

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*

匡荟芬, 胡春华**, 吴根林, 陈 苗

(南昌大学资源环境与化工学院, 鄱阳湖环境与资源利用教育部重点实验室, 南昌 330031)

摘 要: 为识别表层沉积物重金属的来源以及量化源贡献, 选取鄱阳湖丰水期表层沉积物为研究对象, 测定 14 种重金属 (V、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Sr、Mo、Cd、Sb、W、Pb、Hg 和 As) 的含量, 分析其污染及空间分布特征, 并利用主成分分析法 (PCA) 和正定矩阵因子分解法 (PMF) 对沉积物重金属进行源解析。结果表明: 除 V 和 Cr 外, Cd、Mo、Hg、Cu、Pb、Zn、W、Sr、As、Ni、Co 和 Sb 的平均含量分别为江西省土壤背景值的 5.7、2.2、1.9、1.8、1.5、1.5、1.4、1.3、1.3、1.2、1.0 和 1.0 倍; Cd、Hg、Cu、Mo、Pb、Sr 和 Zn 超出江西省土壤背景值的比例相对较高, 分别为 100%、100%、100%、100%、97%、97% 和 93%, 所有沉积物样品中 Cd 含量超过农用地土壤污染风险筛选值的比例为 51%; V、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Sr、Mo、Sb、W、Pb、Hg 和 As 含量呈未污染至弱污染水平, 而 Cd 含量属于中等污染水平, 接近于重污染水平。总体而言, Cd 的污染相对较严重。重金属的分布具有显著的区域特征, 其中 Cr、Cu、Zn、Sr、Pb、Hg 和 As 的空间分布十分相似, 表现为在赣江、抚河、信江和饶河入湖口附近区域含量较高, 而 Co、Ni、Mo 和 Sb 明显在湖区南部、东北部和修水入湖附近这 3 个区域聚集, Cd 和 W 的空间变异性相对较大, V 的含量分布相对较均匀。PCA 和 PMF 解析结果都表明鄱阳湖丰水期表层沉积物重金属受 4 种来源的共同影响, 其中, 矿业和工业活动的影响最大, 相对贡献率为 38%, 其次是尾矿和废渣, 相对贡献率为 28%, 再是农业活动, 相对贡献率为 19%, 最后是自然来源的相对贡献率为 14%。

关键词: 主成分分析; 正定矩阵因子分解; 鄱阳湖; 沉积物; 重金属; 源解析; 丰水期

Combination of PCA and PMF to apportion the sources of heavy metals in surface sediments from Lake Poyang during the wet season*

KUANG Huifen, HU Chunhua**, WU Genlin & CHEN Miao

(Key Laboratory of Poyang Lake Environment and Resource Utilization, Ministry of Education, School of Resources Environmental and Chemical Engineering, Nanchang University, Nanchang 330031, P.R.China)

Abstract: In order to identify the source of heavy metals and quantify their contributions, surface sediment of Lake Poyang during the wet season were selected as the research object, and the contents of 14 heavy metals (V, Cr, Co, Ni, Cu, Zn, Sr, Mo, Cd, Sb, W, Pb, Hg and As) were determined. The pollution and spatial distribution characteristics of 14 heavy metals were analyzed, and the principal component analysis (PCA) and positive definite matrix factorization (PMF) were applied to apportion the sources of sediment heavy metals. The results showed that except for V and Cr, the average contents of Cd, Mo, Hg, Cu, Pb, Zn, W, Sr, As, Ni, Co and Sb were 5.7, 2.2, 1.9, 1.8, 1.5, 1.5, 1.4, 1.3, 1.3, 1.2, 1.0 and 1.0 times of their respective soil background values of Jiangxi Province. The exceeding rates of Cd, Hg, Cu, Mo, Pb, Sr and Zn were relatively high, there were 100%, 100%, 100%, 100%, 97%, 97% and 93% of sediment samples with higher Cd, Hg, Cu, Mo, Pb, Sr and Zn contents than their respective soil background values of Jiangxi Province, respectively. And 51% of sediment samples had higher Cd contents than the risk screening values for soil contamination of agricultural land. V, Cr, Co, Ni, Cu, Zn, Sr, Mo, Sb, W, Pb, Hg and As were at unpolluted to minimal contamination levels, while Cd displayed moderate contamination level, closed to heavy con-

* 2019-10-18 收稿; 2019-12-08 收修改稿。

国家自然科学基金项目 (41663002)、江西省自然科学基金项目 (20161BAB203080) 和鄱阳湖环境与资源利用重点实验室支持项目 (13005870, 13005879) 联合资助。

** 通信作者; E-mail: chhu@ncu.edu.cn.

tamination level. Overall, the pollution of Cd was relatively serious. The distribution of heavy metals had significant regional characteristics. The spatial distributions of Cr, Cu, Zn, Sr, Pb, Hg and As were very similar, showing the high content values were clustered near the river inlets of Ganjiang, Fuhe, Xinjiang, Raohe, while Co, Ni, Mo and Sb were obviously concentrated in the southern of lake region, the northeast region and the Xiushui into the lake. The spatial variability of Cd and W was relatively large, while the contents of V were relatively uniform. Source apportionment results of PCA and PMF indicated that the heavy metals in surface sediments from Lake Poyang during the wet season were affected by four sources. Mining and industrial activities, tailings and waste residue, agricultural activities were identified as the main anthropogenic sources for sediment heavy metals in this study area, accounting for 38%, 28% and 19% of the total contribution, respectively. The remainder was the natural source, accounting for 14% of total contribution.

Keywords: Principal component analysis; positive matrix factorization; Lake Poyang; sediment; heavy metal; source apportionment; wet season

重金属是典型的累积型污染物,其具有不可降解性、显著生物毒性和持久性特征,对环境质量构成了潜在的生态风险^[1]。随着我国工业化、城镇化和农业现代化的发展及污染物排放量的增加,沉积物重金属污染已经成为湖泊等水体最为突出的环境问题之一^[2-3]。对于湖泊流域生态环境保护,识别沉积物中重金属的污染源,并定量确定其相对贡献率变得更加重要。现阶段源解析方法应用最为广泛的是以污染区域为研究对象的受体模型法^[4],模型通过受体和污染源样品的化学组分分析来确定污染源对受体的贡献值,常用的受体模型包括化学质量平衡法(CMB)、主成分分析/因子分析(PCA/FA)、PMF(正定矩阵因子分解法)等^[4-7]。

其中,PCA是开展污染源解析研究应用较早且最广泛的方法,它优于CMB的主要原因是不需要通常很难获得的源配置文件,运行较简便,且CMB的应用大多针对于大气污染物^[8];部分学者虽将PCA应用于重金属贡献率研究中,比如林承奇等^[9]将PCA应用于九龙江近岸表层沉积物重金属源解析中,得出3个污染源:农业生产活动和采矿活动的复合源、化石燃料燃烧源和岩石风化来源,贡献率分别为27.3%、31.8%和13.4%,但源解析结果总是不可避免地得到负值导致物理意义上的损失。PMF是美国环境保护局推荐的一种定量源解析模型,它的优点是不需要详细的源成分谱信息,可较好处理缺失及不精确的数据,对因子分解矩阵进行非负约束,使得到的源成分谱和源贡献率不会出现负值,结果更加合理^[10-13],已被广泛应用至大气、水体和沉积物等的污染物的源解析^[14-16],在沉积物重金属方面国内研究甚少;但它要求受体样本数据量大,且事先要设定因子数,多次运行程序,会对结果产生一定的误差,因此,确定因子数至关重要^[17-18]。董騞睿等^[4]通过PMF法探究南京城郊农田土壤重金属的主要来源,得出4个污染源:农业源、降尘源、工业源和自然源,贡献率分别为30.8%、33.0%、25.4%和10.8%,并验证了该方法的可行性。而冯小琼等^[5]在研究香港地区2005—2010年VOCs污染来源解析时建议采用两种或以上的模型对受体点数据进行污染来源解析,以确保结果的准确性。

鄱阳湖流域内矿产资源丰富,主要有饶河上游的德兴铜矿、信江流域的永平铜矿以及赣江上游的大余钨矿等,长期开采与冶炼产生的“三废”不仅对矿区生态环境产生了影响,而且污染物通过河流汇入鄱阳湖,鄱阳湖生态环境也因此易遭受破坏,其重金属污染问题一直是人们关注的焦点。以往关于鄱阳湖沉积物重金属元素的研究集中在鄱阳湖某一区域或“五河”入湖口几个采样点4种(Cu、Zn、Cd和Pb)或最多8种(Cr、Ni、Cu、Zn、Cd、Pb、Hg和As)重金属的时空分布和风险评价方面,如伍恒赞等^[19]对鄱阳湖沉积物7种重金属(Cd、Hg、As、Cu、Pb、Cr和Zn)含量进行空间分布特征分析并评价其潜在生态风险,且通过重金属之间的相关性分析得出,Hg、Cu、Pb、Zn 4种金属元素具有同源性,而Cr与这几种元素来源不同,但与Cd、As来源相似,Cu、Hg、Pb等重金属主要来自乐安河流域工业排放;杨期勇等^[20]对鄱阳湖北部湖区沉积物8种重金属(Cd、Zn、Cu、Cr、Ni、Pb、As和Hg)含量和空间分布特征进行分析并评价其潜在生态风险;而对鄱阳湖表层沉积物重金属污染来源及其相对贡献率尚不清楚。因此,本文通过采集鄱阳湖丰水期表层沉积物样品来减小不同季节采样的差异从而尽可能降低源解析结果的不确定性,基于重金属元素V、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Sr、Mo、Cd、Sb、W、Pb、Hg和As的含量数据,分析重金属的污染特征,采用PCA定性地推测潜在的污染源,PMF识别重金属的污染源并量化其相对贡献,以期对鄱阳湖沉积物重金属污染防治及水体生态环境保护等提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 研究区域

鄱阳湖(28°24′~29°46′N, 115°49′~116°46′E)是中国第一大淡水湖,位于江西省北部、长江中下游南岸,也是中国第二大湖。湖泊承纳江西省境内赣江、抚河、信江、饶河和修水五大水系来水,经调蓄后,通过北部的狭窄出口进入长江,为长江流域一个重要的季节性吞吐型的浅水湖泊;水域面积在夏季丰水期达到3700 km²以上,而在秋冬季枯水期缩减至1000 km²以下。鄱阳湖平原地区是中国重要的商品粮基地,江西省是中国建国以来从未间断向国家贡献粮食的两个省份之一,也是中国矿产资源大省(中国主要有色、稀有金属、稀土矿产基地之一,占全国有色金属产业的1/10;江西省重金属国有控股企业中有色冶炼和有色金属矿采选业占总数的63%^[21])。乐安河(饶河南支)中下游的德兴铜矿是亚洲最大的露天铜矿,乐安河流域内德兴市还有其他矿产资源,如朱砂红/富家坞铜钨矿、银山铅锌矿和花桥金矿矿区等,另建有银山铅锌矿、金矿冶炼厂等有色金属加工企业和建材化工等行业;赣江上游流经赣南有色金属采矿区、大余钨矿等矿产资源丰富的地区,中游流经吉泰盆地水稻种植区,下游流经南昌市等城市^[22];信江中游有永平铜矿和贵溪冶炼厂,下游流经余干县后注入鄱阳湖;抚河上游有铀矿,下游流经南昌县等。鄱阳湖流域主要的铜矿、铅锌矿、钨矿等分布详见图1。

1.2 样品采集与分析

于2018年5—7月从鄱阳湖区使用抓斗式采样器采集了88个表层沉积物样品(0~10 cm)(图1),将采集的沉积物样品装入干净的可密封聚乙烯袋中,注明采样地点和样品编号等,于0~4℃下保存,并运回实验室进行预处理。冷冻后的沉积物样品置于干燥、通风、阴凉处自然风干,剔除样品中的残根、贝壳等杂物,用木棒研压,于玛瑙研钵中研磨后过100目(孔径0.149 mm)尼龙筛,筛下样装入干净的可密封聚乙烯袋中,−4℃保存于冰箱备用。

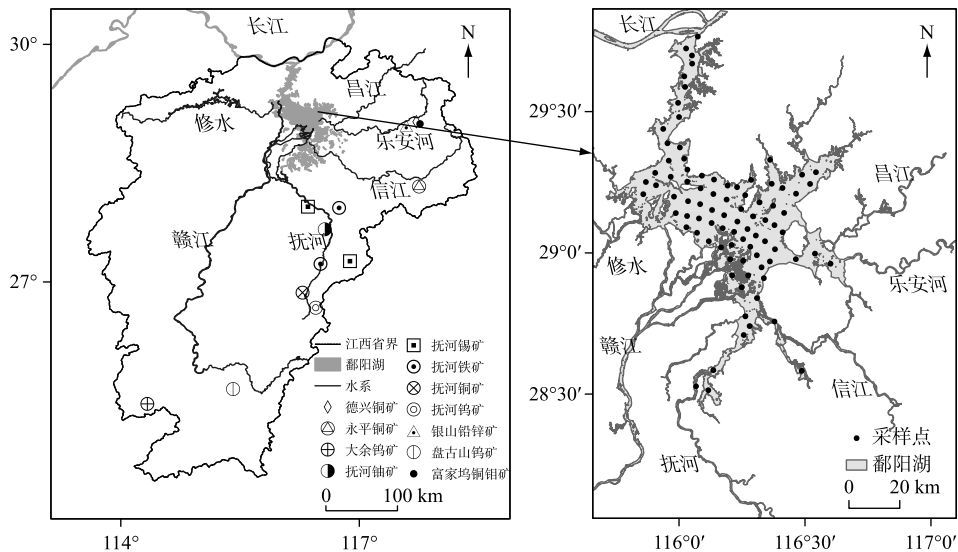


图1 鄱阳湖表层沉积物采样点分布

Fig.1 Distribution of sampling sites for the surface sediments in Lake Poyang

沉积物样品使用硝酸—氢氟酸—高氯酸($\text{HNO}_3\text{--HF--HClO}_4$)的方法消解^[23],所有样品均在核工业北京地质研究院分析测试中心分析,采用德国 Finnigan MAT 公司生产的 ELEMENT XR 型高分辨电感耦合等离子体质谱仪(HR-ICP-MS)测定试液中V、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Sr、Mo、Cd、Sb、W、Zr和Pb含量。在通过原子荧光法(AFS)测定沉积物中的Hg含量之前,首先用王水($\text{HNO}_3:\text{HCl}=1:3$)水浴消解^[24];沉积物中的As采用《土

壤质量 总汞、总砷、总铅的测定 原子荧光法 第2部分:土壤中总砷的测定》(GB/T 22105.2—2008)。为保证分析结果的准确性,分析过程中平均每10个样品随机抽取1个样品作1个平行样(重复做3次实验),同时做空白实验并以水系沉积物成分分析标准物质(GBW07309)进行质量控制。各重金属元素测定结果的相对标准偏差均小于5%,符合国家规定的精密度要求。所有样品的15种重金属含量均有检出。

1.3 重金属污染评价与源解析方法

1.3.1 富集系数法 重金属易富集于细粒沉积物中,受到“粒度效应”的影响,而富集系数法可以有效校正沉积物粒度和矿物组成变化对重金属含量的影响。一般用于重金属标准化的元素有:Al、Fe、Mn、Sc、Ti 和 Zr 等,本文选取惰性元素 Zr 作为参比元素,采用富集系数法区分重金属的自然与人为污染并评判其污染程度。富集系数 EF 的计算公式为:

$$EF = (M/X)_{\text{样品}} / (M/X)_{\text{背景}} \quad (1)$$

式中, $(M/X)_{\text{样品}}$ 是目标沉积物中重金属元素与参比元素含量的比值, $(M/X)_{\text{背景}}$ 是背景样品中重金属元素与参比元素含量的比值。理论上, $EF > 1$, 即存在人为污染。根据 Sutherland^[25] 的划分标准: $EF < 2$, 为无污染到弱污染; $2 \leq EF < 5$, 为中等污染; $5 \leq EF < 20$, 为重污染; $EF \geq 20$, 为极重污染。

1.3.2 主成分分析法和正定矩阵因子分解法 源解析采用主成分分析法(PCA)和正定矩阵因子分解法(PMF), PCA 采用数学降维或特征提取方法,将原来众多的且具有一定相关性的原始变量进行线性变换,提取出数目较少且彼此间互不相关的重要变量,使用较少的有代表性的因子来解释众多变量的主要信息,并推测有关污染源的信息^[26]。PMF 是由 Paatero 等^[27]提出的一种改进的用于源分配的因子分析受体模型。PMF 将矩阵 X (浓度矩阵) 分解为因子矩阵 G (或源贡献矩阵)、矩阵 F (源组合物矩阵) 和残差矩阵 E , 它的基本原理基于以下等式: $X = GF + E$ 。其中矩阵 F 定义为与 m 个化学同源物有关的 p 源的化学组成矩阵, G 矩阵描述了 p 源(因子)对 n 个取样点的贡献^[28]。根据 USEPA PMF 5.0 用户指南,公式如下所示:

$$X_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{ik} \cdot f_{kj} + e_{ij} \quad (2)$$

式中, X_{ij} 是 i 个样本中第 j 个重金属元素的测量矩阵; g_{ik} 是 i 个样本的第 k 个源因子的贡献矩阵; f_{kj} 是第 k 个源因子的第 j 个重金属元素的源曲线; e_{ij} 是指 i 个样本中第 j 个金属元素的残值。此外, PMF 考虑了测量变量的不确定性。如果重金属浓度不超过物种特异性方法检测限(MDL)值,那么不确定度的值等于 $5/6 \text{ MDL}$; 否则计算结果为 $u_{ij} = \sqrt{(\text{误差分数} \times c)^2 + \text{MDL}^2}$, c 是化学物质的浓度,误差分数是测量不确定度的百分比^[29]。

1.4 数据处理

用 Excel 2010 和 Origin 2018 软件对重金属含量数据进行分析处理以及作图,计算了诸如平均值、最小值、最大值、标准偏差和变异系数之类的描述性数据;使用 SPSS 17.0 对鄱阳湖表层沉积物中重金属含量进行 Pearson 相关性分析和主成分分析(PCA);根据记录的采样点坐标位置,结合每个对应点沉积物中重金属的含量,利用 ArcGIS 10.2 软件中的地统计分析功能,进行反距离加权插值分析,得到鄱阳湖丰水期表层沉积物样点分布图和地统计学空间插值图;沉积物重金属来源解析由 USEPA PMF 5.0 完成。

2 结果与讨论

2.1 表层沉积物重金属含量及空间分布特征

2.1.1 表层沉积物重金属含量的统计特征 从鄱阳湖丰水期 88 个表层沉积物样品重金属含量统计结果来看(表1), Mo、Sb 和 W 这 3 种重金属含量均呈偏态分布,经转换后基本符合正态分布,因此可用几何均值来表征。除 V 和 Cr 外, Cd、Mo、Hg、Cu、Pb、Zn、W、Sr、As、Ni、Co 和 Sb 的平均含量均超过了江西省土壤的背景值,分别为背景值的 5.7、2.2、1.9、1.8、1.5、1.5、1.4、1.3、1.3、1.2、1.0 和 1.0 倍;另外, Cd、Hg、Cu、Mo 元素含量的最小值分别是其背景值的 2.7、1.2、1.1、1.0 倍。V 和 Cr 的平均含量未超过江西省土壤背景值以及 Co 和 Sb 的平均含量与背景值相当的原因可能是与土壤和沉积物自身的性质有关,导致江西省土壤各元素中 V、Cr、Co 和 Sb 的背景值偏高。Cd、Hg、Cu、Mo、Pb、Sr 和 Zn 超出背景值的比例相对较高,分别为 100%、100%、100%、100%、97%、97% 和 93%。V、Cr、Co、Ni 和 Sb 的 EF 值均小于 1,而 Cu、Zn、Sr、Mo、W、Pb、Hg 和 As 的 EF 值在 1~2 之间, Cd 的 EF 值最大,为 4.93,说明 V、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Sr、Mo、Sb、W、Pb、Hg 和 As 为未污染至弱污

染水平,而 Cd 属于中等污染水平,接近于重污染水平. 采用《土壤环境质量 农用地土壤污染风险管控标准》(GB 15618—2018)对鄱阳湖沉积物重金属污染进行评价,从平均值来看,Cr、Ni、Cu、Zn、Pb、Hg 和 As 的含量均低于我国农用地土壤污染风险筛选值,而 Cd 的含量高于风险筛选值,但低于风险管制值,表明可能存在沉积物污染风险;所有采样点中 Cd 含量超过农用地土壤污染风险筛选值的百分比为 51%. 总体而言,Cd 的污染相对较严重.

表 1 鄱阳湖丰水湖表层沉积物中重金属含量的描述性统计*

Tab.1 Descriptive statistics of heavy metal contents in surface sediments of Lake Poyang during wet season

重金属	范围/ (mg/kg)	算术平均值± 标准差/ (mg/kg)	几何均值/ (mg/kg)	变异 系数/%	背景值 ¹⁾ (参照)	超标 率/%	EF	风险筛 选值 ²⁾	风险管 制值 ³⁾	鄱阳湖先 前研究 ^[30]
V	59.3~104.0	79.3±9.4	78.8	12	98.5	2	0.69	—	—	—
Cr	20.0~77.8	43.3±9.9	42.1	23	45.8	38	0.79	300	1000	70.77
Co	11.2~21.3	15.1±2.5	15.0	17	14.6	52	0.88	—	—	—
Ni	18.1~38.3	25.3±4.7	24.9	19	21.5	76	0.99	100	—	—
Cu	24.1~66.3	40.6±10.9	39.2	27	22.2	100	1.52	100	—	27.711
Zn	64.8~203.0	122.8±29.6	119.3	24	81.1	93	1.26	250	—	65.778
Sr	32.2~60.6	47.2±6.5	46.7	14	35.0 ⁴⁾	97	1.15	—	—	—
Mo	0.506~2.610	1.230±0.57	1.117	46	0.500 ⁴⁾	100	1.92	—	—	—
Cd	0.293~1.380	0.654±0.22	0.620	34	0.108	100	4.93	0.6	3.0	0.56
Sb	0.803~3.200	1.221±0.46	1.164	38	1.150 ⁴⁾	28	0.87	—	—	—
W	3.58~21.10	7.86±3.53	7.20	45	5.28 ⁴⁾	74	1.17	—	—	—
Pb	25.1~72.0	46.9±8.3	46.1	18	30.4	97	1.30	140	700	48.67
Hg	0.065~0.154	0.102±0.02	0.099	20	0.053	100	1.60	0.6	4.0	0.08
As	6.3~32.8	18.8±5.7	18.0	30	14.3	76	1.08	25	120	10.67
Zr	194~357	276±44	273	16	237 ⁴⁾	75	—	—	—	—

* 1) 江西省 C 层土壤的各元素背景值的算术平均值(《中国土壤元素背景值》,中国环境监测总站,1990). 2) 《土壤环境质量 农用地土壤污染风险管控标准》(GB 15618—2018,农用地土壤污染风险筛选值,水田,pH 6.5~7.5). 3) 《土壤环境质量 农用地土壤污染风险管控标准》(GB 15618—2018,农用地土壤污染风险管制值,pH 6.5~7.5). 4) 江西省 A 层土壤的各元素背景值的算术平均值.

与先前(2011 年)对鄱阳湖表层沉积物重金属的研究^[30]相比,本研究 Cr 和 Pb 的含量较低,Cu、Zn、Cd、Hg 和 As 的含量有所升高,说明鄱阳湖表层沉积物中 Cu、Zn、Cd、Hg 和 As 的污染状况有所加重. 将鄱阳湖丰水期表层沉积物重金属含量与第二、三大淡水湖(洞庭湖^[30]、太湖^[31-32])公布的数据进行比较,显然,本研究鄱阳湖表层沉积物中 Cr、Cu、Zn、Cd、Pb、Hg 和 As 的含量均低于洞庭湖(88.29、47.48、185.25、4.65、60.99、0.157 和 29.71 mg/kg);Cu、Cd 和 Pb 的含量低于太湖(39.22、2.88 和 74.48 mg/kg),而 Cr、Zn 和 As 的含量高于太湖(41.5、111.06 和 5.94 mg/kg). 这些比较的结果表明,洞庭湖表层沉积物中 Cr、Cu、Zn、Cd、Hg 和 As 均高于其他鄱阳湖和太湖,这可能与湖泊的地质背景差异有关.

2.1.2 表层沉积物重金属的空间分布特征 变异系数(CV)从侧面反映了沉积物中重金属元素的区域空间变异性,V、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Sr、Pb 和 Hg 的变异系数较小(<27%),属于弱变异,空间变异性相对较小;Mo、W、Sb、Cd 和 As 的变异系数较大(>30%),表现为中等变异,其中,Mo 含量表现出最大的空间变异性(CV=46%). Cu、Zn、Sr、Pb、Hg 和 As 的平均含量均超过背景值,但空间变异性相对较小,说明研究区域 Cu、Zn、Sr、Pb、Hg 和 As 的污染分布较均匀. 从图 2 可以清楚地看出重金属的空间分布特征十分明显,Cr、Cu、Zn、Sr、Pb、Hg 和 As 的空间分布十分相似,主要特征表现为鄱阳湖区南部、西南部和东南部重金属含量高,低值区则位于湖区西北部,尤其是 Zn 和 Hg 空间分布呈现从南湖区到北湖区依次递减的规律. Cr、Cu、Pb 和 Hg 含量的峰值均出现在饶河入湖口,Zn 含量的最高值在赣江入湖口,而 As、Sr 含量的最高值分别出现在抚河、信江尾闾,研究表明,“五河”输入是入湖污染负荷的主要来源,其占污染负荷总量的 80%左右.“五河”的沉积物是铜运输的主要工具,在“五河”流域的工业活动的影响下,特别是乐安河(饶河南支)中、下游的德兴铜

矿和信江中游的永平铜矿矿山开采产生的含重金属的废水、废石堆的风化和矿石浮选厂的排放,它们占沉积物总负荷的 22.1%,占鄱阳湖铜输入的 35.6%以上^[33]. 重金属含量的高值出现在饶河、赣江、信江和抚河入湖口也可能与信江流经的贵溪市有大型的有色金属冶炼厂、抚河上游的铀矿、赣南有色金属采矿区、赣江南支贯穿南昌市后携带大量工业废水以及水土流失严重造成土壤中的重金属流失有关,而修水流域林地覆盖面积大,农业面源污染及工业生产企业较少,外源污染输入污染较少^[34-35],表明高含量的重金属与河流入湖污染物有关,源于“五河”来水的污染是鄱阳湖沉积物中重金属含量水平及其区域性分布差异的主要原因.

图 2 也揭示了 Co、Ni、Mo 和 Sb 含量高度相似的空间变化趋势,高值区基本上均位于鄱阳湖区南部、东北部和修水入湖附近的区域,低值区则位于湖区中部和北部. Co 和 Ni 的平均含量与背景值接近,变异系数也小,空间分布较均匀,说明研究区域基本没有受到 Co 和 Ni 的人为污染. Mo 的平均含量超出背景值较多,且空间变异性也最大,说明其含量集中分布,可能人为输入污染对其含量有较大影响. Sb 的平均含量与江西

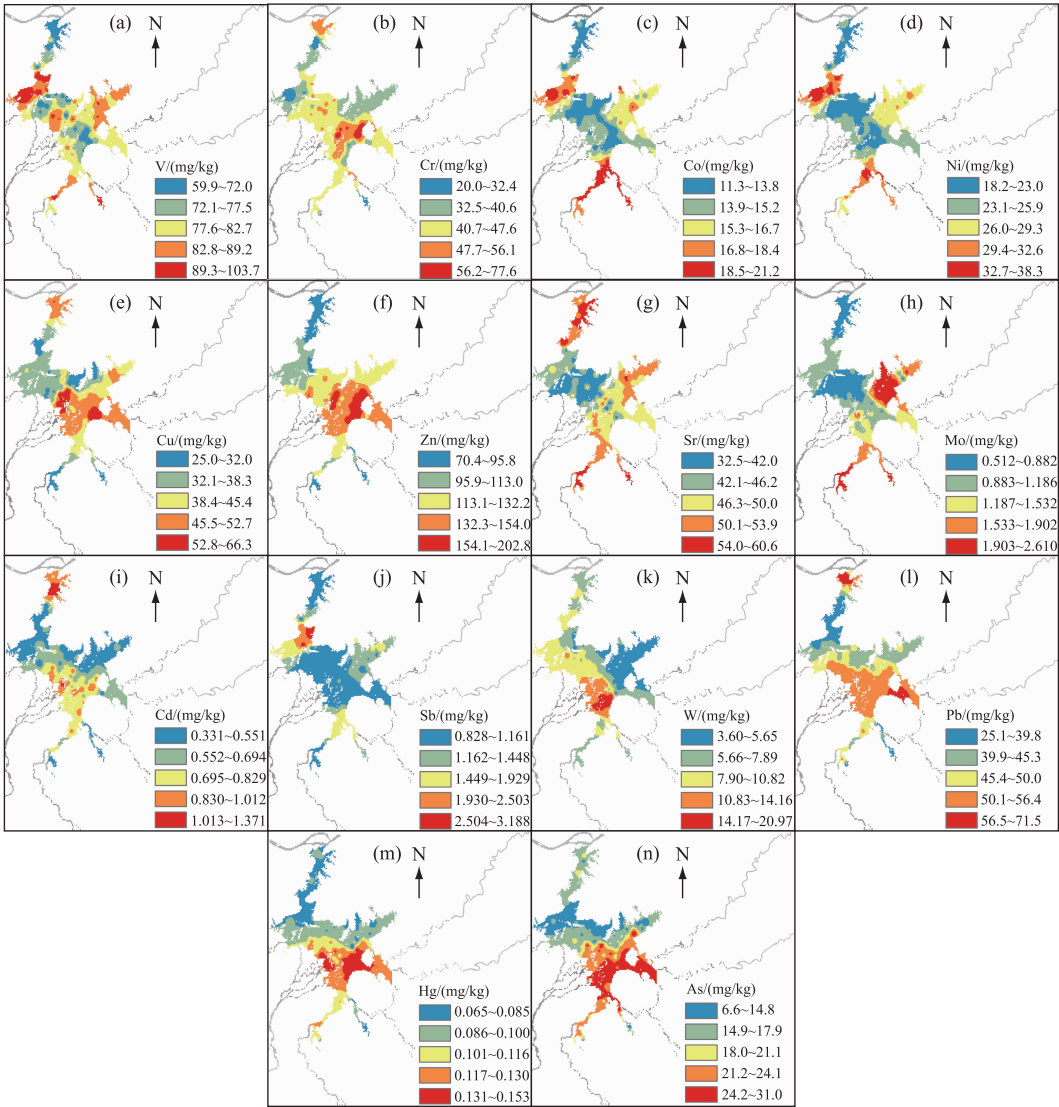


图 2 鄱阳湖丰水期表层沉积物重金属含量的空间分布

Fig.2 Spatial distribution of the contents of heavy metal in surface sediments of Lake Poyang during wet season

省土壤背景值相当,但其变异系数较大,是因为 Sb 在修水入湖区域的含量(3.200 mg/kg)明显高于其他采样点,而修水流域内的矿产资源相对于饶河、信江、抚河及赣江较少,所以重金属污染相对于 4 条河流较轻^[34],而调查采样时发现可能与此区域的老爷庙水域处的地势特殊,水动力比较复杂,水体是多种水体混合而成有关^[36]. V 的空间差异不明显,平均含量也低于背景值,分布相对较均匀,其高值区域也分布在修水入湖附近的区域. Cd 和 W 的空间变异性相对较大,主要原因是 Cd 含量在北部的入长江口附近(1.380 mg/kg)远高于其他地点,很明显,湖区北部 Cd 含量较高,且整个湖区黄色及以上区域超过农用地土壤污染风险筛选值(其中红色代表高含量,而蓝色代表低含量);而 W 在赣江南支入湖口附近的含量(21.10 mg/kg)高于其他采样点,可能是由于钨矿如大余钨矿的开采冶炼在赣江上游^[22],正在重点推进钨资源精深加工产业集群建设的南昌国家高新技术产业开发区也坐落于赣江南支边上导致的.

表 2 沉积物重金属元素主成分旋转载荷¹⁾
Tab.2 Rotating loadings of sediment heavy metal element on principal components

重金属	PC1	PC2	PC3	PC4
V	-0.11	0.80	-0.13	0.10
Cr	0.57	-0.12	-0.27	-0.20
Co	-0.18	0.84	0.29	-0.01
Ni	-0.15	0.90	0.17	-0.14
Cu	0.70	-0.09	0.03	-0.07
Zn	0.76	0.01	-0.14	0.01
Sr	-0.12	0.05	0.85	-0.04
Mo	0.05	0.65	0.53	-0.23
Cd	0.63	-0.22	-0.09	0.34
Sb	-0.14	0.80	-0.14	-0.11
W	0.14	-0.10	-0.07	0.92
Pb	0.83	-0.19	-0.11	0.08
Hg	0.79	-0.08	0.13	0.31
As	0.68	-0.11	0.38	0.28
特征值	3.70	3.33	1.43	1.29
方差贡献率/%	26	24	10	9
累积方差贡献率/%	26	50	60	69

* 1) 提取方法为主成分分析法;旋转法为具有 Kaiser 标准化的正交旋转法. 2) 加粗的数字为每个主成分中载荷较高值.

山铅锌矿区. 德兴铜矿区是亚洲最大的露天矿铜矿山,铜储量占中国铜储量的 17.5%;德兴地区乐安河中下游还分布着朱砂红/富家坞铜钼矿和银山铅锌矿及其冶炼厂,经调查和统计资料显示^[19],德兴矿区已探明铅锌矿有数百万吨. 在铜矿、铅锌矿开采和冶炼过程中,某些硫化物(如闪锌矿、方铅矿、黄铜矿等)会被氧化释放出 Pb、Hg、Zn、Cu、As 和 Cd 进入环境^[38]. 据不完全统计,每天从德兴铜矿排出超过 4×10^4 t 矿山酸性废水^[39],废水中含有大量的 Cu、Zn、As、Pb 和 Cd,含量分别为 102.1、2.38、0.402、0.424 和 0.130 mg/L,大大超过《地表水环境质量标准》(GB 3838—2002) V 类水中 Cu、Zn、As、Pb 和 Cd 的标准限值(分别为 1.0、2.0、0.1、0.1 和 0.01 mg/L),废水流经鄱阳湖的主要支流—乐安河,最终都将排入鄱阳湖,表明鄱阳湖丰水期沉积物中 Pb、Hg、Zn、Cu、As、Cd 和 Cr 主要来源为铅锌矿、铜矿开采,选矿及其冶炼等生产活动中产生的废水、废渣等. 因此,第一主成分代表了矿业和工业活动等人为来源.

PC2 解释了 24% 的总方差, Ni、Co、Sb 和 V 在该成分的载荷较高(>0.7),与它们相比, Mo 占有较低的载荷,且 Ni 与 Co、Sb 之间存在极显著的强相关关系($P < 0.01$, $r > 0.7$), Mo 与 Ni、Co 之间存在极显著的相关关系

2.2 表层沉积物重金属的来源解析

2.2.1 表层沉积物重金属的主成分分析 在进行 PCA 之前,应用 Kaiser-Meyer-Olkin (KMO) 和 Bartlett 球形度检验来确定数据对 PCA 的适用性,一般认为 KMO>0.7 时适合因子分析. 根据检验结果, KMO 值为 0.795, Bartlett 球形度检验统计量的观测值为 614.005,自由度为 91,检验的显著性概率为 0.000,小于显著性水平 0.05,表明各重金属元素之间相关性较强,适合做因子分析. 为了更好地解释主成分,使用 varimax 归一算法对它们进行旋转,并选择旋转后的数据分析. 鄱阳湖丰水期表层沉积物重金属主成分分析结果见表 2,通过 varimax 旋转以后,根据特征值大于 1 的原则,筛选出 4 个因子,解释了 69% 的变量信息. 表 3 列出了鄱阳湖丰水期表层沉积物 14 种重金属元素的 Pearson 相关系数.

由表 2 可知, PC1 解释了 26% 的方差变异, Pb、Hg、Zn、Cu 和 As 具有较高的正载荷, Cd 和 Cr 具有较低载荷;且 Pb、Hg、Zn、Cu、As 和 Cd 两两之间存在极显著正相关($P < 0.01$), Hg 和 As 的相关系数最高,表明它们有相似的空间分布格局,均表现为高含量区域主要发生在湖区南部、西南部和东南部, Pb、Hg、Zn、Cu 和 As 的空间分布亦是如此. 陈翠华等^[37]在湖区东南部德兴地区采集水系沉积物样品分析中发现, Hg 和 As 含量高的地区主要集中在德兴铜钼和银

($P<0.01, r>0.5$),表明它们有相似的分布规律. 一般 Ni 源于金属冶炼废水的排放^[40],钢铁冶炼废水中含有大量的 Ni、Co^[41]和 V^[42]元素,矿产废渣中含有丰富的 Sb 元素^[22];其中,环境中的 V 也可能来源于成土母质^[43]. 但本研究中 Ni、Co 和 Sb 的平均含量与背景值接近,V 的平均值也未超过江西省土壤背景值,变异系数(12%)最小,总体上受人为活动较小,可认为主要受背景值控制,说明这些重金属主要来源于土壤母质造成的自然源,可认为第二主成分代表自然来源.

表 3 不同重金属之间的相关系数
Tab.3 Pearson's correlation coefficients between different heavy metals

	V	Cr	Co	Ni	Cu	Zn	Sr	Mo	Cd	Sb	W	Pb	Hg	As
V	1	-0.15	0.55 **	0.62 **	-0.19	-0.02	-0.02	0.31 **	-0.20	0.49 **	-0.10	-0.26 *	-0.15	-0.06
Cr		1	-0.17	-0.21 *	0.33 **	0.23 *	-0.14	-0.14	0.26 *	-0.07	0.09	0.36 **	0.35 **	0.34 **
Co			1	0.86 **	-0.21 *	-0.23 *	0.28 **	0.58 **	-0.30 **	0.55 **	-0.15	-0.35 **	-0.18	-0.04
Ni				1	-0.17	-0.24 *	0.21 *	0.53 **	-0.29 **	0.72 **	-0.22 *	-0.31 **	-0.25 *	-0.13
Cu					1	0.34 **	-0.08	-0.18	0.44 **	-0.16	0.16	0.55 **	0.47 **	0.48 **
Zn						1	-0.21	0.03	0.29 **	-0.22 *	0.18	0.50 **	0.63 **	0.48 **
Sr							1	0.38 **	0.02	-0.01	-0.09	-0.14	-0.07	0.08
Mo								1	-0.31 **	0.16	-0.25 *	-0.18	-0.01	0.09
Cd									1	-0.18	0.31 **	0.49 **	0.46 **	0.36 **
Sb										1	-0.15	-0.31 **	-0.31 **	-0.23 *
W											1	0.29 **	0.39 **	0.36 **
Pb												1	0.61 **	0.53 **
Hg													1	0.63 **
As														1

** 表示在 0.01 水平(双侧)上显著相关;* 表示在 0.05 水平(双侧)上显著相关.

PC3 相对贡献率为 10%,Sr 在该成分的载荷最高(0.85),其次为 Mo(0.53). Sr 与 Mo 之间存在极显著的相关关系($P<0.01$),有研究表明,Sr 来源于金属冶炼^[44],Mo 与朱砂红/富家坞铜钨矿尾矿有关,重金属矿冶采选后废弃污染场地、尾矿废渣堆存场地众多^[40],其所在的德兴铜矿矿区建有亚洲第一大尾矿坝,已造成 207 km²尾矿堆积区,因此,第三主成分代表了矿山开采所致的尾矿和废渣污染源.

PC4 占总体方差的 9%,W 在该成分的载荷最高(0.92),Cd 和 Hg 也有较低载荷,暗示了 Cd 和 Hg 来源的多源性,且 Cd 与 Hg 之间存在极显著的相关关系($P<0.01$). Dai 等^[45]认为 Cd 与鄱阳湖周围农田中肥料和农药的大量施用有关. Yang 等^[46]测定了肥料中的 Cd 和 Hg 含量分别为 0.009~2.58 和 0.005~0.69 mg/kg. 而江西省的传统农业大县—南昌县和余干县均在鄱阳湖周边,农业是农民收入的主要来源,由于将大量农药和肥料等农业化学品投入土壤以获得更高的产量,这些农业用品的广泛和重复使用而导致 Cd 和 Hg 残留于土壤中,通过降雨和地表径流将其带入河流和湖泊,表明 Cd 和 Hg 来源于农业活动. 江西省辖区内朱溪钨铜矿三氧化钨资源量为 2.86×10⁶ t,是世界上最大的钨铜矿^{〔21〕},此外,钨矿集中分布在赣江上游区,赣州市大余钨矿是我国最重要的钨矿山之一. 因此,可认为第四主成分主要受农业活动的影响.

2.2.2 基于 PMF 的重金属来源及相对贡献率 将 88 个表层沉积物样品的 14 种金属的含量数据和与这些含量相关的不确定度数据输入 EPA PMF 5.0 软件进行分析. 14 种重金属均被归类为“Strong”(S/N>1),总变量自动变为“Weak”. 设定不同因子数(3~7),采用 Robust 模式,将运行次数设置为 20 次,选择“随机起始种子数”选项,最终确定 4 个因子能合理解释污染源的类别. 所有沉积物样本的绝大部分残差在-3~3 之间. 总变量预测值与观测值之间相关性良好($r^2=0.931$),表明表层沉积物重金属被 PMF 很好地分配. PMF 解析出的表层沉积物重金属的 4 因子(来源)成分谱图如图 3 所示,4 个因子的相对贡献率分别为 38%、19%、28%、14%.

因子 1 具有高负荷的 As(60%)、Sr(57%)、Cd(46%)、Hg(45%)、Cu(44%)、Pb(40%)、W(40%)和 Zn(38%),因子载荷与 PC1 相似,如上所述,金属矿石的采矿和冶炼的工业活动被认为是较重要的金属污染源

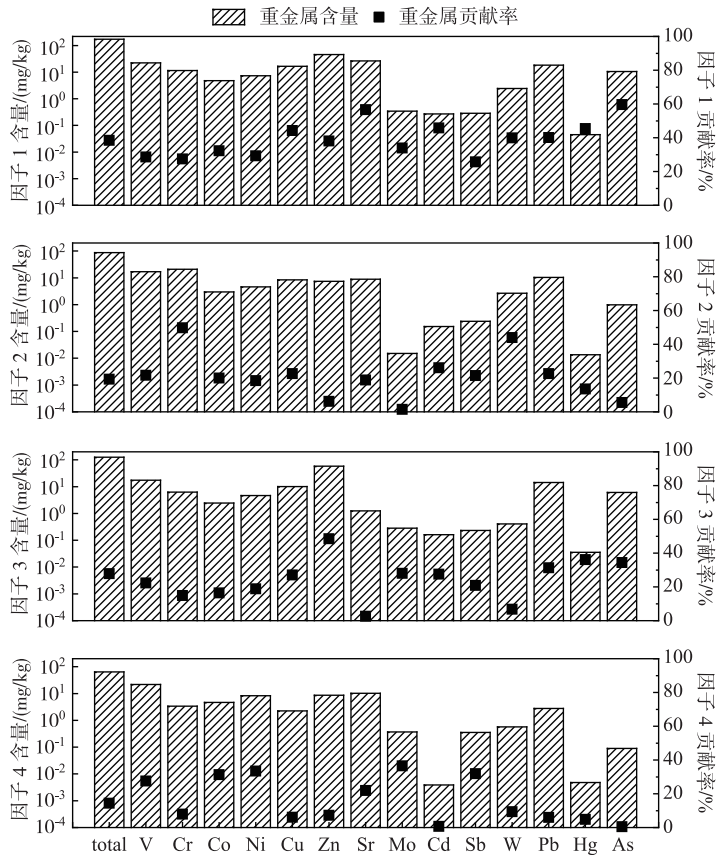


图3 沉积物重金属的源成分谱图

Fig.3 Source profiles of heavy metals in sediments

之一,乐安河沿河流域的德兴铜矿、银山铅锌矿及其冶炼厂等,特别是上游和中游段,Cu、Zn、Pb年排放量就分别达141、69.9、0.5 t^[47];伍恒赞等^[19]根据江西省环境监测中心站重点行业企业污染源调查可知,2006—2012年乐安河流域企业每年排放重金属工业废水均超过300万t,含6种主要重金属(As、Cd、Hg、Cu、Pb、Zn),这些重金属工业废水排入乐安河后流入鄱阳湖,最终使鄱阳湖沉积物成为乐安河重金属的汇,因此,因子1是矿业和工业活动等人为来源。

因子2主要是Cr(50%)和W(44%)。有报道称化肥中Cr含量比较高,一般氮肥、磷肥及过磷酸钙中Cr含量分别为5~3000、30~3000和50~250 mg/kg;据统计,世界上通过肥料输入到土壤中的Cr为0.03~0.38 t/a^[48],过量施用磷肥会造成Cd和Cr的积累。鄱阳湖地区丰水期正值水稻播种插秧季节,且赣江、饶河流域上游流域为江西省粮食主产区,氮肥和化肥使用量高^[34],而鄱阳湖流域特殊的地貌极易造成水土的流失。据统计^[49],鄱阳湖流域平均土壤侵蚀总量达 1.66×10^8 t,相当于流失土壤 5×10^4 hm²,土壤中肥料极易随地表径流进入鄱阳湖,导致面源污染负荷增加,从而使Cr在赣江、抚河、信江和饶河入湖口聚集。W与PC4中的W同来源于钨矿,因此,因子2与PC4结果一致,均受农业活动的影响。

因子3由Zn(48%)大量加权,Hg(36%)、As(34%)和Pb(31%)略微加权。Zn与铅锌矿尾矿有关,且矿产废渣中含有丰富的As元素^[50],经调查和统计资料显示^[19],德兴银山矿区已探明铅锌矿矿产储量分别高达43万t Pb和52万t Zn^[51],乐安河下游还分布银山铅锌冶炼厂,因此,因子3为矿山开采所致的尾矿和废渣污染源。因子4主要负载在Mo(37%)、Ni(33%)、Sb(32%)、Co(31%)和V(28%),得到的因子载荷与PCA结果中的PC2一致,代表了自然来源。

2.3 结合 PCA 和 PMF 的重金属来源及相对贡献率

PCA 和 PMF 2 种源解析方法的来源分配和相对贡献率见表 4,源解析结果中污染来源一致,相互印证.两种方法均解析出贡献率相当高的矿业和工业活动来源,贡献率分别为 26% 和 38%;尾矿和废渣、农业活动、自然来源是 2 种方法解析出的其他 3 个源,PCA 和 PMF 解析得到的相对贡献率分别为 10%、9%、24% 和 28%、19%、14%. 两种方法对重金属污染物来源贡献率的预测略有差别,这主要是由于在方法应用过程中所选择的不确定性参数和选为变量的污染物之间存在差异所致^[52]. 通过计算 PMF 预测的和实验的重金属含量之间的回归进行内部比较,可用于确定模型是否适用^[53-54],结果表明,重金属含量总变量预测值与观测值之间相关性良好($R^2=0.931$),说明沉积物重金属被 PMF 很好地分配,PMF 可以很好地应用于沉积物重金属污染的源解析研究并分配污染源对每种重金属的贡献. 先前的研究^[23,55]中,使用 PMF 也发现了污染物的预测浓度和实验浓度之间这种良好的相关性. 与其他学者采用主成分分析法研究鄱阳湖重金属污染源的源解析结果^[45]相比,主成分分析法源解析结果中源识别数量的减少和其他信息的丢失可能是由于没有考虑数据的不确定性或没有非负性约束,由表 2 和图 3 可知,主成分载荷值为负值,且 PCA 解析结果虽与源贡献相关,但是并不呈比例,使得累积贡献率少于 100%;而 PMF 源成分谱图中的值均为正值,所以 PMF 方法可以同时将测量不确定性和非负性约束纳入其计算过程,依赖于更具物理意义的假设,可以提供更好的结果.

本研究综合 PCA 和 PMF 的源解析结果得出,鄱阳湖丰水期沉积物重金属有 4 个主要来源,分别为矿业和工业活动、尾矿和废渣、农业活动、自然来源,源相对贡献率分别为 38%、28%、19%、14%. 流域内的矿业和工业活动对鄱阳湖表层沉积物重金属累积的贡献比较明显,表明重金属污染主要受矿业和工业活动等外界人类活动的影响. 矿业和工业活动产生的重金属经南湖区 4 条主要支流—赣江、抚河、信江和饶河携带后释放到径流水体并迁移汇入鄱阳湖,最终悬浮物中的重金属也都转入沉积物;且 Cr、Cu、Zn、Sr、Pb、Hg 和 As 7 种重金属元素在这 4 条主要支流入湖口处都显示出高度相似的趋势,即高含量聚集在河流入湖口附近,这可能是因为丰水期湖泊水量较大,水位较高,4 河来水进入湖泊后,水体流速骤降^[45],因此携带的重金属易于沉积,导致各重金属含量高且分布集中. 为防止沉积物重金属含量继续增加而造成更大的生态风险,鉴于鄱阳湖 5 大河流矿区工业废水不达标排放,应加强对企业排污的监控和治理力度以及地表径流(“五河”)的重金属入湖通量控制,有针对性地进行环境污染控制.

表 4 PCA 和 PMF 的来源和相对贡献率
Tab.4 Source apportionment and contribution rates of PCA and PMF models

	源 1	源 2	源 3	源 4	累积贡献率
PCA	矿业和工业活动 26%	自然来源 24%	尾矿和废渣 10%	农业活动 9%	— 69%
PMF	矿业和工业活动 38%	农业活动 19%	尾矿和废渣 28%	自然来源 14%	— 100%

3 结论

1)除 V 和 Cr 外,Co、Ni、Cu、Zn、Sr、Mo、Cd、Sb、W、Pb、Hg 和 As 的平均含量均超过了江西省土壤的背景值;Cd、Hg、Cu、Mo、Pb、Sr 和 Zn 超出背景值的比例相对较高,且所有采样点中 Cd 含量超过农用地土壤污染风险筛选值的百分比为 51%;V、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Sr、Mo、Sb、W、Pb、Hg 和 As 为未污染至弱污染水平,而 Cd 属于中等污染水平,接近于重污染水平. 总体而言,Cd 的污染相对较严重.

2)重金属的含量分布具有显著的区域特征,其中 Cr、Cu、Zn、Sr、Pb、Hg 和 As 的空间分布十分相似,表现为在赣江、抚河、信江和饶河入湖口附近区域含量较高,而 Co、Ni、Mo 和 Sb 明显在湖区南部、东北部和修水入湖附近聚集,Cd 和 W 的空间变异性相对较大,V 的含量分布相对较均匀.

3)PCA 和 PMF 解析结果都表明鄱阳湖丰水期表层沉积物重金属受矿业和工业活动、尾矿和废渣、农业活动、自然来源 4 种来源的共同影响,源相对贡献率分别为 38%、28%、19%、14%;PMF 的重金属含量总变量预测值与观测值之间相关性良好,说明 PMF 可以很好地应用于沉积物重金属污染的源解析研究. 两种方法

的源解析结果相互印证,具有很好的一致性.

4 参考文献

- [1] Sun WM, Xiao EZ, Dong YR *et al.* Profiling microbial community in a watershed heavily contaminated by an active antimony (Sb) mine in Southwest China. *Science of the Total Environment*, 2016, **550**: 297-308.
- [2] Lin Q, Liu EF, Zhang EL *et al.* Spatial distribution, contamination and ecological risk assessment of heavy metals in surface sediments of Erhai Lake, a large eutrophic plateau lake in southwest China. *Catena*, 2016, **145**: 193-203.
- [3] Qin YW, Zhang L, Zheng BH *et al.* Speciation and pollution characteristics of heavy metals in the sediment of Taihu Lake. *Environmental Science*, 2012, **33**(12): 4291-4299. [秦延文, 张雷, 郑丙辉等. 太湖表层沉积物重金属赋存形态分析及污染特征. 环境科学, 2012, **33**(12): 4291-4299.]
- [4] Dong LR, Hu WY, Huang B *et al.* Source apportionment of heavy metals in suburban farmland soils based on positive matrix factorization. *China Environmental Science*, 2015, **35**(7): 2103-2111. [董驷睿, 胡文友, 黄标等. 基于正定矩阵因子分析模型的城郊农田土壤重金属源解析. 中国环境科学, 2015, **35**(7): 2103-2111.]
- [5] Feng XQ, Peng K, Ling ZH *et al.* Source apportionments and characteristics of VOCs from 2005 to 2010 in Hong Kong. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2013, (1): 173-180. [冯小琼, 彭康, 凌镇浩等. 香港地区 2005—2010 年 VOCs 污染来源解析及特征研究. 环境科学学报, 2013, (1): 173-180.]
- [6] Mostert MMR, Ayoko GA, Kokot S. Application of chemometrics to analysis of soil pollutants. *Trends in Analytical Chemistry*, 2010, **29**(5): 430-445.
- [7] Venkatramanan S, Chung SY, Ramkumar T *et al.* Environmental monitoring and assessment of heavy metals in surface sediments at Coleroon River Estuary in Tamil Nadu, India. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2015, **187**(8): 505.
- [8] Zuo Q, Duan YH, Yang Y *et al.* Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in surface soil in Tianjin, China. *Environmental Pollution*, 2007, **147**(2): 303-310.
- [9] Lin CQ, Hu GR, Yu RL *et al.* Pollution assessment and source analysis of heavy metals in offshore surface sediments from Jiulong River. *China Environmental Science*, 2016, **36**(4): 1218-1225. [林承奇, 胡恭任, 于瑞莲等. 九龙江近岸表层沉积物重金属污染评价及来源解析. 中国环境科学, 2016, **36**(4): 1218-1225.]
- [10] Henry RC. History and fundamentals of multivariate air quality receptor models. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 1997, **37**(1): 37-42.
- [11] Henry RC. Multivariate receptor modeling by N-dimensional edge detection. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 2003, **65**(2): 179-189.
- [12] Rizzo MJ, Scheff PA. Assessing ozone networks using positive matrix factorization. *Environmental Progress*, 2004, **23**(2): 110-119.
- [13] Chueinta W, Hopke PK, Paatero P. Investigation of sources of atmospheric aerosol at urban and suburban residential areas in Thailand by positive matrix factorization. *Atmospheric Environment*, 2000, **34**(20): 3319-3329.
- [14] Tan JH, Duan JC, Chai FH *et al.* Source apportionment of size segregated fine/ultrafine particle by PMF in Beijing. *Atmospheric Research*, 2014, **139**: 90-100.
- [15] Vu CT, Lin C, Shern CC *et al.* Contamination, ecological risk and source apportionment of heavy metals in sediments and water of a contaminated river in Taiwan. *Ecological Indicators*, 2017, **82**: 32-42.
- [16] Comero S, Vaccaro S, Locoro G *et al.* Characterization of the Danube River sediments using the PMF multivariate approach. *Chemosphere*, 2014, **95**(1): 329-335.
- [17] Huang SL, Rahn KA, Arimoto R. Testing and optimizing two factor-analysis techniques on aerosol at Narragansett, Rhode Island. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**(14): 2169-2185.
- [18] Vaccaro S, Sobiecka E, Contini S *et al.* The application of positive matrix factorization in the analysis, characterisation and detection of contaminated soils. *Chemosphere*, 2007, **69**(7): 1055-1063.
- [19] Wu HY, Luo Y, Zhang QM *et al.* Spatial distribution and potential ecological risk assessment of heavy metals in sediments of Poyang Lake. *Environmental Monitoring in China*, 2014, **30**(6): 114-119. [伍恒赟, 罗勇, 张起明等. 鄱阳湖沉积物重金属空间分布及潜在生态风险评价. 中国环境监测, 2014, **30**(6): 114-119.]
- [20] Yang QY, Zeng M, Xie Q *et al.* The distribution of heavy metals and potential ecological risk in the Northern Poyang Lake.

- Ecology and Environmental Sciences*, 2018, **27**(3): 556-564. [杨期勇, 曾明, 谢琪等. 鄱阳湖北部湖区沉积物重金属分布及其潜在生态风险评价. 生态环境学报, 2018, **27**(3): 556-564.]
- [21] Huang CH, Xi BD, Yuan WC *et al.* Environmental protection system engineering and case studies of agricultural products producing areas in southern China—Taking Poyang Lake as an example. *Engineering Sciences*, 2018, **20**(5): 148-152. [黄彩红, 席北斗, 袁文超等. 南方农产品产地环境防治系统工程与案例——以鄱阳湖为例. 中国工程科学, 2018, **20**(5): 148-152.]
- [22] Li CQ, Wang P, Chen B *et al.* Spatial distribution and pollution source of dissolved metals in the Ganjiang River of Lake Poyang Basin. *J Lake Sci*, 2018, **30**(1): 139-149. DOI: 10.18307/2018.0114. [李传琼, 王鹏, 陈波等. 鄱阳湖流域赣江水系溶解态金属元素空间分布特征及污染来源. 湖泊科学, 2018, **30**(1): 139-149.]
- [23] Chen HY, Teng YG, Li J *et al.* Source apportionment of trace metals in river sediments: A comparison of three methods. *Environmental Pollution*, 2016, **211**: 28-37.
- [24] Chen T, Liu XM, Li X *et al.* Heavy metal sources identification and sampling uncertainty analysis in a field-scale vegetable soil of Hangzhou, China. *Environmental Pollution*, 2009, **157**(3): 1003-1010.
- [25] Sutherland RA. Bed sediment-associated trace metals in an urban stream, Oahu, Hawaii. *Environmental Geology*, 2000, **39**(6): 611-627.
- [26] Li XY, Liu LJ, Wang YG *et al.* Heavy metal contamination of urban soil in an old industrial city (Shenyang) in Northeast China. *Geoderma*, 2013, **192**: 50-58.
- [27] Paatero P, Tapper U. Positive matrix factorization: A non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values. *Environmetrics*, 1994, **5**(2): 111-126.
- [28] Lang YH, Li GL, Wang XM *et al.* Combination of Unmix and PMF receptor model to apportion the potential sources and contributions of PAHs in wetland soils from Jiaozhou Bay, China. *Marine Pollution Bulletin*, 2015, **90**(1/2): 129-134.
- [29] Tan JH, Duan JC, Ma YL *et al.* Long-term trends of chemical characteristics and sources of fine particle in Foshan City, Pearl River Delta: 2008–2014. *Science of the Total Environment*, 2016, **565**: 519-528.
- [30] Li F, Huang JH, Zeng GM *et al.* Spatial risk assessment and sources identification of heavy metals in surface sediments from the Dongting Lake, Middle China. *Journal of Geochemical Exploration*, 2013, **132**: 75-83.
- [31] Jiang X, Wang WW, Wang SH *et al.* Initial identification of heavy metals contamination in Taihu Lake, a eutrophic lake in China. *Journal of Environmental Sciences*, 2012, **24**: 1539-1548.
- [32] Bing HJ, Wu YH, Sun ZB *et al.* Historical trends of heavy metal contamination and their sources in lacustrine sediment from Xijiu Lake, Taihu Lake Catchment, China. *Journal of Environmental Sciences*, 2011, **23**: 1671-1678.
- [33] Wang H, Zhao YJ, Liang DF *et al.* 30+ year evolution of Cu in the surface sediment of Lake Poyang, China. *Chemosphere*, 2017, **168**: 1604-1612.
- [34] Li RF, Zhang Y. Analysis of spatial and temporal variation of water quality and its influencing factors in Poyang Lake. *Water Resource Protection*, 2011, **27**(6): 9-13. [李荣昉, 张颖. 鄱阳湖水水质时空变化及其影响因素分析. 水资源保护, 2011, **27**(6): 9-13.]
- [35] Gong XF, Chen CL, Zhou WB *et al.* Assessment on heavy metal pollution in the sediment of Poyang Lake. *Environmental Science*, 2006, (4): 732-736. [弓晓峰, 陈春丽, 周文斌等. 鄱阳湖底泥中重金属污染现状评价. 环境科学, 2006, (4): 732-736.]
- [36] Li YH, Ge G, Wang ML *et al.* Characteristics of primary productivity of Lake Poyang in wet and dry seasons and the correlations with environmental factors using the Vertically Generalized Production Model. *J Lake Sci*, 2016, **28**(3): 575-582. DOI: 10.18307/2016.0313. [李艳红, 葛刚, 王茂林等. 垂向归纳模型下鄱阳湖丰、枯水期初级生产力特征及与环境因子相关性分析. 湖泊科学, 2016, **28**(3): 575-582.]
- [37] Chen CH, Ni SJ, He BB *et al.* Pollution analysis of heavy metal in sediments for water of Dexing Mine, Jiangxi Province. *Resources and Environment in the Yangtze Basin*, 2008, **17**(5): 766-770. [陈翠华, 倪师军, 何彬彬等. 江西德兴矿集区水系沉积物重金属污染分析. 长江流域资源与环境, 2008, **17**(5): 766-770.]
- [38] Teng YG, Ni SJ, Wang JS *et al.* A geochemical survey of trace elements in agricultural and non-agricultural topsoil in Dexing area, China. *Journal of Geochemical Exploration*, 2010, **104**(3): 118-127.
- [39] Guo YG, Huang P, Zhang WG *et al.* Leaching of heavy metals from Dexing copper mine tailings pond. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*, 2013, **23**(10): 3068-3075.

- [40] Manno E, Varrica D, Dongarrà G. Metal distribution in road dust samples collected in an urban area close to a petrochemical plant at Gela, Sicily. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(30): 5929-5941.
- [41] Krishna AK, Satyanarayanan M, Govil PK. 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. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, **167**(1/2/3): 366-373.
- [42] Kalogeropoulos N, Scoullos M, Vassilaki-Grimani M *et al.* Vanadium in particles and sediments of the northern Saronikos Gulf, Greece. *Science of the Total Environment*, 1989, **79**(3): 241-252.
- [43] Salonen VP, Korkka-Niemi K. Influence of parent sediments on the concentration of heavy metals in urban and suburban soils in Turku, Finland. *Applied Geochemistry*, 2007, **22**(5): 906-918.
- [44] Tang ZW, Cheng JL, Yue Y *et al.* Accumulations and risks of heavy metals in the sediments from 8 typical lakes in Wuhan, China. *J Lake Sci*, 2009, **21**(1): 63-70. DOI: 10.18307/2009.0108. [唐阵武, 程家丽, 岳勇等. 武汉典型湖泊沉积物中重金属累积特征及其环境风险. 湖泊科学, 2009, **21**(1): 63-70.]
- [45] Dai LJ, Wang LQ, Li LF *et al.* Multivariate geostatistical analysis and source identification of heavy metals in the sediment of Poyang Lake in China. *Science of the Total Environment*, 2018, **621**: 1433-1444.
- [46] Yang ZF, Cheng HX, Xi XH *et al.* Regional ecological geochemical assessment: ideas and prospects: ideas and prospects. *Regional Geology of China*, 2005, **24**(8): 687-693. [杨忠芳, 成杭新, 奚小环等. 区域生态地球化学评价思路及建议. 地质通报, 2005, **24**(8): 687-693.]
- [47] Wan JB, Wang JY, Wu D. Current Assessment on heavy metal pollution in the sediment of Le'an River. *Environmental Science and Technology*, 2008, (11): 130-133. [王金保, 王建永, 吴丹. 乐安河沉积物重金属污染现状评价. 环境科学与技术, 2008, (11): 130-133.]
- [48] Ai JC, Wang N, Yang J. Source apportionment of soil heavy metals in Jiapigou goldmine based on the UNMIX model. *Environmental Science*, 2014, **35**(9): 3530-3536. [艾建超, 王宁, 杨净. 基于 UNMIX 模型的夹皮沟金矿区土壤重金属源解析. 环境科学, 2014, **35**(9): 3530-3536.]
- [49] Wang SL, Ni D, Jiao LX *et al.* Space-time variety of organic matter and nutrient in surface sediments from Poyang Lake. *Journal of Environmental Engineering Technology*, 2012, **2**(1): 23-28. [王圣瑞, 倪栋, 焦立新等. 鄱阳湖表层沉积物有机质和营养盐分布特征. 环境工程技术学报, 2012, **2**(1): 23-28.]
- [50] Wang F, Huang YZ, Wang XL *et al.* Ecological risk assessment of heavy metals in surrounding soils of tungsten ores: Comparison of different evaluation methods. *Environmental Chemistry*, 2015, **34**(2): 225-233. [王斐, 黄益宗, 王小玲等. 江西钨矿周边土壤重金属生态风险评价: 不同评价方法的比较. 环境化学, 2015, **34**(2): 225-233.]
- [51] Wang GG, Ni P, Wang RC *et al.* Geological, fluid inclusion and isotopic studies of the Yinshan Cu-Au-Pb-Zn-Ag deposit, South China: Implications for ore genesis and exploration. *Journal of Asian Earth Sciences*, 2013, **74**: 343-360.
- [52] Yang B, Zhou LL, Xue ND *et al.* Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in soils of Huanghuai Plain, China: Comparison of three receptor models. *Science of the Total Environment*, 2013, **443**: 31-39.
- [53] Song Y, Dai W, Shao M *et al.* Comparison of receptor models for source apportionment of volatile organic compounds in Beijing, China. *Environmental Pollution*, 2008, **156**(1): 174-183.
- [54] Stanimirova I, Tauler R, Walczak B. A comparison of positive matrix factorization and the weighted multivariate curve resolution method. application to environmental data. *Environmental Science and Technology*, 2011, **45**(23): 10102-10110.
- [55] Okuda T, Okamoto K, Tanaka S *et al.* Measurement and source identification of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the aerosol in Xi'an, China, by using automated column chromatography and applying positive matrix factorization (PMF). *Science of the Total Environment*, 2010, **408**(8): 1909-1914.