曲宝晓, 宋金明, 袁华茂. 基于模糊综合评价的粤港澳大湾区海洋沉积物中重金属污染演变历史——以大亚湾为例[J]. 海洋学报, 2020, 42(10): 59–69, doi:10.3969/j.issn.0253−4193.2020.10.006

Qu Baoxiao, Song Jinming, Yuan Huamao. Historical evolutions of metal contamination in the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area: A risk assessment based on the fuzzy comprehensive assessment in the Daya Bay[J]. Haiyang Xuebao, 2020, 42(10): 59–69, doi:10.3969/j.issn.0253−4193.2020.10.006

基于模糊综合评价的粤港澳大湾区海洋沉积物中重金属污染演变历史
——以大亚湾为例

曲宝晓[1,2,3,4]，宋金明[1,2,3,4*]，袁华茂[1,2,3,4]

(1. 中国科学院海洋研究所 海洋生态与环境科学重点实验室, 山东 青岛 266071; 2. 青岛海洋科学与技术试点国家实验室 海洋生态与环境科学功能实验室, 山东 青岛 266237; 3. 中国科学院大学, 北京 100049; 4. 中国科学院海洋大科学研究中心, 山东 青岛 266071)

摘要: 本研究测定了粤港澳大湾区典型海域——大亚湾沉积物中主要重金属元素的含量水平与污染状况。利用我国海洋沉积物质量标准和模糊综合评价法, 系统探讨了大亚湾海洋沉积物质量的历史演变过程, 为我国大湾区可持续发展提供了科学理论支持。结果表明, 大亚湾海域的重金属污染状况在过去近百年经历了 3 个主要变化阶段: (1)20 世纪 80 年代之前, 大部分重金属含量较低, 沉积物质量处于一类等级, 与重金属污染相关的生态风险较小, 对沉积物生态风险贡献最高的元素为 Cr, 最低的为 Cd; (2)1980−2000 年间, 大亚湾沉积物中的重金属含量明显高于背景值, 表明该阶段出现了较为严重的重金属污染, 使近岸海域的沉积物质量等级处于二类与三类, 但大亚湾外部海域沉积物受污染影响较小, 仍处于一类等级, 在此期间, Cu 取代 Cr 成为最主要的污染元素; (3)2000 年以后, 沉积物重金属的污染水平显著降低, 生态风险迅速下降, 沉积物质量等级恢复到了一类水平, Cr 是这一阶段最主要的污染元素。

关键词: 粤港澳大湾区; 大亚湾; 沉积物; 重金属; 污染; 模糊综合评价

中图分类号: P76; X55　　**文献标志码:** A　　**文章编号:** 0253−4193(2020)10−0059−11

1　引言

湾区通常是指以海湾为主要依托, 由发达的都市群与港口群以及相互连接的高效交通系统等空间要素构成的城市密集区。由于湾区一般具有优良的自然生态环境和优越的经济地理区位, 因此该区域人口稠密, 经济发达[1]。目前全球有纽约、旧金山和东京三大著名湾区。我国的粤港澳大湾区于 2015 年首次被明确提出, 其主要包括广州、深圳、珠海、佛山、中山、东莞、肇庆、江门、惠州 9 个城市, 以及香港和澳门两个特别行政区, 陆域面积达 5.6×10^4 km^2, 人口 6 600 多万。粤港澳大湾区是我国经济最发达、工业化与城市化程度最高的区域之一, 担当了我国建设世界级城市群和参与全球竞争的重要使命[2]。目前对粤

收稿日期: 2019−07−05; **修订日期:** 2019−09−17。

基金项目: 国家重点基础研究发展计划(2015CB452901, 2015CB452902); 山东省重大科技创新工程专项课题(2018SDKJ0504-1); 中国科学院战略性先导科技专项(XDA23050501)。

作者简介: 曲宝晓(1987—), 男, 山东省青岛市人, 博士, 从事海洋生物地球化学研究。E-mail: qubx@qdio.ac.cn

*** 通信作者:** 宋金明(1964—), 男, 研究员, 从事海洋生物地球化学研究。E-mail: jmsong@qdio.ac.cn

港澳大湾区的研究多围绕其整体功能定位、内部区域整合和发展策略探索等方面。然而随着城市化进程和产业转移步伐的不断加快，粤港澳大湾区工农业高度集约发展，环境污染问题日益凸显，严重威胁区域生态环境安全和人居环境健康，成为影响粤港澳大湾区可持续发展的突出矛盾。

大湾区具有独特的地理位置。来自湾区陆域和海域的污染物通常会在海湾沉积物中大量地沉积埋藏。因此，海湾沉积物不仅是生态环境污染的产物，也是记录湾区经济社会发展的一个重要信息载体[3−4]。通过系统研究海湾沉积物中污染物的组成、含量、形态等特性，一方面可直接获得环境污染状况演变规律，另一方面还能够掌握整个湾区经济社会发展的历史脉络，明确人为活动对大湾区生态环境的深远影响[5−6]。然而，沉积物的“污染程度”并非是一个确凿且清晰的概念，沉积物环境质量评价中的分类标准与不同标准之间的界限往往存在模糊不清的特性，如何消除由此带来的不确定性至关重要[7]。模糊综合评价（Fuzzy Comprehensive Assessment, FCA）是一种基于模糊数学的综合评价方法，它根据模糊数学的隶属度理论把定性评价转化为定量评价，可根据预先设定的权重，定量评估不同污染物对总体污染程度的贡献[8]。模糊综合评价能够将一些边界不清，不易定量的因素定量化，具有结果清晰，系统性强的特点，因此它能够较好地解决模糊的、难以量化的问题。

大亚湾位于我国广东省的东南部，珠江口东侧，西南临近香港特区，北靠广东惠州，南接广阔的南海，是粤港澳大湾区最大的海湾之一，承载了粤港澳大湾区海陆交通枢纽、临海工业基地、重要城市中心、海洋经济生物摇篮等诸多经济社会职能[9]。20 世纪 70 年代以前，大亚湾周边地区基本处于自然状态，沿岸居民较少，生态环境优良。然而 70 年代以后，大亚湾沿岸经济获得了迅猛发展，但其生态环境也相应发生了较大变化[10−12]。重金属作为重要的污染物，具有来源广泛、无法分解、生物累积和毒性效应明显等特点。沉积物中的重金属是环境污染评价的理想指标。综合以上，本研究拟以大亚湾为研究实例，利用模糊综合评价法系统探讨粤港澳大湾区海洋沉积物中主要重金属元素（Cd、Cr、Cu、Pb、Zn）的“污染程度”。与此同时，结合我国的海洋沉积物质量标准（GB 18668−2002）及大亚湾沉积年代学讯息，定量获得近百年来大亚湾沉积物的污染状况与生态风险，厘清大亚湾生态环境质量的历史演变进程，以便更好地服务于粤港澳大湾区的可持续发展战略。

2 材料与方法

2.1 调查站位与样品采集

大亚湾是一个典型的亚热带半封闭内湾式海湾。其东西宽约 20 km，南北长约 30 km，总面积约为 600 km²，平均水深 11 m，湾内有大小岛屿 50 余个，拥有大鹏澳、哑铃湾（澳头湾）、范和港等一系列小的海湾（图 1）[13]。从 1986 年开始在大亚湾西南部建成我国第一座商用核电站，1992 年大亚湾规划区被批准为国家经济技术开发区以来，一大批工业项目在此建立。目前大亚湾地区已建有大亚湾核电站与岭澳核电站、广州石化原油码头、南海石化、惠州天然气发电厂等大型工业项目。目前大亚湾周边已发展成为石油化工、电子信息、汽车装备等优势产业集聚发展的珠江口东岸重要的临港工业基地。

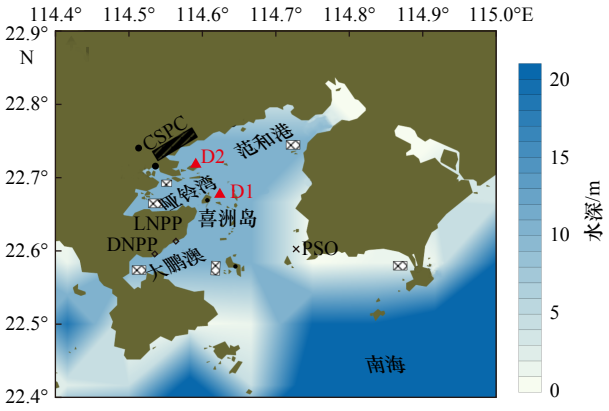


图 1 大亚湾调查站位

Fig. 1 Sampling stations in the Daya Bay

红色三角形表示柱状沉积物采样站位（D1 和 D2），黑色阴影矩形 CSPC 代表位于“惠州·大亚湾经济技术开发区”内的中海壳牌石油化工有限公司，×PSO 代表大亚湾石化排污口，灰色阴影矩形表示网箱养殖区。DNPP 表示大亚湾核电站；LNPP 表示岭澳核电站

The cores were collected in D1 and D2, which were marked as red triangles. The black shadow rectangle stands for the CNOOC and Shell Petrochemical Company Limited (CSPC) in the Huizhou Daya Bay Economic and Technological Development Zone. The black cross stands for the Petrochemical Sewage Outlet (PSO) of CSPC. Gray dashed rectangles stand for the aquaculture regions. DNPP and LNPP stand for the abbreviations of the Daya Bay Nuclear Power Plant and the Lingao Nuclear Power Plant

本研究于 2015 年 7 月 27 日至 8 月 1 日，搭乘“粤霞渔指 20010”调查船，利用重力柱状采样器在大亚湾采集了 D1 和 D2 两个柱状沉积物岩心样品。D1 站位于中海壳牌石油化工有限公司工业园外部海域，位置为 22°43′2.1″N, 114°35′38.76″E，水深 4.4 m。D2 站位于大亚湾中部的喜洲岛附近，位置为 22°40′48″N,

114°37′12″E, 水深 8.7 m。现场根据岩心长度将柱状沉积物按 1～2 cm 间隔分样, 并将分好的沉积物样品密封, 置于−20℃ 冷冻保存, 24 h 内送往陆地实验室进行相关处理、分析、测定工作。

2.2　样品分析与测定

2.2.1　沉积物中重金属含量

在进行分析之前, 先将沉积物样品冷冻干燥至恒重, 然后使用玛瑙研钵将沉积物样品研磨至 100 目以下, 准确称取 0.050 0 g 待测样品。利用硝酸(6 mL)、氢氟酸(2 mL)、过氧化氢(2 mL)的混合液在 MARS 6 型微波消解仪(CEM, 美国)中将待测样品进行高温消解。样品消解液中的主要重金属(Cd、Cr、Cu、Pb、Zn)含量采用电感耦合等离子体质谱仪(Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, ICP-MS)(Agilent 7500, 美国)测定, 而消解液中的 Al 则采用电感耦合等离子体原子发射光谱仪(Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometry, ICP-AES)(Perkin-Elmer Optima 7300 DV, 美国) 测定[10]。样品处理与测定过程中严格进行相关质量保证与质量控制措施: 所有实验器皿皆使用 5% 的硝酸浸泡 72 h 以上; 采用 6020ISS 混合内标(Inorganic, 美国)对仪器漂移和基体效应进行校正; 采用 GBW07429 和 GBW07309 标准物质对分析测定进程进行质量控制, 相关回收率为 89%～103%。

2.2.2　沉积物年代学讯息

本研究中大亚湾柱状沉积物的年代学讯息来自于文献 [11]。具体来说, D1 沉积柱 0～108 cm 所对应的时间为 2015−1895 年, 时间跨度为 120 a, 处于^{210}Pb 定年的有效范围内。相应地, D2 沉积柱 0～68 cm 沉积物对应时间序列为 2015−1874 年, 跨度为 141 a, 也处于^{210}Pb 定年的有效范围内。

2.2.3　重金属污染评价

本研究分别采用富集因子法(Enrichment Factor, EF)和潜在生态风险指数法(Potential Ecological Risk Index, RI)对大亚湾沉积物中重金属污染状况进行评价。富集因子法的计算方法如下:

$$\mathrm{EF}=\frac{(C_{\mathrm{S}}/\mathrm{Al}_{\mathrm{S}})}{(C_{\mathrm{B}}/\mathrm{Al}_{\mathrm{B}})}, \tag{1}$$

式中, C_{S}和C_{B}分别为重金属 i 在样品和背景中的含量, Al_{S}和Al_{B}分别为参考元素 Al 在样品和背景中的含量。富集因子法的评价标准请参见表 1[14]。

潜在生态风险指数法的计算方法如下[15]:

$$\mathrm{RI}=\sum_{i=1}^{n}E_r^i=\sum_{i=1}^{n}\left(T_r^i\times\frac{C_{\mathrm{S}}}{C_{\mathrm{B}}}\right), \tag{2}$$

式中, E_r^i为重金属 i 的潜在生态风险指数, T_r^i为重金属 i 的毒性和生物敏感因子。潜在生态风险指数法的评价标准参见表 2。

表 1　富集因子法评价标准

Table 1　Category of enrichment factor (EF)

EF	类别
<1	微富集
<3	低等富集
3～5	中等富集
5～10	中等严重富集
10～25	严重富集
25～50	非常严重富集
>50	特别严重富集

本研究选取沉积柱最深的 30 cm 样品的测定值作为重金属污染评价的背景值(表 3)。根据沉积速率推算, 沉积柱最深的 30 cm 样品对应的时间为 20 世纪 30 年代以前, 该段时期大亚湾沉积环境稳定, 人为影响可忽略, 适合作为背景参考。

2.2.4　模糊综合分析法

本研究采取的模糊综合分析法具体分为 5 个步骤[16−19]。

首先, 选取评估参数并建立评估标准。选取具有代表性的评估参数对最终评估结果的有效性至关重要。根据选取的各个评估参数, 构建评估参数集合 $\boldsymbol{A}$:

表 2　潜在生态风险指数法评价标准

Table 2　Category of potential ecological risk index (RI)

RI	类别
<150	低等生态风险
150～300	中等生态风险
300～600	高等生态风险
>600	极高生态风险

表 3　沉积物重金属背景值（C_{B}）及毒性生物敏感性指数（T_r^i）[15]

Table 3　Background values (C_{B}), toxicity and biological sensitivity of metals (T_r^i)[15]

		Al	Cd	Cr	Cu	Pb	Zn
C_{B}/μg·g^{-1}	D1	57 572	0.05	86.20	20.25	56.81	99.79
	D2	59 036	0.06	77.44	9.82	40.10	104.53
T_r^i			30	2	5	5	1

$$\boldsymbol{A}=\{a_1+a_2+\cdots+a_n\},\tag{3}$$

式中，a 为某重金属元素，n 为评估参数的数量。本研究以重金属 Cd、Cr、Cu、Pb、Zn 为评估参数，因此 n=5。

根据选取的各评估标准，构建评估标准集合 $\boldsymbol{S}$：

$$\boldsymbol{S}=\{s_1+s_2+\cdots+s_m\},\tag{4}$$

式中，s 为具体的评估标准，m 为评估标准的数量或等级。本研究所采用的评估标准为我国的《海洋沉积物质量（GB 18668−2002）》，该标准将海洋沉积物质量分为 3 个等级（即Ⅰ级，Ⅱ级，Ⅲ级）（表 4），因此 m=3。

表 4　《中华人民共和国海洋沉积物质量标准（GB 18668−2002）》

Table 4　*China National Standard for Marine Sediment Quality (GB 18668−2002)*

重金属含量	等级Ⅰ	等级Ⅱ	等级Ⅲ
Cd/μg·g^{-1}	0.5	1.5	5.0
Cr/μg·g^{-1}	80	150	270
Cu/μg·g^{-1}	35	100	200
Pb/μg·g^{-1}	60	130	250
Zn/μg·g^{-1}	150	350	600

第二，根据评估标准 s，计算评估参数 a 的隶属度。本研究中，隶属度反映的是重金属 a 针对评估标准 s 的归属性或权重。隶属度的计算方法如下：

$$r_1(a)=\begin{cases}1 & x\leqslant s_1,\\ (s_2-x)/(s_2-s_1) & s_1<x<s_2,\\ 0 & x\geqslant s_2,\end{cases}\tag{5}$$

$$r_2(a)=\begin{cases}1-r_1(x) & s_1<x<s_2,\\ (s_3-x)/(s_3-s_2) & s_2\leqslant x<s_3,\\ 0 & x\geqslant s_3,\end{cases}\tag{6}$$

$$r_3(a)=\begin{cases}0 & x<s_2,\\ 1-r_2(x) & s_2\leqslant x<s_3,\\ 0 & x\geqslant s_3,\end{cases}\tag{7}$$

式中，x 为重金属 a 的含量水平。本研究中 $r_1(a)$、$r_2(a)$、$r_3(a)$ 分别为重金属 a 在海洋沉积物质量等级Ⅰ级，Ⅱ级，Ⅲ级下的隶属度。

第三，构建模糊矩阵 $\boldsymbol{R}$。模糊矩阵 $\boldsymbol{R}$ 的构建方法如下：

$$\boldsymbol{R}_k=\begin{bmatrix}r_{11} & r_{12} & \cdots & r_{1m}\\ r_{21} & r_{22} & \cdots & r_{2m}\\ \vdots & \vdots & & \vdots\\ r_{n1} & r_{n2} & \cdots & r_{nm}\end{bmatrix},\tag{8}$$

式中，$r_{ij}(i=1,2,\cdots,n;\ j=1,2,\cdots,m)$ 为重金属 a_i 在估标准 s_j 下的隶属度。k 在本研究中代表相应的沉积物样品，即不同深度层次下的沉积物样品。

第四，构建权值矩阵。在构建权值矩阵之前，首先需要计算重金属 a_i 对沉积物 k 环境质量的贡献率（或权值）：

$$a_{i(k)}=\frac{x_{i(k)}}{\overline{s_i}},\tag{9}$$

$$W_{i(k)}=\frac{a_{i(k)}}{\sum_{i=1}^{n}a_{i(k)}},\tag{10}$$

式中，$x_{i(k)}$ 为重金属 a_i 在沉积物 k 中的含量水平；$\overline{s_i}$ 为评价标准的平均值，在本研究中即为重金属 a_i 在 s_1、s_2、s_3 下的平均值；$W_{i(k)}$ 为重金属 a_i 对沉积物 k 环境质量的贡献率。

在获得重金属 a_i 对沉积物 k 环境质量的贡献率之后，将各个重金属沉积物 k 环境质量的贡献率集合，即获得评估参数集合 $\boldsymbol{A}$ 下的沉积物 k 的权值矩阵 $\boldsymbol{Q}_{(k)}$：

$$\boldsymbol{Q}_{(k)}=\left[W_{1(k)},W_{2(k)},\cdots,W_{n(k)}\right].\tag{11}$$

最后一步，通过矩阵相乘的获得模糊综合评价的最终结果。

$$F=\boldsymbol{Q}\cdot\boldsymbol{R}.\tag{12}$$

2.2.5　数据统计与分析

使用 Surfer 15（Golden Software, 美国）对采样站位的分布进行作图。使用 SigmaPlot 14（Systat Software, 美国）对主要参数的垂直分布进行作图。

3　结果与分析

3.1　大亚湾沉积物重金属污染状况与潜在生态风险的历史变化过程

为了深入了解并全面评价粤港澳大湾区海洋环境污染状况，本研究以 Cd、Cr、Cu、Pb、Zn 为研究对象，结合沉积年代学讯息，评估了近百年来大亚湾海洋沉积物中重金属的富集因子（EF）与潜在生态风险指数（RI）的历史变化。

大亚湾 D1 沉积柱的分析结果表明，大亚湾近岸海域的海洋环境在近百年来经历了 3 段不同的历史时期（图 2）。（1）20 世纪 80 年代之前，此段时期重金属 Cd、Cr、Cu、Pb、Zn 的富集因子皆低于 1.5，表明重金属的含量维持在背景水平，富集程度低，人为活动对海湾的污染较小。（2）1980−2000 年间，此阶段重金属含量急剧升高，在 2000 年前后同时达到峰值：Cd、Cr、Cu、Pb、Zn 的富集因子分别为 9.0、3.1、25.7、2.6、4.4。表明此阶段大亚湾海域遭受到了重金属的污染，但不同重金属的污染水平具有显著差异，以 Cr 和 Cu 的污染最为严重。（3）2000 年至今，该时期内各重金属的含量又迅速下降，回到了 20 世纪 80 年代之前

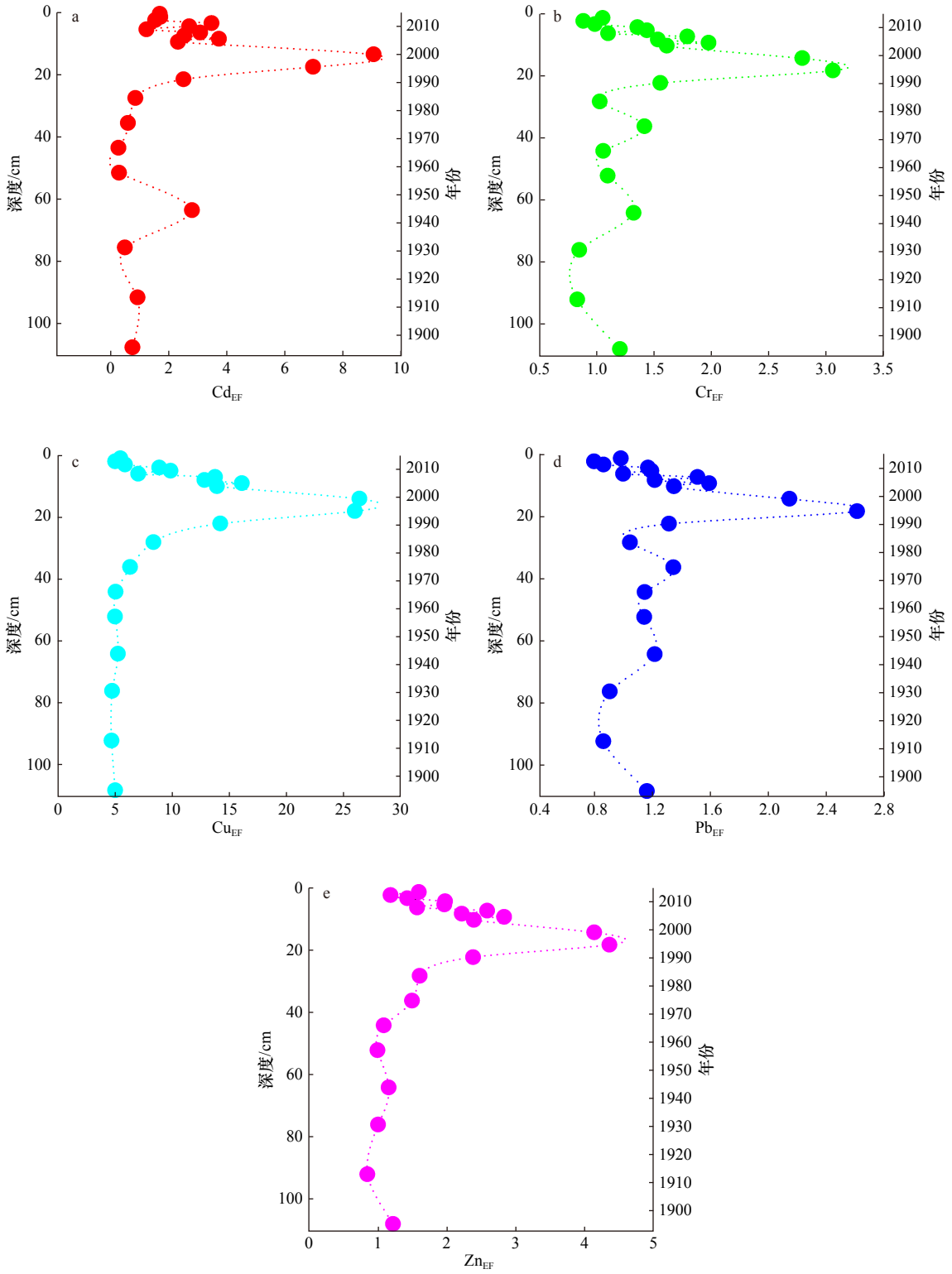


图 2　大亚湾 D1 沉积柱中重金属(Cd、Cr、Cu、Pb、Zn)富集因子的历史变化

Fig. 2　Historical variations of enrichment factor in the Core D1 of the Daya Bay

的背景水平, 表明大亚湾海域的重金属污染在该阶段得到了有效控制, 并恢复到了未污染之前的水平。人为活动对海湾生态环境的影响效力通常会因空间变化而产生较大差异, D2 沉积柱的研究结果印证了这一点。重金属 Cd、Cr、Cu、Pb、Zn 在 D2 沉积柱中的富集因子总体皆低于其在 D1 沉积柱中的情况(图 3), 表明人为活动对外部海域的污染程度较低。虽然如此, D2 沉积柱重金属富集因子的历史变化趋势与 D1

沉积柱中的基本一致，再次表现出“未污染–污染–恢复”的 3 段变化模式。

重金属对生物具有毒性。本研究利用潜在生态风险指数法，获得了大亚湾海洋沉积物重金属对生态环境的潜在影响，并掌握了其历史变化规律。结果表明，当重金属于 1990–2000 年在近岸海域沉积物中急剧富集时，其对海洋环境存在着“中等–高等”的生态风险，尤其是 2000 年前后，潜在生态风险指数突破 300，处于最高风险（图 4a）。而随着 2000 年以后富集现象的逐渐减弱，重金属的潜在生态风险也随之降

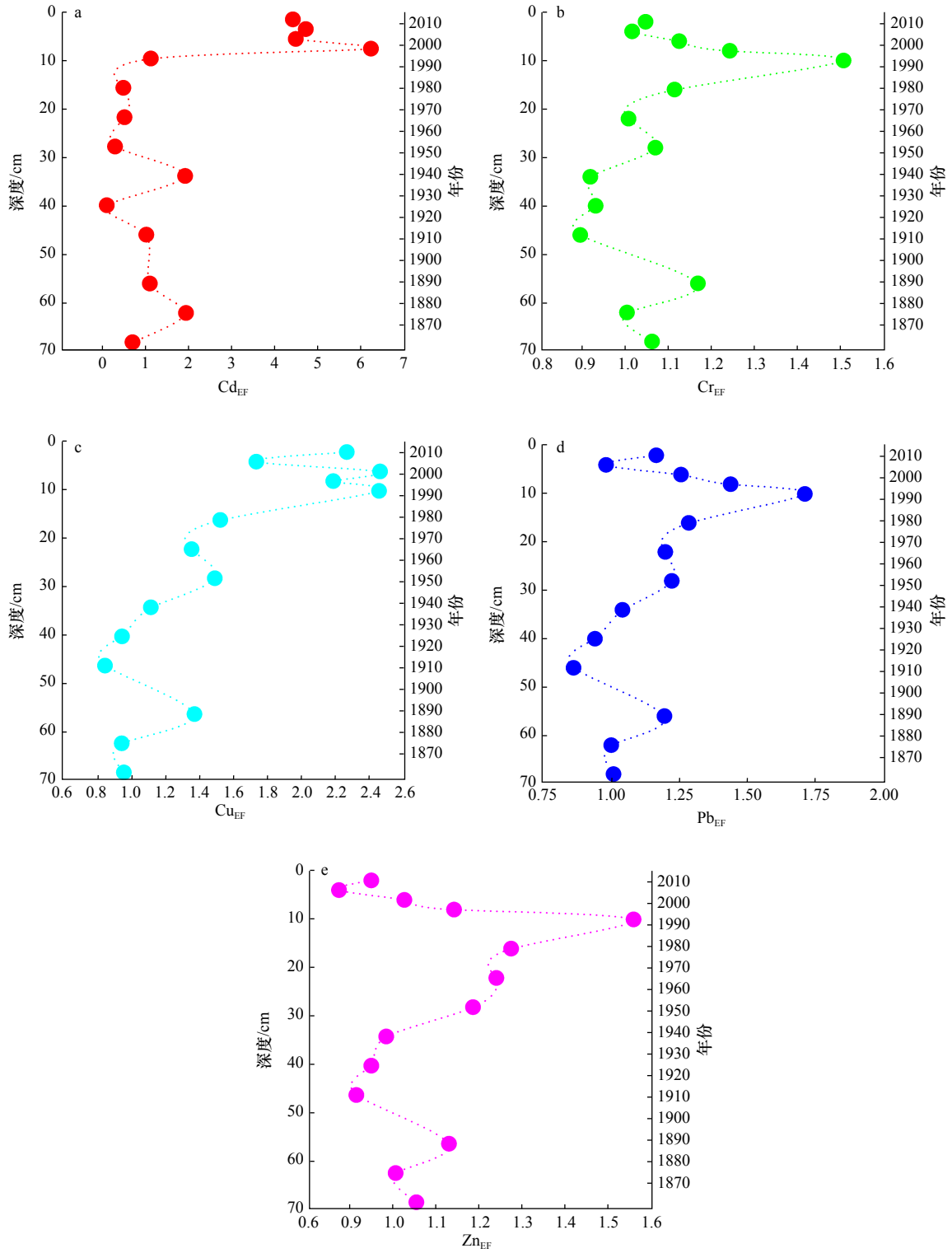


图 3 大亚湾 D2 沉积柱中重金属（Cd、Cr、Cu、Pb、Zn）富集因子的历史变化

Fig. 3 Historical variations of enrichment factor in the Core D2 of the Daya Bay

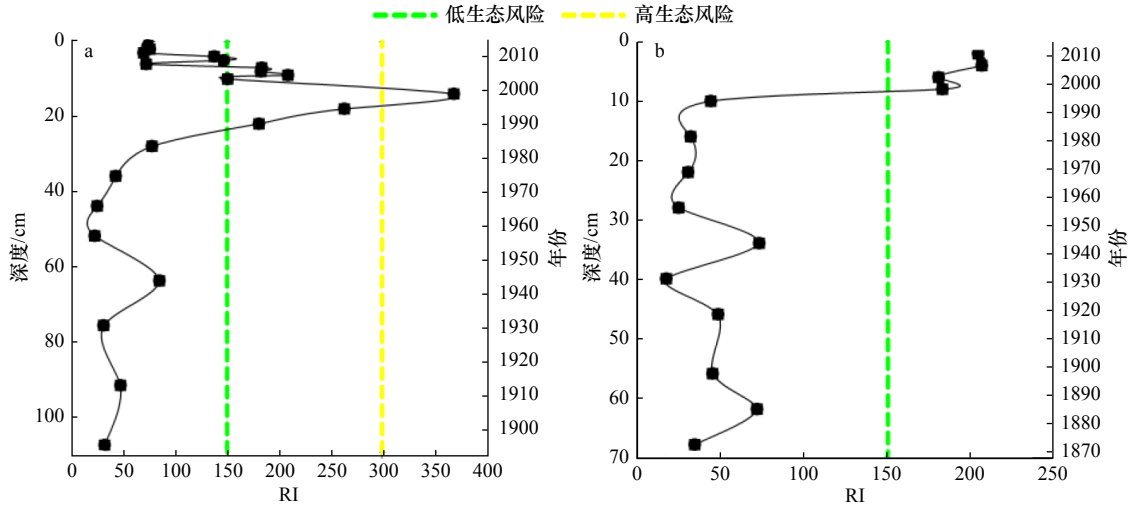


图 4　大亚湾 D1(a)、D2(b)沉积柱中重金属(Cd、Cr、Cu、Pb、Zn)潜在生态风险指数(RI)的历史变化

Fig. 4　Historical variations of RI in the Core D1 (a) and Core D2 (b) of the Daya Bay

低，目前已恢复到了背景水平。不仅如此，本研究还发现，由于重金属在大亚湾外部海域的富集水平相对较低，其产生的潜在生态风险也相对较小，1990 年之前基本不具有生态风险。但在 2000 年以后，外部海域重金属的潜在生态风险指数显著升高，目前已处于中等生态风险水平(图 4b)，这一趋势值得持续关注研究。

4　讨论

研究大亚湾海域沉积物中重金属的污染水平与潜在生态风险的历史变化，对于认识粤港澳大湾区海洋生态环境状况具有重要意义。本研究选定重金属(Cd、Cr、Cu、Pb、Zn)为评价要素，以我国的《海洋沉积物质量标准(GB 18668−2002)》为评价标准，利用模糊综合分析的方法，计算了不同种类重金属对“污染程度”的贡献权重，定量评价了沉积物的“污染程度”。

模糊综合评价法能够根据所获得的权重矩阵，定量甄别出起绝对作用的关键污染元素。本研究所获得的具体评价结果见图 5 至图 8。本节以大亚湾 D1 沉积柱中的表层沉积物(即 $k1$)的结果为例(图 7)，对模糊综合平均法的结果进行详细阐释。重金属 Cd、Cr、Cu、Pb、Zn 在 D1 沉积柱表层样品中所占的权重分别为 0.02、0.32、0.18、0.22、0.26。从中可以看出，Cr 所占权重最高，表明 Cr 在 D1 沉积柱中的表层样品中是最主要的污染元素。Zn、Pb 和 Cu 的权重依次降低，表明 Zn、Pb 和 Cu 在环境污染中的重要性依次递减，Cd 所占权重最低，表明 Cd 在此沉积物中的污染贡献最低。图 9 分别汇总了近百年来大亚湾近岸 D1 沉积柱，外部 D2 沉积柱中各重金属元素对环境污染贡献权重的历史变化。从中可以直观地看出，大亚湾近岸海域在大部分历史时期内，主要受到 Cr 污染的侵害。然而在 20 世纪 80 年代至 2015 年，Cu 的污染成为主要方面。而 Cd 近百年来一直是占污染权重最低的重金属。然而对于大亚湾外部海域来说，各重金属对总体污染的贡献权重在近百年来保持稳定，几乎没有随时间变化。其中 Cr 的贡献率最高，Pb、Zn、Cu 次之，Cd 最低。由此可以得出结论，在近百年的历史时期内，Cr 一直是大亚湾海洋沉积物中最主要的污染元素，但在 20 世纪 80 年代至 2015 年，Cu 阶段性成为近岸海域最主要的污染元素。Pb 和 Zn 基本保持污染元素中的次要地位，Cd 一直是大亚湾海域沉积物污染贡献率最低的元素。

为维护海洋生态平衡，保障人体健康，国家海洋标准中心于 2002 年制定了《中华人民共和国海洋沉积物质量标准(GB 18668−2002)》，将海洋沉积物质量划分为 3 个等级(表 4)。本研究利用模糊综合评价法，首次定量获得了大亚湾海域沉积物环境质量的历史变化。具体评价结果可见图 10 和图 11。以大亚湾 D1 沉积柱中的表层沉积物(即 $k1$)为例，其沉积物质量占 3 类标准的权重分别为 0.90、0.10、0，表明大亚湾近岸的 D1 沉积柱表层样品质量有 90% 的权重可归Ⅰ类，有 10% 的权重可归为Ⅱ类，说明该层沉积物的质量评价结果较为优良。图 12 则分别汇总了近百年来大亚湾近岸(D1)和外部(D2)沉积物质量等级的历史变化规律。具体来说，大亚湾近岸沉积物

$$\boldsymbol{R}_1=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.77&0.23&0\\0.99&0.01&0\\1&0&0\\0.9&0.1&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_2=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.89&0.11&0\\1&0&0\\1&0&0\\1&0&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_3=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.87&0.13&0\\0.83&0.17&0\\1&0&0\\1&0&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_4=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.55&0.45&0\\0.00&0.91&0.09\\0.95&0.05&0\\0.80&0.20&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_5=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.09&0.91&0\\0&0.41&0.59\\0.74&0.26&0\\0.61&0.39&0\end{bmatrix}$$

$$\boldsymbol{R}_6=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.63&0.37&0\\0.32&0.68&0\\0.96&0.04&0\\0.87&0.13&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_7=\begin{bmatrix}1&0&0\\0&0.80&0.20\\0&0&0\\0.48&0.52&0\\0.29&0.71&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_8=\begin{bmatrix}1&0&0\\0&0.64&0.36\\0&0&0\\0.57&0.43&0\\0.29&0.71&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_9=\begin{bmatrix}1&0&0\\0&0.76&0.24\\0&0&1\\0.49&0.51&0\\0.25&0.75&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_{10}=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.01&0.99&0\\0&0&1\\0.69&0.31&0\\0.46&0.54&0\end{bmatrix}$$

$$\boldsymbol{R}_{11}=\begin{bmatrix}1&0&0\\0&0.48&0.52\\0&0&1\\0.33&0.67&0\\0&0.94&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_{12}=\begin{bmatrix}1&0&0\\0&0.63&0.37\\0&0&01\\0.30&0.70&0\\0.15&0.85&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_{13}=\begin{bmatrix}1&0&0\\0&0.88&0.12\\0&0&1\\0.55&0.45&0\\0.28&0.72&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_{14}=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.53&0.47&0\\0&0.70&0.30\\0.78&0.22&0\\0.72&0.28&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_{15}=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.43&0.57&0\\0.73&0.27&1\\0.79&0.21&0\\1&0&0\end{bmatrix}$$

$$\boldsymbol{R}_{16}=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.82&0.18&0.12\\1&0&1\\0.91&0.09&0\\1&0&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_{17}=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.92&0.08&0\\1&0&0\\1&0&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_{18}=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.80&0.20&0\\1&0&0\\1&0&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_{19}=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.97&0.03&0.12\\1&0&0\\1&0&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_{20}=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.94&0.06&0\\1&0&0\\1&0&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_{21}=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.94&0.06&0\\1&0&0\\1&0&0\end{bmatrix}$$

图 5 大亚湾 D1 沉积柱中重金属的模糊矩阵

Fig. 5 The fuzzy matrix $\boldsymbol{R}$ of each sediment sample in the Core D1 of the Daya Bay

$\boldsymbol{R}_1$ 代表首层沉积物样品, 以下以此类推

The $\boldsymbol{R}_1$ stands for sediment sample from the first depth ($k1$), and the rest can be deduced in the same manner

$$\boldsymbol{R}_1=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.60&0.40&0\\1&0&0\\0.96&0.04&0\\0.63&0.37&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_2=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.68&0.32&0\\1&0&0\\1&0&0\\0.81&0.19&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_3=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.71&0.29&0\\1&0&0\\1&0&0\\0.90&0.10&0\end{bmatrix}$$

$$\boldsymbol{R}_4=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.94&0.06&0\\1&0&0\\1&0&0\\0.93&0.07&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_5=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.93&0.07&0\\1&0&0\\1&0&0\\1&0&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_6=\begin{bmatrix}1&0&0\\0.98&0.02&0\\1&0&0\\1&0&0\\1&0&0\end{bmatrix}\quad \boldsymbol{R}_{7\text{-}14}=\begin{bmatrix}1&0&0\\1&0&0\\1&0&0\\1&0&0\\1&0&0\end{bmatrix}$$

图 6 大亚湾 D2 沉积柱中重金属的模糊矩阵

Fig. 6 The fuzzy matrix $\boldsymbol{R}$ of each sediment sample in the Core D2

$\boldsymbol{R}_1$ 代表首层沉积物样品, 以下以此类推

The $\boldsymbol{R}_1$ stands for sediment sample from the first depth ($k1$), and the rest can be deduced in the same manner

$\boldsymbol{Q}_1$= (0.02 0.32 0.18 0.22 0.26);
$\boldsymbol{Q}_2$= (0.03 0.34 0.16 0.23 0.24);
$\boldsymbol{Q}_3$= (0.02 0.31 0.24 0.20 0.24);
$\boldsymbol{Q}_4$= (0.03 0.25 0.37 0.16 0.19);
$\boldsymbol{Q}_5$= (0.02 0.25 0.04 0.15 0.18);
$\boldsymbol{Q}_6$= (0.01 0.28 0.31 0.19 0.21);
$\boldsymbol{Q}_7$= (0.02 0.21 0.47 0.13 0.16);
$\boldsymbol{Q}_8$= (0.01 0.21 0.49 0.12 0.16);
$\boldsymbol{Q}_9$= (0.02 0.02 0.50 0.12 0.15);
$\boldsymbol{Q}_{10}$= (0.01 0.20 0.50 0.13 0.16);
$\boldsymbol{Q}_{11}$= (0.02 0.17 0.56 0.10 0.14);
$\boldsymbol{Q}_{12}$= (0.02 0.19 0.54 0.12 0.14);
$\boldsymbol{Q}_{13}$= (0.01 0.19 0.51 0.12 0.16);
$\boldsymbol{Q}_{14}$= (0.01 0.23 0.40 0.17 0.19);
$\boldsymbol{Q}_{15}$= (0.01 0.34 0.22 0.24 0.19);
$\boldsymbol{Q}_{16}$= (0.01 0.36 0.14 0.29 0.20);
$\boldsymbol{Q}_{17}$= (0.00 0.38 0.14 0.26 0.18);
$\boldsymbol{Q}_{18}$= (0.03 0.38 0.14 0.26 0.18);
$\boldsymbol{Q}_{19}$= (0.01 0.36 0.12 0.28 0.22);
$\boldsymbol{Q}_{20}$= (0.02 0.37 0.12 0.29 0.20);
$\boldsymbol{Q}_{21}$= (0.01 0.38 0.13 0.28 0.20).

图 7 大亚湾 D1 沉积柱中重金属的权值矩阵

Fig. 7 The weigh matrices $\boldsymbol{Q}$ of each sediment sample in the Core D1 of the Daya Bay

$\boldsymbol{Q}_1$ 代表首层沉积物样品, 以下以此类推

The $\boldsymbol{Q}_1$ stands for sediment sample from the first depth ($k1$), and the rest can be deduced in the same manner

$\boldsymbol{Q}_1$= (0.07 0.31 0.13 0.21 0.29);
$\boldsymbol{Q}_2$= (0.08 0.34 0.11 0.19 0.28);
$\boldsymbol{Q}_3$= (0.07 0.33 0.14 0.22 0.25);
$\boldsymbol{Q}_4$= (0.08 0.32 0.11 0.22 0.28);
$\boldsymbol{Q}_5$= (0.02 0.36 0.11 0.24 0.27);
$\boldsymbol{Q}_6$= (0.01 0.38 0.10 0.26 0.24);
$\boldsymbol{Q}_7$= (0.01 0.36 0.09 0.25 0.29);
$\boldsymbol{Q}_8$= (0.01 0.37 0.10 0.25 0.26);
$\boldsymbol{Q}_9$= (0.04 0.36 0.08 0.24 0.28);
$\boldsymbol{Q}_{10}$= (0.00 0.40 0.08 0.24 0.28);
$\boldsymbol{Q}_{11}$= (0.02 0.40 0.07 0.23 0.27);
$\boldsymbol{Q}_{12}$= (0.02 0.39 0.09 0.24 0.26);
$\boldsymbol{Q}_{13}$= (0.04 0.38 0.07 0.23 0.29);
$\boldsymbol{Q}_{14}$= (0.01 0.41 0.07 0.23 0.28).

图 8 大亚湾 D2 沉积柱中重金属的权值矩阵

Fig. 8 The weigh matrices $\boldsymbol{Q}$ of each sediment sample in the Core D2 of the Daya Bay

其中 $\boldsymbol{Q}_1$ 代表首层沉积物样品, 以下以此类推

The $\boldsymbol{Q}_1$ stands for sediment sample from the first depth ($k1$), and the rest can be deduced in the same manner

(D1)自 2010 年以后皆属于Ⅰ类水平, 但是在 1980−2010 年间, 曾经有过质量较差的现象发生, 尤其是 1990−2007 年间, 沉积物质量等级为Ⅲ类, 对生物和人类皆具有十分严重的危害(图 12a)。本研究还发现, 大亚湾外部海域沉积物的质量则要明显优于近岸海域沉积物。D2 沉积柱的质量在 1980 年代之前完全处于Ⅰ类水平, 在 1980 年代之后在Ⅱ类等级中也最多仅有 20% 左右的权重。

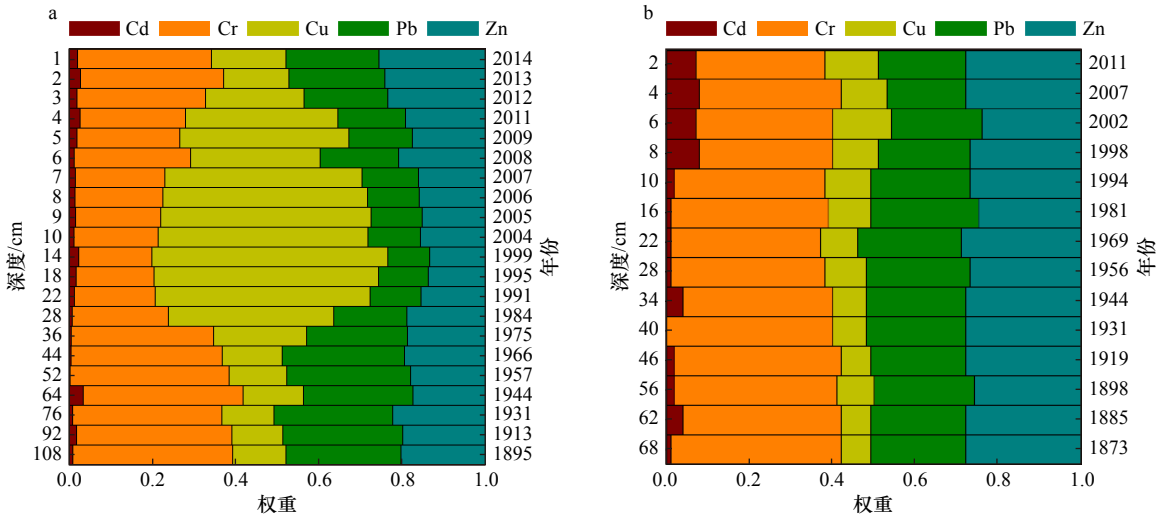


图 9　大亚湾 D1、D2 沉积柱中重金属(Cd、Cr、Cu、Pb、Zn)占整体污染权重的历史变化

Fig. 9　Profiles of weight matrices for sediments from the Core D1 (a) and the Core D2 (b) of the Daya Bay

F_1=$\boldsymbol{Q}_1$·$\boldsymbol{R}_1$= (0.90 0.10 0);
F_2=$\boldsymbol{Q}_2$·$\boldsymbol{R}_2$= (0.96 0.04 0);
F_3=$\boldsymbol{Q}_3$·$\boldsymbol{R}_3$= (0.92 0.08 0);
F_4=$\boldsymbol{Q}_4$·$\boldsymbol{R}_4$= (0.47 0.49 0.03);
F_5=$\boldsymbol{Q}_5$·$\boldsymbol{R}_5$= (0.26 0.50 0.24);
F_6=$\boldsymbol{Q}_6$·$\boldsymbol{R}_6$= (0.65 0.35 0);
F_7=$\boldsymbol{Q}_7$·$\boldsymbol{R}_7$= (0.130.36 0.51);
F_8=$\boldsymbol{Q}_8$·$\boldsymbol{R}_8$= (0.13 0.30 0.57);
F_9=$\boldsymbol{Q}_9$·$\boldsymbol{R}_9$= (0.11 0.33 0.56);
F_{10}=$\boldsymbol{Q}_{10}$·$\boldsymbol{R}_{10}$= (0.17 0.32 0.56);
F_{11}=$\boldsymbol{Q}_{11}$·$\boldsymbol{R}_{11}$= (0.06 0.28 0.66);
F_{12}=$\boldsymbol{Q}_{12}$·$\boldsymbol{R}_{12}$= (0.07 0.32 0.61);
F_{13}=$\boldsymbol{Q}_{13}$·$\boldsymbol{R}_{13}$= (0.13 0.34 0.54);
F_{14}=$\boldsymbol{Q}_{14}$·$\boldsymbol{R}_{14}$= (0.40 0.48 0.12);
F_{15}=$\boldsymbol{Q}_{15}$·$\boldsymbol{R}_{15}$= (0.70 0.30 0);
F_{16}=$\boldsymbol{Q}_{16}$·$\boldsymbol{R}_{16}$= (0.91 0.09 0);
F_{17}=$\boldsymbol{Q}_{17}$·$\boldsymbol{R}_{17}$= (0.97 0.03 0);
F_{18}=$\boldsymbol{Q}_{18}$·$\boldsymbol{R}_{18}$= (0.92 0.08 0);
F_{19}=$\boldsymbol{Q}_{19}$·$\boldsymbol{R}_{19}$= (0.99 0.02 0);
F_{20}=$\boldsymbol{Q}_{20}$·$\boldsymbol{R}_{20}$= (0.98 0.02 0);
F_{21}=$\boldsymbol{Q}_{21}$·$\boldsymbol{R}_{21}$= (0.98 0.02 0).

图 10　大亚湾 D1 沉积柱中重金属模糊综合评价结果

Fig. 10　The results of FCA for sediments of the Core D1 in the Daya Bay

F_1 代表首层沉积物样品, 以下以此类推

The F_1 stands for sediment sample from the first depth (k1), and the rest can be deduced in the same manner

F_1=$\boldsymbol{Q}_1$·$\boldsymbol{R}_1$= (0.76 0.24 0);
F_2=$\boldsymbol{Q}_2$·$\boldsymbol{R}_2$= (0.84 0.16 0);
F_3=$\boldsymbol{Q}_3$·$\boldsymbol{R}_3$= (0.88 0.12 0);
F_4=$\boldsymbol{Q}_4$·$\boldsymbol{R}_4$= (0.96 0.04 0);
F_5=$\boldsymbol{Q}_5$·$\boldsymbol{R}_5$= (0.98 0.02 0);
F_6=$\boldsymbol{Q}_6$·$\boldsymbol{R}_6$= (0.99 0.01 0);
F_7=$\boldsymbol{Q}_7$·$\boldsymbol{R}_7$= (1 0 0);
F_8=$\boldsymbol{Q}_8$·$\boldsymbol{R}_8$= (1 0 0);
F_9=$\boldsymbol{Q}_9$·$\boldsymbol{R}_9$= (1 0 0);
F_{10}=$\boldsymbol{Q}_{10}$·$\boldsymbol{R}_{10}$= (1 0 0);
F_{11}=$\boldsymbol{Q}_{11}$·$\boldsymbol{R}_{11}$= (1 0 0);
F_{12}=$\boldsymbol{Q}_{12}$·$\boldsymbol{R}_{12}$= (1 0 0);
F_{13}=$\boldsymbol{Q}_{13}$·$\boldsymbol{R}_{13}$= (1 0 0);
F_{14}=$\boldsymbol{Q}_{14}$·$\boldsymbol{R}_{14}$= (1 0 0).

图 11　大亚湾 D2 沉积柱中重金属模糊综合评价结果

Fig. 11　The results of FCA for sediments of the Core D2 in the Daya Bay

F_1 代表首层沉积物样品, 以下以此类推

The F_1 stands for sediment sample from the first depth (k1), and the rest can be deduced in the same manner

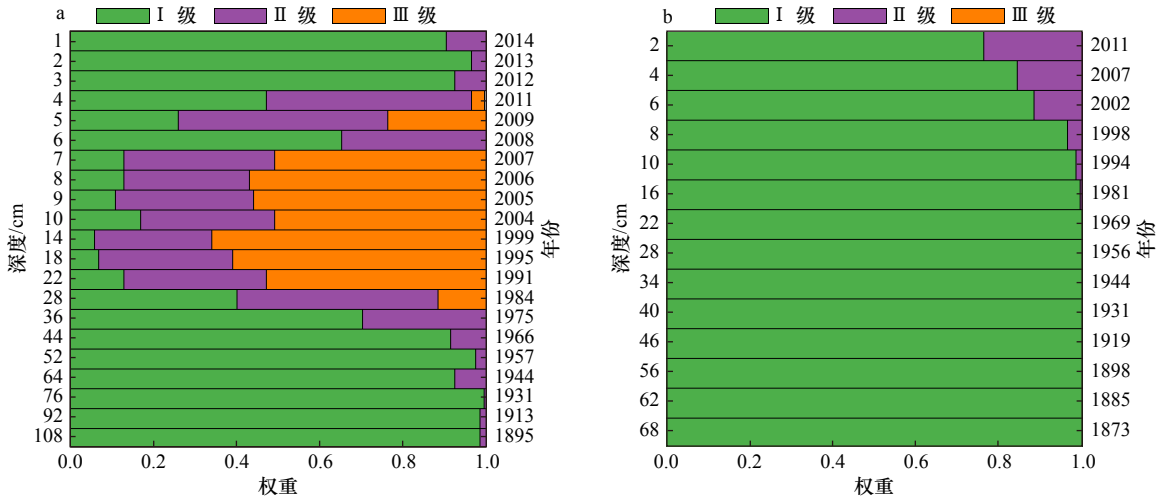


图 12　大亚湾 D1、D2 沉积柱环境质量等级的历史变化

Fig. 12　Profiles of sediment quality for sediments from the Core D1 (a) and the Core D2 (b) of the Daya Bay

5 结论

本研究以大亚湾为研究区域，利用模糊综合评价法系统探讨粤港澳大湾区海洋沉积物中主要重金属元素（Cd、Cr、Cu、Pb、Zn）的污染水平。与此同时，结合我国的《海洋沉积物质量标准（GB 18668−2002）》及大亚湾沉积年代学讯息，评估了近百年来大亚湾沉积物的污染状况与生态风险，厘清了大亚湾生态环境质量的历史演变进程，为更好地服务于粤港澳大湾区的可持续发展战略提供了科学基础。本研究的结果发现，大亚湾海域的环境在过去百年间经历了 3 个变化阶段：（1）1980 年代之前，沉积物质量皆处于一类等级以上，重金属污染程度低，潜在生态风险小，对污染贡献最高的元素为 Cr，最低的为 Cd。（2）1980−2000 年间，重金属的含量显著升高，近岸沉积物质量等级处于二类与三类，该阶段大亚湾沉积物出现了较为严重的重金属污染，Cu 取代 Cr 成为最主要的污染元素。（3）2000 年以后，沉积物中重金属的富集和生态风险显著下降，污染状况明显降低，质量等级恢复到了一类水平，Cr 是最为主要的污染元素。

参考文献：

[1] 周春山, 罗利佳, 史晨怡, 等. 粤港澳大湾区经济发展时空演变特征及其影响因素[J]. 热带地理, 2017, 37(6): 802−813.
Zhou Chunshan, Luo Lijia, Shi Chenyi, et al. Spatio-temporal evolutionary characteristics of the economic development in the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area and its influencing factors[J]. Tropical Geography, 2017, 37(6): 802−813.

[2] 李立勋. 关于“粤港澳大湾区”的若干思考[J]. 热带地理, 2017, 37(6): 757−761.
Li Lixun. Thinking on the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area[J]. Tropical Geography, 2017, 37(6): 757−761.

[3] 杜俊民, 朱赖民, 张远辉. 南黄海中部沉积物微量元素的环境记录研究[J]. 海洋学报, 2004, 26(6): 49−57.
Du Junmin, Zhu Laimin, Zhang Yuanhui. The environment significance of trace elements for the sediments from the southern Huanghai Sea[J]. Haiyang Xuebao, 2004, 26(6): 49−57.

[4] Duan Liqin, Song Jinming, Xu Yayan, et al. The concentrations, fluxes, enrichments and chronologies of potential harmful elements in sediment cores from Bohai Bay, North China[J]. Environmental Earth Sciences, 2011, 64(8): 2259−2269.

[5] Liang Xianmeng, Song Jinming, Duan Liqin, et al. Source identification and risk assessment based on fractionation of heavy metals in surface sediments of Jiaozhou Bay, China[J]. Marine Pollution Bulletin, 2018, 128: 548−556.

[6] Liang Xianmeng, Song Jinming, Duan Liqin, et al. Metals in size-fractionated core sediments of Jiaozhou Bay, China: records of recent anthropogenic activities and risk assessments[J]. Marine Pollution Bulletin, 2018, 127: 198−206.

[7] Wu Meilin, Wang Youshao. Using chemometrics to evaluate anthropogenic effects in Daya Bay, China[J]. Estuarine, Coastal and Shelf Science, 2007, 72(4): 732−742.

[8] Gu Yangguang, Wang Xunuo, Lin Qin, et al. Fuzzy comprehensive assessment of heavy metals and Pb isotopic signature in surface sediments from a bay under serious anthropogenic influences: Daya Bay, China[J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2016, 126: 38−44.

[9] 黄小平, 张景平, 江志坚. 人类活动引起的营养物质输入对海湾生态环境的影响机理与调控原理[J]. 地球科学进展, 2015, 30(9): 961−969.
Huang Xiaoping, Zhang Jingping, Jiang Zhijian. Eco-environmental effects of nutrients input caused by human activities on the semi-enclosed bay and its management strategy[J]. Advances in Earth Science, 2015, 30(9): 961−969.

[10] Qu Baoxiao, Song Jinming, Yuan Huanmao, et al. Intensive anthropogenic activities had affected Daya Bay in South China Sea since the 1980s: evidence from heavy metal contaminations[J]. Marine Pollution Bulletin, 2018, 135: 318−331.

[11] 曲宝晓, 宋金明, 袁华茂. 近百年来大亚湾沉积物有机质的沉积记录及对人为活动的响应[J]. 海洋学报, 2018, 40(10): 119−130.
Qu Baoxiao, Song Jinming, Yuan Huamao. Sediment records and responses for anthropogenic activities of organic matter in the Daya Bay during recent one hundred years[J]. Haiyang Xuebao, 2018, 40(10): 119−130.

[12] 王友绍, 王肇鼎, 黄良民. 近20年来大亚湾生态环境的变化及其发展趋势[J]. 热带海洋学报, 2004, 23(5): 85−95.
Wang Youshao, Wang Zhaoding, Huang Liangmin. Environment changes and trends in Daya Bay in recent 20 years[J]. Journal of Tropical Oceanography, 2004, 23(5): 85−95.

[13] 王友绍. 大亚湾生态环境与生物资源[M]. 北京: 科学出版社, 2014.
Wang Youshao. Ecological Environments and Biological Resources of Daya Bay[M]. Beijing: Science Press, 2014.

[14] Hu Chengye, Yang Xiaolong, Dong Jianyu, et al. Heavy metal concentrations and chemical fractions in sediment from Swan Lagoon, China: their relation to the physiochemical properties of sediment[J]. Chemosphere, 2018, 209: 848−856.

[15] Hakanson L. An ecological risk index for aquatic pollution control a sedimentological approach[J]. Water Research, 1980, 14(8): 975−1001.

[16] Adebowale K O, Agunbiade F O, Olu-Owolabi B I. Fuzzy comprehensive assessment of metal contamination of water and sediments in Ondo Estuary, Nigeria[J]. Chemistry and Ecology, 2008, 24(4): 269−283.

[17] Liu Li, Zhou Jianzhong, An Xueli, et al. Using fuzzy theory and information entropy for water quality assessment in Three Gorges region, China[J]. Expert Systems with Applications, 2010, 37(3): 2517−2521.

[18] Shen Guoqing, Lu Yitong, Wang Meinong, et al. Status and fuzzy comprehensive assessment of combined heavy metal and organo-chlor-

ine pesticide pollution in the Taihu Lake region of China[J]. Journal of Environmental Management, 2005, 76(4): 355−362.
［19］ Wang Haiyan. Assessment and prediction of overall environmental quality of Zhuzhou City, Hunan Province, China[J]. Journal of Environmental Management, 2002, 66(3): 329−340.

Historical evolutions of metal contamination in the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area: A risk assessment based on the fuzzy comprehensive assessment in the Daya Bay

Qu Baoxiao [1,2,3,4], Song Jinming [1,2,3,4], Yuan Huamao [1,2,3,4]

(1. *Key Laboratory of Marine Ecology and Environmental Sciences*, *Institute of Oceanology*, *Chinese Academy of Sciences*, *Qingdao* 266071, *China*; 2. *Marine Ecology and Environmental Sciences Laboratory*, *Pilot National Laboratory for Marine Science and Technology (Qingdao)*, *Qingdao* 266237, *China*; 3. *University of Chinese Academy of Sciences*, *Beijing* 100049, *China*; 4. *Center for Ocean Mega-Science*, *Chinese Academy of Sciences*, *Qingdao* 266071, *China*)

Abstract: The metal contents in the core sediments collected from the Daya Bay, a typical marine environment in the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area were measured in this study. National standard for marine sediment quality and fuzzy comprehensive assessment were applied to evaluate the historical evolution of the sediment quality in the past one hundred years. Our results indicate that the metal contamination in the bay experienced three major stages: (1) Before 1980s, the concentrations of most metals were low and the sediment quality fell into the category of class I. Accordingly, the metal risk was low in this period. Cr contributed most and Cd contributed least to the risk, respectively. (2) Between 1980 and 2000, the metal contents were significantly higher than the background values, suggesting that there was a sharp increase of metal input. The category of sediment quality fell down to class II and class III. However, the sediments in the margin areas of the Daya Bay were only slightly affected and still belonged to class I quality. Cu acted as a major metal pollutant instead of Cr in this period. (3) After the year of 2000, the metal levels and the metal risk decreased sharply. The sediment quality recovered back to class I and Cr contributed most to the risk at the time.

Key words: Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area; Daya Bay; sediment; heavy metals; pollution; fuzzy comprehensive assessment