LI L, LONG G Y, et al. Heavy metal pollution and their ecological risk assessment in sediments from southern Hainan Island [J]. Journal of Shanghai Ocean University, 2017, 26(1): 85-93.
- [5] 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.
- [6] 梁开, 黄向清, 郑志昌. 我国南方沿海海域有害重金属污染之现状调查[C]//2007年全国铅污染监测与控制治理技术交流研讨会论文集. 北京: 中国环境科学学会, 2007.
LIANG K, HUANG X Q, ZHENG Z C. Investigation on the current situation of harmful heavy metal pollution in coastal areas of southern China [C]// National Seminar on Lead Pollution Monitoring and Control Technology Exchange. Beijing: Chinese Society for Environment Sciences, 2007.
- [7] 徐姗楠, 李纯厚, 徐娇娇, 等. 大亚湾石化排污海域重金属污染及生态风险评价[J]. 环境科学, 2014, 35(6): 2075-2084.
XU S N, LI C H, X J J, et al. Pollution by heavy metals in the petrochemical sewage waters of the sea area of Daya Bay and assessment on potential ecological risks [J]. Environmental Science, 2014, 35(6): 2075-2084.
- [8] 肖利. 洋山港及其邻近海域重金属污染研究[D]. 上海: 上海海洋大学, 2011.
XIAO L. Study on heavy metal pollution in Yangshan Port and its adjacent sea areas [D]. Shanghai: Shanghai Ocean University, 2011.
- [9] 刘珊珊, 张勇, 龚淑云, 等. 长江三角洲经济区海域沉积物重金属分布特征及环境质量评价[J]. 海洋地质与第四纪地质, 2013, 33(5): 63-71.
LIU S S, ZHANG Y, GONG S Y, et al. Distribution pattern of heavy metals in the surface sediments and environment quality evaluation for the Yangtze River deltaic economic zone [J]. Marine Geology & Quaternary Geology, 2013, 33(5): 63-71.
- [10] 谭赛章, 孙亚伟, 可愚, 等. 长江口及其邻近海区主要化学要素基线值变化特征[J]. 上海海洋大学学报, 2017, 26(1): 94-102.
TAN S Z, SUN Y W, KE Y, et al. Variation characteristics of parameters baseline values for the Yangtze River Estuary and its adjacent areas [J]. Journal of Shanghai Ocean University, 2017, 26(1): 94-102.
- [11] 李娟英, 崔昱, 范清平, 等. 洋山港海域表层海水中重金属及石油烃污染周年监测与评价[J]. 上海海洋大学学报, 2014, 23(1): 95-101.
LI J Y, CUI Y, FAN Q P, et al. Annual monitoring and analysis of pollution characters of heavy metal and petroleum hydrocarbon in surface seawater from Yangshan Port [J]. Journal of Shanghai Ocean University, 2014, 23(1): 95-101.
- [12] 田壮, 方淑波, 印春生, 等. 盐城海岸带景观格局变化和重金属空间分布相关分析[J]. 上海海洋大学学报, 2013, 22(6): 912-921.
TIAN Z, FANG S B, YIN C S, et al. Evaluation of spatial correlation between landscape pattern changes and heavy metals spatial interpolation analysis along Yancheng coast [J]. Journal of Shanghai Ocean University, 2013, 22(6): 912-921.
- [13] 罗家宏, 王华, 刘晓晖. 长江口近10年上覆水Cu负荷演变特征分析[J]. 环境工程, 2019, 37(11): 30-35.
LUO J H, WANG H, LIU X H. Analysis of evolution characteristics of Cu load on overlying water in the Yangtze River Estuary [J]. Environmental Engineering, 2019, 37(11): 30-35.
- [14] 宛立, 王年斌, 丁倩, 等. 锦州湾海域重金属的污染分布[J]. 水产科学, 2009, 28(12): 801-804.
WAN L, WANG N B, DING Q, et al. The Distribution of heavy metal pollution in Jinzhou Bay, Bohai Sea [J]. Fisheries Science, 2009, 28(12): 801-804.
- [15] 付云娜, 陈则玲, 付宇众, 等. 锦州湾地区人发中Cd、Hg累积的调查研究[J]. 海洋环境科学, 1992, 11(2): 61-64.
FU Y N, CHEN Z L, FU Y Z, et al. Investigation and research on Cd and Hg accumulation in human hair in Jinzhou Bay area [J]. Marine Environmental Science, 1992, 11(2): 61-64.
- [16] WAN L, WANG N B, LI Q B, et al. Distribution of dissolved metals in seawater of Jinzhou Bay, China [J]. Environmental

- Toxicology and Chemistry,2008,27(1):43-48.
- [17] 于淑芳,申小冉,吕家珑.渤海天津近海海域重金属年际变化分析[J].西北农业学报,2009,18(6):352-355.
YU S F, SHEN X R, LYU J L. Analysis on interannual variability of heavy metal in coastal waters of Tianjin Bohai Sea[J]. Acta Agriculturae Boreali-occidentalis Sinica,2009,18(6):352-355.
- [18] BOX G E P, JENKINS G M. Time series analysis forecasting and control[M]. Holden-Day, 1970.
- [19] 潘怡. 上海海域水质模糊综合评价及趋势预测研究[D]. 上海:上海交通大学,2008.
PAN Y. Comprehensive assessment of seawater quality by using fuzzy mathematical model in Shanghai adjacent sea area and trend prediction [D]. Shanghai: Shanghai Jiao Tong Univrtsity, 2008.
- [20] 饶运章,徐水太,熊灵燕. 基于 ARIMA 模型的矿区重金属污染时间序列预测[J]. 金属矿山,2010,39(6):142-146.
RAO Y Z, XU S T, XIONG L Y. Time series prediction of heavy metal pollution in mining areas based on ARIMA model [J]. Metal Mine, 2010,39(6):142-146.
- [21] NUNNARI G, NUCIFORA A F M, RANDIERI C. The application of neural techniques to the modelling of time-series of atmospheric pollution data [J]. Ecological Modelling, 1998, 111(2-3):187-205.
- [22] 国家质量技术监督局. 中华人民共和国国家标准 GB 17378.4-2007 海洋监测规范 第4部分:海水分析[S]. 北京:中国标准出版社,2007.
The state bureau of quality and technical supervision. national standards of people's republic of China GB 17378.4-2007 marine monitoring specification fourth part:seawater analysis [S]. Beijing:Standard Press of China,2007.
- [23] CHALOULAKOU A, ASSIMACOPOULOS D, LEKKAS T. Forecasting daily maximum ozone concentrations in the Athens Basin[J]. Environmental Monitoring & Assessment, 1999, 56(1):97-112.
- [24] LEHMANN A, RODE M. Long-term behavior and cross-correlation water quality analysis of the River Elbe, Germany [J]. Water Research, 2001, 35(9):2153-2160.
- [25] DELLANA S A, WEST D. Predictive modeling for wastewater applications: linear and nonlinear approaches [J]. Environmental Modelling and Software, 2009, 24(1):96-106.
- [26] 俞慎, 厉红波. 沉积物再悬浮-重金属释放机制研究进展[J]. 生态环境学报,2010,19(7):1724-1731.
YU S, LI H B. Perspectives on the release of heavy metals via sediment resuspension [J]. Ecology and Environmental Sciences,2010,19(7):1724-1731.
- [27] 刘潭秋,沈新平,王汉华. 基于一种时间序列模型的河流重金属污染浓度预测研究[J]. 计算技术与自动化,2012,31(3):29-33.
LIU T Q, SHEN X P, WANG H H. Research on the prediction of river heavy metal pollution concentration based on a time series model [J]. Computing Technology and Automation,2012,31(3):29-33.

Research on the temporal variation trend and prediction of heavy metals in the Yangtze River Estuary

PAN Yudi¹, YANG Hong¹, WU Jianhui², WANG Chunfeng¹

(1. College of Marine Ecology and Environment, Shanghai Ocean University, Shanghai 201306, China; 2. Shanghai Aquatic Wildlife Conservation and Research Center, Shanghai 200092, China)

Abstract: By investigating the contents of five heavy metals Cu, Zn, Pb, Hg, and As in the water body of the Yangtze River Estuary area from 2004 to 2017, the change trends and influencing factors of water heavy metal contents in the three areas of Beizhi, Nanzhi Beigang and Beigang Beisha were analyzed and the contents of heavy metals were predicted in the next few years. The results show that Cu and Pb showed a downward trend as a whole from 2011 to 2017, and the decline rate was lower than that from 2004 to 2008. Zn and As were in a stable downward trend from 2011 to 2017. The downward trend of Hg is small, and five heavy metals increased in 2011 and 2015 when pollutant emissions increased, and regions with larger runoffs experienced larger increases; Analyzing the influencing factors, it is concluded that due to the high content of heavy metals in the early water body, the effectiveness of the treatment investment is greater than the impact of pollutant discharge. Therefore, the contents of Cu, Zn, Pb, and As from 2004 to 2008 were significantly negatively correlated with the environmental treatment investment, and the correlation with the amount of discharge is not significant; After the heavy metal content was controlled to a low level, the difficulty of governance increased and the effectiveness was weakened. Pollutant emissions became the main influencing factor for the control of heavy metal content. Therefore, the correlation between heavy metal content and environmental governance investment from 2011 to 2017 was not significant, and there is a significant positive correlation with the amount of discharge; Due to the differences in salinity and runoff in the three regions of the Yangtze River Estuary, ARIMA model was used to predict the heavy metals in different regions, and the heavy metal content in the water bodies of the three regions at the mouth of the Yangtze River Estuary from 2020 to 2022 was predicted to be low and the change trend is relatively stable, the model has a high accuracy, the error is between 5.19% and 11.82%. The regional prediction can highlight the heavy metal content and change characteristics of different regions, the prediction results are more targeted, and can be used for future governance.

Key words: Yangtze River Estuary; sequentially; heavy metals; forecast; factors affecting