

DOI: 10.5846/stxb202008012003

康希睿, 张涵丹, 王小明, 陈光才. 北亚热带 3 种森林群落对大气湿沉降重金属的调控. 生态学报, 2021, 41(6): 2107-2117.

Kang X R, Zhang H D, Wang X M, Chen G C. Distribution of heavy metals in precipitation by three forest communities in northern subtropical region of China. Acta Ecologica Sinica, 2021, 41(6): 2107-2117.

北亚热带 3 种森林群落对大气湿沉降重金属的调控

康希睿, 张涵丹, 王小明, 陈光才*

中国林业科学研究院亚热带林业研究所, 杭州 311400

摘要: 森林群落截留消纳沉降重金属的能力影响着森林集水区溪水输出重金属的情况, 决定着小流域的水质安全。为评价北亚热带地区典型森林生态系统对大气降水中主要重金属离子的截留能力和分配特征, 以浙江庙山坞林场 3 种典型森林群落(毛竹林、杉木林、青冈阔叶林)和森林集水区-小溪为研究对象, 于 2018 年 7 月—2019 年 6 月监测了 12 次降水事件, 分析、比较和讨论了大气降水、林内穿透雨、树干茎流、枯透水、地表径流和集水区溪水中 7 种重金属(铅(Pb)、锌(Zn)、镉(Cd)、铜(Cu)、砷(As)、镍(Ni)和锰(Mn))的质量浓度和通量的动态变化。结果表明, 大气降水中 7 种重金属, Pb、Cd、As、Cu、Zn、Mn 和 Ni 的年均浓度分别为 0.974、0.124、0.512、3.42、36.7、8.48 和 1.94 $\mu\text{g/L}$, 3 种森林群落林冠层截留的干沉降重金属中 Zn 和 Mn 的比例最高, 林冠层降水对重金属 Mn 和 Zn 的淋溶量极高, 超过大气降水沉降量的 2.78 倍和 54.2 倍, 同时截留了降水中的 As 和 Ni; 枯落物层对 Mn、Cd 和 Zn 表现出截留作用, 对 Cu 和 Ni 有淋溶或释放的作用; 3 种森林群落的地表径流中 Pb、Mn、Cd 和 Zn 浓度明显降低, As 和 Ni 的浓度略高于枯透水, 但由于地表径流量非常小, 土壤表层对降水中重金属均表现出极强的截留作用。3 种森林群落对大气降水中的重金属均表现出极高的截留率, 森林群落之间没有显著差异, 其中青冈阔叶林的截留能力最强, 杉木林较弱。而地表径流及土壤渗透水等汇集到森林集水区后, 溪水中重金属 Mn、Ni、Cd 和 Zn 的浓度和通量均有大幅的增加, 仅对重金属 As 和 Cu 呈现截留的作用, 这可能与森林土壤重金属本底值偏高以及森林长期接收的重金属沉降在降水淋溶下从酸性土壤中大量溶出有关。

关键词: 毛竹林; 杉木林; 青冈阔叶林; 森林集水区; 重金属

Distribution of heavy metals in precipitation by three forest communities in northern subtropical region of China

KANG Xirui, ZHANG Handan, WANG Xiaoming, CHEN Guangcai*

Research Institute of Subtropical Forestry, Chinese Academy of Forestry, Hangzhou 311400, China

Abstract: The ability of forest communities to retain, absorb and intercept heavy metals from atmospheric deposition affects the output of heavy metals from streams in forest catchment areas, and determines the safety of local water. To explore the role of forest communities in the interception and purification of heavy metals in precipitation by typical forest types in northern subtropical in China, three forest ecosystem, *Phyllostachys edulis* plantation, *Cunninghamia lanceolata* plantation, and *Cyclobalanopsis glauca* broadleaf forest located in Miaoshanwu stand, Zhejiang Province, were selected and monitored from July, 2018 to June, 2019. Twelve precipitation events were sampled. The water samples of precipitation, throughfall, stemflow, litterfall, surface runoff, and river water in the forest catchment were measured. The water mass and dynamic changes of seven heavy metals (Pb, Zn, Cd, Cu, As, Ni, and Mn) mass concentrations and fluxes in water samples were analyzed. The results showed that the annual average concentrations of Pb, Cd, As, Cu, Zn, Mn, and Ni in precipitation

基金项目: 国家重点研发计划典型脆弱生态修复与保护研究专项项目(2017YFC050550403); 国家自然科学基金项目(41807151); 中国林科院基本科研业务费专项(CAFYBB2019GC001-4)

收稿日期: 2020-08-01; 修订日期: 2021-01-25

* 通讯作者 Corresponding author. E-mail: guangcaichen@sohu.com

were 0.974, 0.124, 0.512, 3.42, 36.7, 8.48 and 1.94 $\mu\text{g/L}$, respectively. The leaching amount of heavy metals Mn and Zn in the canopy of the three forest communities was extremely high, exceeding 2.78 times and 54.2 times the fluxes of atmospheric precipitation, while As and Ni in the precipitation were intercepted all forest communities. The analysis on heavy metals in dry deposition attached by leaves suggested that the Zn and Mn were the largest ones intercepted by leaves in forest canopies, reaching 0.692—8.02 mg/m^2 and 4.12—5.85 mg/m^2 , which might be the largest source of these two heavy metals in forest precipitation. The litter layer exhibited a trapped effect on Mn, Cd and Zn, and the surface layer exhibited a strong interception effect on heavy metals in precipitation. Among them, *Cyclobalanopsis glauca* broadleaf forest had the strongest interception capacity, and *Cunninghamia lanceolata* forest was weaker. The three forest communities showed huge capacity to intercept metals ions in precipitation according to the runoff analysis and appeared no significant difference among the forest communities. The Miaoshanwu forest catchment area had a large amount of leaching of Mn, Ni, Cd and Zn, and only had a trapping effect on the heavy metals As and Cu, which may be related to the higher background value of heavy metals in the soil and the higher amount of dissolved heavy metals from acidic soils in the dry deposition received by forest catchment areas.

Key Words: *Phyllostachys edulis*; *Cunninghamia lanceolata*; *Cyclobalanopsis glauca* broadleaf forest; forest catchment; heavy metals

近些年来,交通运输、燃煤锅炉、钢铁及有色金属冶炼和机械制造等产业排放到大气中的重金属颗粒物浓度飞速增长^[1-3]。大气沉降重金属成为江河^[4-5]、森林^[6-8]、农田土壤^[9-10]等地重金属输入的重要来源,沉降输入的重金属占到长江入海通量的13%—25%^[4-5],农田土壤重金属量的35%—85%^[10]。由于重金属具有不可降解性、高毒性以及持久性等特点^[11-12],具有生物富集和放大效应^[13],并可以通过食物链迁移进入动物和人的体内,威胁其健康。而当重金属离子进入水体,水中的溶解态重金属流动性更强^[14],可直接被生物吸收利用,危害更大。

森林生态系统通常被认为是大气污染物的最大收纳系统之一^[15],具有调节、稳定、净化水质的作用^[16],能够消纳沉降污染物。而研究表明,在不同地区森林生态系统对于重金属的截留能力差异较大^[6-8, 17-19],长三角地区是重金属沉降污染较为严重的地区^[4-5, 20-21],其沉降量曾高于北美和欧洲^[21],森林群落截留消纳重金属的能力对于流域河流水质的影响尤为重要。

本研究在钱塘江流域下游的浙江省杭州市富阳区庙山坞试验林场展开,以北亚热带地区3种典型的森林群落,毛竹林(*Phyllostachys edulis*)、杉木林(*Cunninghamia lanceolata*)和青冈阔叶林(*Cyclobalanopsis glauca*)为研究对象,定位监测降雨过程中森林群落不同层次重金属的质量浓度和通量变化,分析重金属在不同森林群落各层次的分配和迁移规律;通过比较降雨(输入)与地表径流(输出)中的离子浓度和通量变化,揭示各森林群落对湿沉降中重金属离子的截留能力。

1 研究地区与研究方法

1.1 研究区概况

研究区位于浙江省杭州市富阳区庙山坞试验林场(119°56'E—120°02'E、30°03'N—30°06'N),属于国家林业和草原局钱江源森林生态系统定位观测研究站的一部分。该区域属北亚热带季风气候区,降水充沛。年平均降水量1441.9 mm,全年降水日数约160 d,雨量季节分配不均。年平均气温16.1℃,极端最高气温40.2℃,极端最低气温-14.4℃。年平均日照时数1995 h,年平均日照百分率44%。地质类型属志留系、泥盆系地质,森林土壤类型是酸性红壤土^[22],土层中石块较多。区内水系直接外流注入富春江,属钱塘江水系富春江段。林场内主要人工林有毛竹林、杉木林等,天然林有以青冈(重要值60%左右)、木荷(*Schima superba* Gardn. et Champ.)(重要值20%左右)为主的天然常绿、落叶阔叶次生林,各种针阔混交林等。

本研究选择毛竹人工林、杉木人工林和青冈栎为主的天然阔叶次生林(青冈阔叶林)等 3 种北亚热带典型森林群落作为研究对象,分别建立 2 个相邻的水平投影面积 10 m×20 m 的径流小区(共计 6 个样地),各样地基本特征见表 1,土壤重金属离子含量见表 2。

表 1 研究样地的基本特征
Table 1 The basic characteristics of sample plots

林分类型 Forest type	海拔 Altitude/m	坡度 Slope/(°)	坡向 Aspect	林分密度 Stand density/ (×10 ³ 株/hm ²)	树木高度 Tree height/m	胸径 Diameter at breast height /cm	郁闭度 Canopy density
毛竹林 <i>P. edulis</i>	158	19.0	阳坡	5.15	13.4±2.2	10.4±1.5	0.963
		20.0	Sunny	5.05	11.6±2.0	10.1±1.7	
杉木林 <i>C. lanceolata</i>	222	27.0	阳坡	0.800	9.26±2.49	14.8±5.6	0.702
		30.0	Sunny	0.650	12.5±3.2	22.4±12.3	
青冈阔叶林 <i>C. glauca</i>	130	28.0	阳坡	0.950	7.84±3.97	13.7±6.1	0.881
		27.0	Sunny	1.25	8.28±3.59	14.7±9.1	

表 2 研究样地表层土壤的理化性质
Table 2 The physicochemical properties of the surface soil of the sample plots

森林类型 Forest type	土壤 pH Soil pH	土壤容重 Bulk density /(g/cm ³)	土壤含水率 Moisture content of soil /%	有机碳 Organic C/ (g/kg)	Cd/ (mg/kg)	Mn/ (mg/kg)	Ni/ (mg/kg)	Pb/ (mg/kg)	Cu/ (mg/kg)	Zn/ (mg/kg)	As/ (mg/kg)
毛竹林 <i>P. edulis</i>	4.75±0.09	1.26±0.05	13.8±1.4	24.4±2.0	0.260±0.025	495±41	23.8±0.9	33.3±2.0	20.9±3.1	89.3±5.9	7.32±1.63
杉木林 <i>C. lanceolata</i>	4.20±0.19	1.29±0.09	12.7±1.0	31.9±19.1	0.204±0.032	355±137	20.0±1.6	40.6±13.8	15.9±3.0	71.8±7.7	6.33±1.38
青冈阔叶林 <i>C. glauca</i>	4.11±0.14	1.40±0.03	9.43±0.77	57.5±5.7	0.335±0.022	893±222	38.5±0.3	55.5±1.4	31.4±1.2	155±2	9.48±0.38

1.2 监测设施布设与样品收集

大气降水:在研究区的林外空旷处布设 1 台 QY-DGHYL 雨量计(中国,上海精密)记录降水过程,并在周边布设 1 台 ISC-10 型降水降尘自动采样器(中国,青岛埃仑)和 3 个 5L 玻璃烧杯用于收集大气降水。

穿透雨:在 3 种森林群落样地内随机布置 3 个面积为 0.5 m×0.4 m 的集水槽,为避免灌木和草本对穿透雨的收集产生影响,集水槽距离地面 40 cm,与水平面保持约 5°的倾角,集水槽较低的一端底部开直径 1.5cm 小口,用 PVC 塑料管连接至 25 L 带盖塑料桶中,用于收集林内穿透雨,3 个集水槽收集的降水样品的检测结果平均值为群落内穿透雨的信息。同时,在集水槽附近布置 1 台 QY-DGHYL 雨量计用于记录穿透雨的雨量、雨强等信息,定期将雨量计数据拷回。穿透雨量由 3 个塑料桶收集到的水量(单位 L)与集水槽的敞口面积(单位 m²)换算得到穿透雨量和自记式雨量计记录的降水量取平均值作为群落内穿透雨量。为避免凋落物等被雨水浸泡污染穿透降水样品,每次降雨前都将集水槽内的凋落物等物质倾倒清理干净。

树干茎流:在 3 种森林群落样地内,通过每木检尺,选择 3 株标准木,将直径约 2.0 cm 的聚乙烯塑料软管沿中缝剖开,从树干 1.5 m 高处自上向下蛇形缠绕一周半后引流至 50 L 带盖塑料桶中,用于收集树干茎流,聚乙烯塑料软管与水平面夹角呈 30°,先用大头钉将塑料管固定在树干上,使用玻璃胶密封树干与塑料管间的空隙。单株和林分的树干茎流量依据林冠投影面积进行换算,树干茎流的数据为 3 个树干茎流数据的平均值。

枯透水:在 3 种森林群落样地内随机选择 3 个样点,将 0.2 m×0.2 m 的地表枯落物按照原状整体移放在纱布滤网上,放置在直径 24.0 cm 的聚乙烯桶上,每次降雨后记录聚乙烯桶内的水量并取样用于测定枯透水元素浓度。枯透水量由聚乙烯桶内的降水体积(单位 L)和聚乙烯桶的敞口面积(单位 m²)换算得到,枯透水

数据是 3 份枯透水数据的平均值。

地表径流:在每种森林群落中,利用建成的 2 个 10m×20m 径流小区收集地表径流,在每个径流小区下端建立 1 m×1 m×1 m 的集水池收集保存水样用于化学分析,地表径流量按照径流小区投影面积换算,地表径流量和浓度为 2 个地表径流数据的均值。

溪水:在距离杉木林样地约 100 m 外的天然次生林集水区测流堰出口处收集溪水样品,用于化学分析,由于测流堰的流量计故障,并未收集到全年的溪水流量。溪水年均浓度为所有收集样品的浓度均值。

研究期为 2018 年 7 月—2019 年 6 月,于雨后采集水样:大气降水样品混匀后收集 3 份,溪水,各样地的穿透雨、树干茎流、枯透水和地表径流分别采样,每个收集器内采集 300 mL 降水样品,记录体积后立即带回实验室,将用于测定重金属浓度的水样加入浓硫酸,调至 pH 小于 2,尽快进行水质分析。研究期内每月收集一次大于 30 mm 的降水(10 月除外),共测定 12 次降水事件。

林冠层干沉降中水溶性重金属收集:在 2018 年 8 月、12 月和 2019 年 4 月的三次降雨前,利用高枝剪收集 3 种森林群落的叶片,带回实验室,将当天采回的叶片浸泡于蒸馏水中 2 h,充分浸洗,洗下叶片附着沉降物然后用镊子夹出叶片并用蒸馏水进行冲洗,将冲洗液定容至 500 mL 后,利用微孔滤膜($\Phi = 0.45\mu\text{m}$)抽滤,收集滤液与降水样品进行相同的测定,然后测定叶片面积,换算单位叶面积上重金属离子的质量。

1.3 水样分析

采集的水样用中速定性滤纸抽滤后,在 4℃ 环境下保存,进行水质化学分析:利用 FE28 型 pH 计(METTLER TOLEDO, Switzerland)测定水样 pH 值,依照标准《HJ 700—2014 水质 65 种元素的测定 电感耦合等离子体质谱法》,利用电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS, Perkin Elmer Nixon 300D, USA)测定样品中 Cu、Pb、Cd、Zn、Mn、Ni 和 As 的浓度。

1.4 数据处理

水样(溪水除外)中各化学指标的年均浓度(C , $\mu\text{g/L}$)是每月单次降雨后测定的相应水量(P_i , mm)的

$$\text{加权计算值: } C = \sum_{i=1}^n C_i \times P_i / \sum_{i=1}^n P_i$$

式中, C_i 为单场降雨后测定的各物质的浓度($\mu\text{g/L}$), n 为测定的降雨次数^[23]。

溪水因未同步监测其流量,溪水中各化学指标的年均浓度是每月单次降雨后测定浓度的算术平均值。溪水的流量根据庙山坞集水区月径流量(Y , mm)与月降水量(X , mm)公式估算得到^[24], 公式为:

$$Y = 0.0053X^2 - 0.16789X + 61.3 \quad (R^2 = 0.8111, P < 0.01)$$

根据冠层水量平衡,计算林冠截留量:

$$\text{林冠截留量} = \text{大气降水量} - \text{穿透雨量} - \text{树干茎流量}$$

由于青冈阔叶林中树干茎流的收集桶(50 L)内水样多次装满/溢出,无法准确计算收集量,因此假设每株青冈收集到的树干茎流总量均为最大值 50 L,而 3 株青冈标准木的平均林冠投影面积为 7.4 m²,则青冈阔叶林平均树干茎流量按照 7.4 m²林冠面积截留降水 50 L 换算得到 $P_i = 3.65\text{mm}$ 。

随着降雨过程通过森林群落各个层次(林冠层、枯落物层和土壤表层)以及溪水中的重金属物质通量(F , g/hm²)计算公式如下:

$$F = \sum_{i=1}^n C_i \times P_i / 100$$

大气降水在通过森林不同层次时不仅水量发生变化,也会因吸附、洗脱、交换等作用导致降水中的物质通量发生变化,各层次对降水中各物质的截留量和截留率计算公式如下:

$$\Delta F = F_i - F_j$$

$$\text{截留率} = \frac{\Delta F}{F_i}$$

式中, i 是 j 的上一层次降水, ΔF 截留量是 F_j 层次对相邻上层输入通量的影响。

浓度、通量等数据均保留 3 位有效数字,数据分析由 Microsoft Excel 2016 完成,使用 Origin 9 制图。

2 结果与分析

2.1 大气降水与溪水中重金属浓度差异比较

由表 3 可知,在研究期内,大气降水中 7 种重金属,Pb、Cd、As、Cu、Zn、Mn 和 Ni 的年均浓度分别为 0.974、0.124、0.512、3.42、36.7、8.48 和 1.94 $\mu\text{g/L}$,对照《GB 3838—2002 地表水环境质量标准》,全部达到地表水 I 类水标准。各离子浓度的最高值均出现在春秋季节,夏季和冬季则普遍较低(图 1,2)。与研究区降雨量的季节变化情况正好相符,由图 3 可知,夏季和冬季降雨量均较大,受季风和台风等影响,夏季单日降雨强度大,冬季较大强度降水持续时间略长,对降水中重金属的稀释效应明显。

集水区溪水中仅有 4 种重金属达到 I 类水标准,分别为 Pb(1.14 $\mu\text{g/L}$)、Cd(0.421 $\mu\text{g/L}$)、Cu(2.39 $\mu\text{g/L}$)和 As(0.183 $\mu\text{g/L}$);Zn 达到 II 类水标准,浓度为 104 $\mu\text{g/L}$;Ni 的浓度为 10.2 $\mu\text{g/L}$,在集中式生活饮用水地表水源地标准限值内;而溪水中 Mn 的浓度为 175 $\mu\text{g/L}$,超过了生活饮用水地表水源地标准限值。

表 3 3 种森林群落不同层次降水中 7 种金属离子的年均浓度

Table 3 Average indicators of seven metals concentrations in rainwater at different levels of three forest communities

林分类型 Forest type	水文分量 Water components	水量 Precipitation/ mm	pH	Pb/ ($\mu\text{g/L}$)	Mn/ ($\mu\text{g/L}$)	Cd/ ($\mu\text{g/L}$)	As/ ($\mu\text{g/L}$)	Cu/ ($\mu\text{g/L}$)	Ni/ ($\mu\text{g/L}$)	Zn/ (mg/L)
毛竹林 <i>P. edulis</i>	大气降水	80.6	5.97	0.974	8.48	0.124	0.512	3.42	1.94	0.0367
	穿透雨	53.3	6.54	0.554	46.8	0.204	0.566	4.22	1.32	3.06
	树干茎流	1.60	5.15	1.00	57.5	0.192	0.667	4.41	1.20	0.0609
	枯透水	54.7	6.44	2.10	11.4	0.0788	0.566	6.40	1.70	0.142
杉木林 <i>C. lanceolata</i>	地表径流	0.368	8.24	0.560	4.14	0.0796	2.09	5.99	2.03	0.0248
	穿透雨	60.7	6.59	1.72	73.3	0.132	0.547	4.78	1.01	2.80
	树干茎流	3.08	3.70	5.88	151	0.341	1.40	13.5	5.42	0.104
	枯透水	64.2	6.36	1.72	39.1	0.0836	0.842	6.75	1.32	0.191
青冈阔叶林 <i>C. glauca</i>	地表径流	0.370	8.37	0.839	9.18	0.0465	2.63	12.2	2.26	0.0211
	穿透雨	51.7	6.62	1.68	152	0.139	0.500	5.28	1.76	3.30
	树干茎流	3.65	5.79	2.33	151	0.172	0.665	6.06	1.97	0.0499
	枯透水	54.7	6.08	1.86	87.6	0.117	0.539	9.36	2.50	0.221
溪水土	地表径流	0.125	8.15	0.332	25.0	0.0615	2.27	10.5	3.47	0.0570
	Stream water	90.1	4.86	1.14	175	0.421	0.183	2.39	10.2	0.104

对比溪水与湿沉降中重金属离子浓度(图 4),可知,溪水中 Pb、Cd、Mn、Ni 和 Zn 的浓度均高于大气降水中的浓度,其中 Mn 和 Ni 的浓度高达其在大气降水中的 20.6 倍和 5.26 倍(表 3),Cd、Zn 和 Pb 的浓度分别高于降水 2.40 倍、1.83 倍和 17.0%,而 As 和 Cu 则略低于大气降水。

利用各水文分量的降水量与其降水样品中重金属离子的浓度即可得到其通量的变化,总结出重金属在不同森林降水层次上的迁移变化规律。降水研究期内大气降水中 Pb、Cd 和 As 的通量分别 9.42、1.20 和 4.95 g/hm^2 ,而 Cu、Mn、Ni 和 Zn 的通量分别为 33.1、82.0、18.8、355 g/hm^2 (表 4)。

2.2 3 种森林群落对降水中重金属离子的调控过程

2.2.1 林冠层对重金属的调控过程

降雨穿过 3 种森林群落的冠层后,Cu、Cd、Zn 和 Mn 的浓度均有所提高,其中,Cu 和 Cd 的增幅较小,分别为 23.4%—54.4%和 6.45%—64.5%,达到 4.22—5.28 $\mu\text{g/L}$ 和 0.132—0.204 $\mu\text{g/L}$ (图 1,图 2),而 Mn 和 Zn 的增幅较大,高达 16.9 倍和 88.9 倍,其浓度最高达到 152 $\mu\text{g/L}$ 和 3.30 mg/L (图 2,表 3);而 Ni 则表现为降低趋

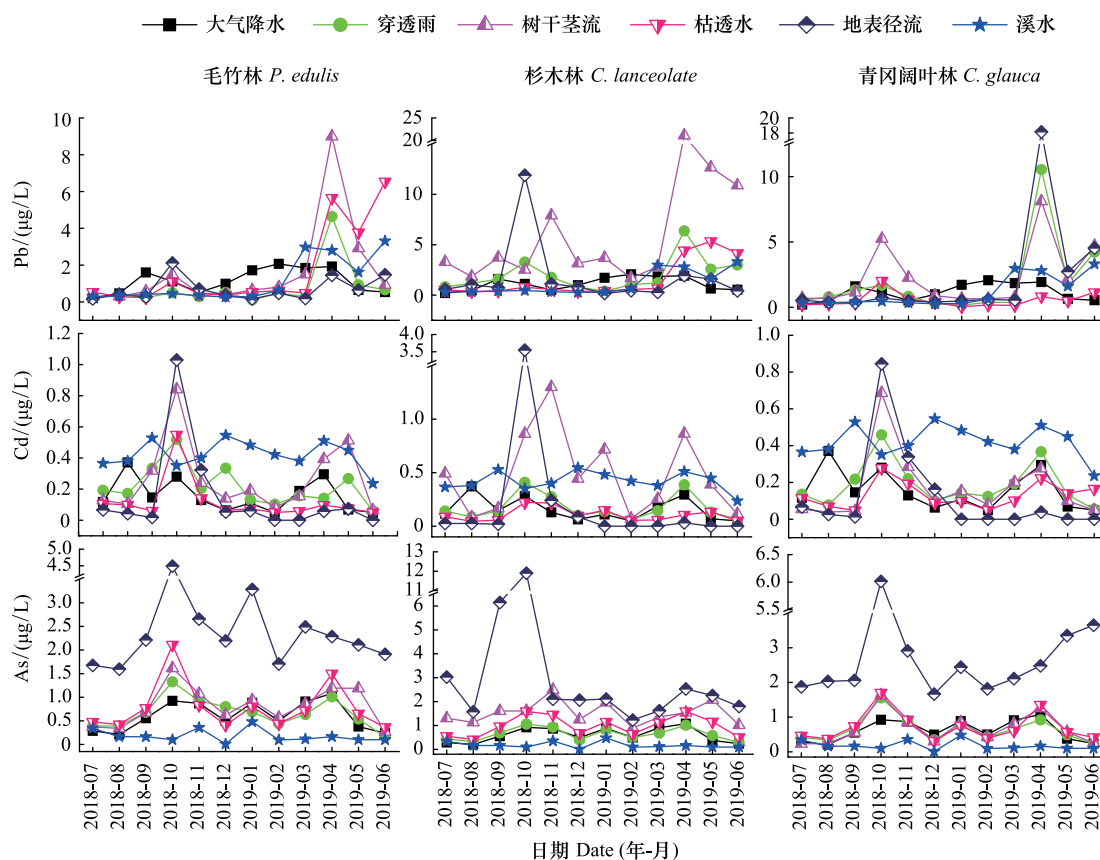


图1 3种森林群落降水中Pb、Cd、As质量浓度动态变化

Fig.1 Dynamic changes of rainwater Pb, Cd, and As concentrations at three forest communities

势,经林冠截留后降低了9.28%—47.9%,且与大气降水中的浓度变化规律一致(图2)。As经林冠截留后,浓度与降水中基本无差异。而Pb在3种森林群落中,呈现不同的变化趋势:毛竹林穿透雨中Pb的浓度降低了43.1%,杉木林和青冈阔叶林穿透雨中Pb则升高了76.6%和72.5%。

相较于大气降水,3种森林群落的树干茎流中Pb、Cd、As、Cu、Zn和Mn的浓度均有不同程度的增加(图1,2),其中Mn的增长幅度最大,超过大气降水中浓度的5.78—16.8倍,说明降水流经森林冠层和树干后不同程度地溶解了这些重金属,而在3种森林群落中,杉木林的树干茎流中7种重金属的浓度增幅最大,超过大气降水中浓度的1.75—16.8倍。

在整个观测期内,3种森林群落的冠层对As和Ni均表现出截留作用,截留率分别为9.09%—31.4%和37.2%—53.8%,对Mn和Zn均表现出强烈的淋溶作用。而毛竹林冠层对Cd具有淋溶作用(淋溶率为11.9%),对Pb和Cu具有截留作用;杉木林和青冈阔叶林冠层则相反。对比3种森林群落的冠层,毛竹林冠层对重金属的整体截留能力更强。

为寻找林冠层大量淋溶Mn和Zn的来源,分析区域沉降因素,结合森林冠层对大气干沉降颗粒的截留作用,设计冠层叶片淋洗实验,对3种森林林冠叶片截留干沉降中可溶性重金属的情况进行对比,结果见表5,研究发现森林群落冠层叶片截留干沉降中可溶性重金属离子中Mn和Zn的浓度最高,分别达到0.692—8.02 mg/m²和4.12—5.85 mg/m²,通过大气降水的淋溶可能会大量进入林内,这也是森林穿透降水中这两种重金属离子较高的重要原因(表3)。

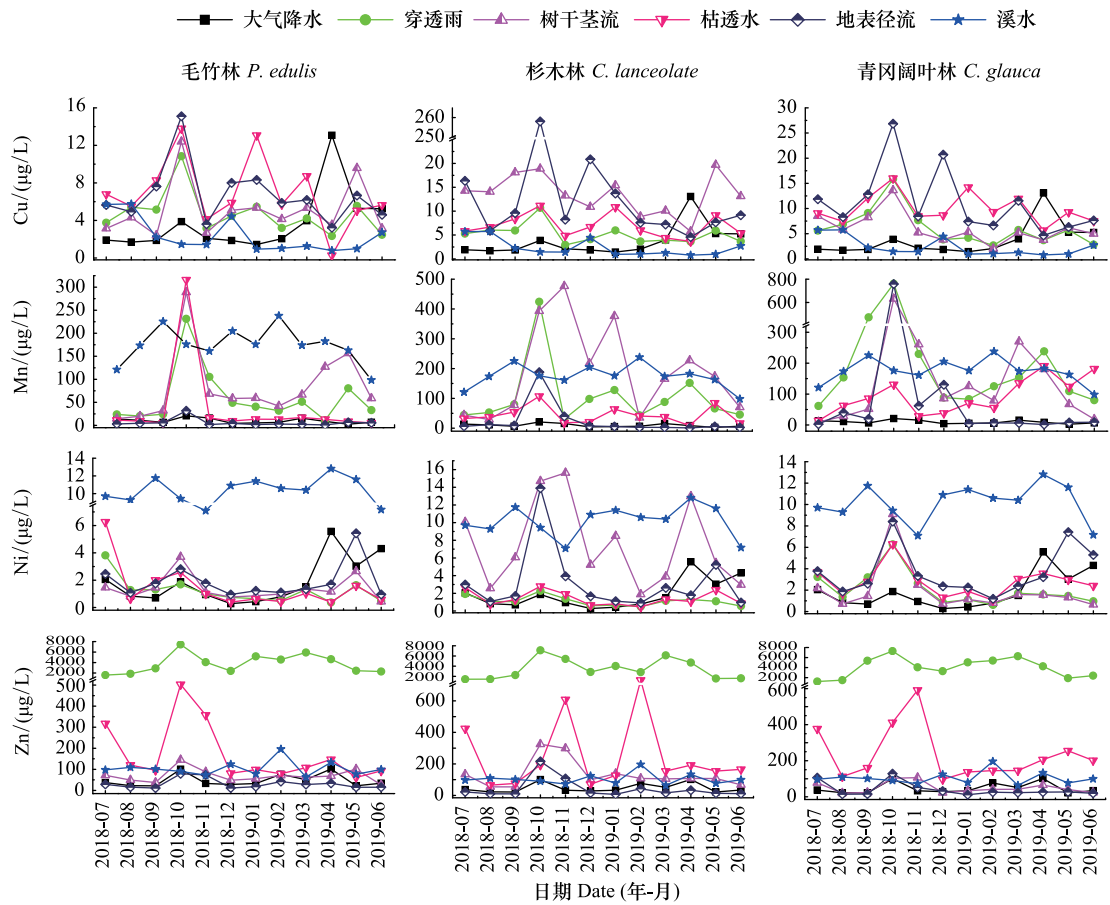


图 2 3 种森林群落降水中 Cu、Mn、Ni、Zn 质量浓度动态变化

Fig.2 Dynamic changes of rainwater Cu, Mn, Ni, and Zn concentrations at three forest communities

表 4 3 种森林群落对 7 种重金属离子的截留

Table 4 Interception of seven kind of heavy metals by canopies of three forest communities		Pb	Mn	Cd	As	Cu	Ni	Zn
林分类型 Forest type	森林降水层次 Levels of forest precipitation							
毛竹林 <i>P. edulis</i>	大气降水沉降量/(g/hm ²)	9.42	82.0	1.20	4.95	33.1	18.8	355
	林冠层							
	ΔF 截留量/(g/hm ²)	5.69	-228	-0.142	1.20	5.24	10.1	-1.92×10 ⁴
	截留率/%	60.4	-278	-11.9	24.3	15.8	53.8	-5.42×10 ³
	枯落物层							
	ΔF 截留量/(g/hm ²)	-10.0	236	0.823	0.0343	-14.2	-2.48	1.87×10 ⁴
	截留率/%	-269	75.9	61.4	0.916	-50.9	-28.6	95.2
杉木林 <i>C. lanceolata</i>	土壤表层							
	ΔF 截留量/(g/hm ²)	13.8	74.6	0.515	3.62	41.7	11.1	931
	截留率/%	99.8	99.8	99.3	97.5	99.4	99.2	99.9
	总截留率/%	99.7	99.8	99.7	98.1	99.2	99.5	99.7
	林冠层							
	ΔF 截留量/(g/hm ²)	-5.28	-508	0.112	0.450	-6.73	9.40	-2.01×10 ⁴
	截留率/%	-56.1	-619	9.32	9.09	-20.3	50.1	-5.66×10 ³
青冈阔叶林 <i>C. glauca</i>	枯落物层							
	ΔF 截留量/(g/hm ²)	1.45	289	0.440	-1.98	-12.2	-0.809	1.90×10 ⁴
	截留率/%	9.87	48.9	40.5	-44.1	-30.6	-8.65	92.8
	土壤表层							
	ΔF 截留量/(g/hm ²)	13.2	301	0.645	6.37	51.5	10.1	1.47×10 ³
	截留率/%	99.7	99.9	99.7	98.2	99.0	99.0	99.9
	总截留率/%	99.6	99.5	99.8	97.6	98.4	99.5	99.7

续表

林分类型 Forest type	森林降水层次 Levels of forest precipitation	Pb	Mn	Cd	As	Cu	Ni	Zn
土壤表层	截留率/%	-6.56	43.1	18.2	-4.14	-73.3	-39.1	92.9
	ΔF 截留量/(g/hm ²)	12.2	575	0.767	3.50	61.3	16.4	1.45×10^3
	截留率/%	100	99.9	99.9	99.0	99.7	99.7	99.9
	总截留率/%	100	99.5	99.9	99.3	99.5	99.7	99.8
	溪水输出量/(g/hm ²)	12.3	1.89×10^3	4.55	1.98	25.8	110	1.12×10^3

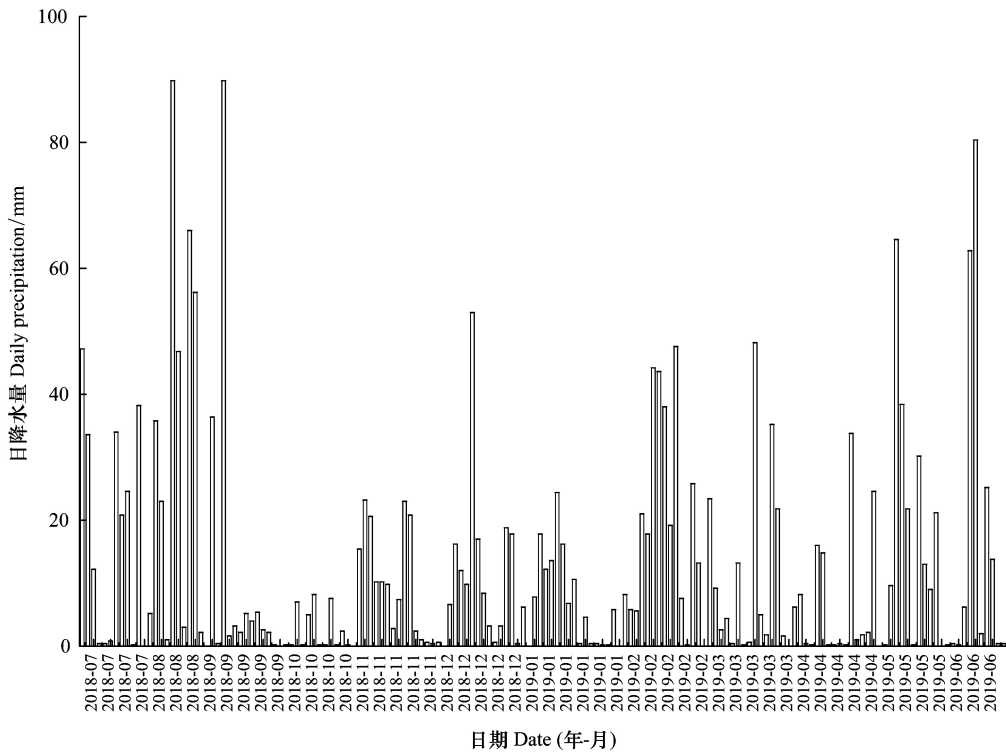


图3 庙山坞林区 2018 年 7 月至 2019 年 6 月大气日降水量动态

Fig.3 Dynamics of daily precipitation of Miaoshanwu from July 2018 to June 2019

2.2.2 枯落物层对重金属的调控过程

林内降水通过 3 种森林群落的枯落物层后,Pb、As、Cu 和 Ni 的浓度仍有小幅度升高(图 1,图 2),与穿透雨相比,增长幅度不超过 80%,而枯透水中 Mn 和 Cd 的浓度相较于穿透雨分别减少了 42.4%—75.6%和 15.8%—61.3%,枯透水中 Zn 浓度远低于穿透雨中的浓度,但是达到树干茎流的 1.84—4.43 倍,说明林内降水经枯落物层后,溶解了枯落物分解或附着的 Pb、As、Cu 和 Ni,截留了林内降水中的 Zn、Mn 和 Cd,而 3 种森林群落中枯透水中重金属浓度最高的青冈阔叶林,其次是杉木林,毛竹林枯透水中重金属浓度最低。

3 种森林群落枯落物层均对 Mn、Cd 和 Zn 表现出截留的状态,截留率在 43.1%—75.9%、18.2%—61.4%和 92.8%—95.2%,其中毛竹林枯落物层对这 3 种重金属的截留能力最强。而 3 种森林群落林内降水与枯透水中 Cu 和 Ni 的通量差均为负值(表 6),说明 3 种森林群落的枯落物层均对 Cu 和 Ni 有淋溶或释放的作用,淋溶率分别为 30.6%—73.3%和 8.65%—39.1%,而青冈阔叶林的枯落物层对这 2 种重金属的淋溶能力最强。杉木林的枯落物层对林内降水中的 Pb 有截留的作用,截留率达到 10.0%,而毛竹林和青冈阔叶林的枯落物层对 Pb 呈现淋溶状态,淋溶率分别为 269%和 6.56%。

2.2.3 土壤表层对重金属的截留情况

与枯透水相比,3 种森林群落的地表径流中 Pb、Mn 和 Zn 浓度明显降低(图 2),Cd 的浓度有小幅度降低,

而 Ni 和 As 呈升高趋势(图 1)。除毛竹林外,杉木林和青冈阔叶林的地表径流中 Cu 浓度均高于枯透水,达到 12.2 $\mu\text{g/L}$ 和 10.5 $\mu\text{g/L}$ 。

森林土壤表层对于枯落物层渗透的降水中各物质浓度有明显的改变,且在本研究中地表径流量仅占大气降水量的 0.155%—0.459%(表 3),因此地表径流中各物质通量较低,3 种群落的土壤表层对 7 种重金属离子均表现为截留作用,其中 Pb、Mn 和 Zn 的截留率最大,As 和 Cu 的截留率最小。其中青冈阔叶林的截留能力最强,杉木林较弱。溪水中 Mn、Ni、Cd、Pb 和 Zn 的浓度远高于 3 种森林群落地表径流中的浓度(图 1,2),而 Cu 和 As 的浓度远低于地表径流,说明森林降水在形成溪水的过程中溶解了更多的重金属 Cd、Mn、Ni 和 Zn,降水中的 Cu 和 As 被森林吸附固定。估算得到的溪水的重金属输出通量中,只有 As 和 Cu 的通量低于大气降水输入量,其他各个重金属离子在溪水中的通量均高于大气降水输入量。

3 讨论

3.1 大气沉降的重金属特征

庙山坞试验林场位于北亚热带季风区,由图 3 可以看出研究区夏季和冬季降雨量均较大,受季风和台风等影响,夏季单日降雨强度大,冬季较大强度降水持续时间略长,对降水中重金属的稀释效应明显,大气降水中重金属浓度较低。研究表明,Zn、Mn、Pb 和 Cu 是杭州市大气降尘中质量浓度占据前列的主要金属元素^[3]。本研究中,对庙山坞 3 种森林冠层叶片表面干沉降的淋洗液检测发现,Zn、Mn、Pb、Cu 的浓度均较高,且 Zn 和 Mn 的浓度甚至远超其他重金属浓度约 50 倍(表 5),表明该研究区具有较强的干沉降作用。汽车轮胎灰尘造成的交通源^[25]和建筑扬尘等都是重金属 As 和 Zn 沉降的重要来源^[2]。庙山坞试验林场紧邻滨江大道,交通运输活动频繁,林场外围的城市基础设施建设活动长期开展,地铁和楼房施工产生了大量的建筑扬尘,使空气颗粒物含量偏高,而附近工业园区距离林场不到 10 公里,机械制造和锅炉燃煤等工业生产活动的废气排放均使重金属大量沉降,这也是大气降水中重金属浓度较高的主要原因。研究表明,长三角地区重金属 Cd、Cu、Pb 和 Zn 的大气干沉降量略高于北美和欧洲^[21],通过干沉降进入生态系统的重金属量也较高。由表 3 可知大气降水中 Pb 和 Cd 的浓度为 0.974 和 0.124 $\mu\text{g/L}$,相较于重庆四面山和缙云山^[7-8]、秦岭火地塘林区^[17]大气降水中 Pb 和 Cd 的浓度均略低,而庙山坞降水中 Zn 和 Mn 的浓度也低于秦岭火地塘林区^[17]大气降水中的浓度,说明研究区降水中重金属离子的浓度相对偏低。

3.2 森林群落各层次对重金属的调控

3.2.1 森林冠层对重金属的调控

当降水穿过森林冠层时,通过冲刷冠层中干沉降沉积的颗粒^[26]或通过离子交换(吸收或浸出)来改变沉降物质的量^[27]。Tan 等^[28]在四川省理县毕棚沟高山森林的研究发现林冠层可以淋溶重金属 Mn,而截留 Zn、Cu、Cd 和 Pb;张楠等^[18]则发现次生落叶阔叶林林冠层可以截留降水中的 Cu。而本研究中庙山坞 3 种森林群落冠层则淋溶重金属 Mn 和 Cu。另外,相较于秦岭火地塘林区^[17]林内雨中 Cd、Pb、Mn 和 Zn 的浓度均低于降水中的浓度,庙山坞森林群落的穿透雨中 Cd、Mn 和 Zn 的浓度均远高于大气降水,杉木林和青冈阔叶林穿透雨中 Pb 浓度同样呈上升趋势。这些结果均表明,在本研究区内,森林冠层对部分重金属均表现出明显的淋溶作用,而这更多的可归因于区域内重金属较高的干沉降量。

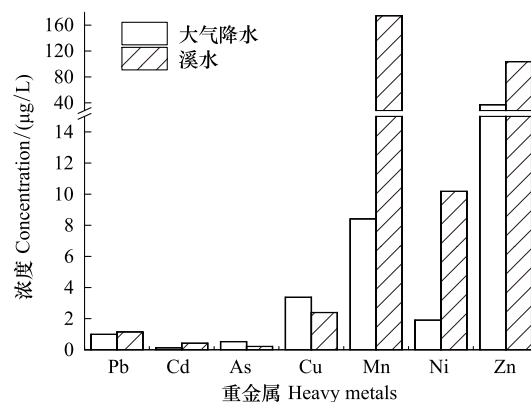


图 4 大气降水和溪水中重金属浓度差异比较

Fig.4 Comparison of the difference of heavy metals concentration between atmospheric precipitation and stream water

3.2.2 枯落物层对重金属的调控

枯落物层是降水通过林冠层后的另一个作用层,在本研究中3种森林群落枯落物层均对Mn、Cd和Zn表现出截留的状态,这与以往的研究结果较为一致^[17,19]。出现这一结果可能的原因是降雨淋洗林冠层大量截留的干沉降,导致输入枯落物层的林内降水中重金属通量较大,枯落物将其截留,枯透水中Mn、Cd和Zn的浓度与通量较穿透雨和林冠层均有不同程度的降低。而3种森林群落枯落物层对Cu则呈现较强的淋溶作用,该结果与何洁在四川高山森林中的研究结果相似^[29],这可能是因为在水热条件良好的北亚热带地区,凋落物产量丰富,不同分解时期的凋落物同时存在于森林中,促使枯落物层不断释放Cu而非富集,在降水浸洗作用下被大量淋溶。同时本研究中青冈阔叶林和毛竹林枯落物层重金属的淋溶率高于杉木林,这可能是由阔叶林的枯落物分解较快,而针叶林凋落物因表皮富含角质层分解较慢^[30]导致的。

3.2.3 土壤表层对重金属的截留净化作用

森林土壤是指长期在森林植被环境下发育形成的土壤类型,土层中有机物质累积丰富,腐殖化作用相对强烈,森林土壤层对于枯落物层渗透降水中各物质浓度有明显的改变^[31]。在本研究中,降水形成的森林群落地表径流量仅有大气降水量的0.155%—0.457%,更多的降水通过土壤层下渗,最后汇集于集水区溪流,而溪水中重金属Pb、Mn、Cd、Ni和Zn的浓度远高于地表径流,其原因可能是由于森林土壤层对于土壤重金属元素具有解吸作用^[32];此外,土壤层淋溶液中含有大量溶解性有机物(DOM)^[33],并且研究区土壤中重金属的本底值略高于其他地区^[7,34-38]。研究表明,DOM可与周围环境中的重金属通过络合、螯合作用,形成有机金属配合物^[35],提高重金属在土壤中的可溶性^[36-37],陈同斌等^[38]的研究证实土壤中DOM能增加Cd的溶解性。由表2可知,3种森林群落土壤是酸性土,有机碳的含量达到24.4—57.5 g/kg,与重庆四面山的土壤条件类似^[7],庙山坞森林土壤中重金属Pb、Cd、Ni、Zn的含量远高于四面山森林土壤^[7]和佛山城市森林^[34]土壤中重金属的含量,森林降水对其淋溶程度也更强。亦有研究表明,沉积物和凋落物是森林溪流生态系统中重金属Cd的重要来源之一^[39]。

3.3 森林生态系统对重金属的截留净化作用

森林生态系统通常被认为是可以有效减少大气污染物并改善空气质量的生态过滤器^[28],降水经过森林群落可以有效减少其中的污染,降低浓度、削减含量^[16]。相较于大气降水输入的重金属通量,庙山坞森林集水区对于Mn、Ni、Cd和Zn均有大量的淋溶,仅对重金属As和Cu呈现截留的作用,其中对As的截留率最高,对比分析庙山坞森林生态系统,可能与土壤中重金属的本底值较高以及森林长期接收的重金属沉降在降水淋溶下从酸性土壤中大量溶出有关。也有可能是通过土壤下渗部分的降水由于水量减少导致浓缩效应,使得溪水中重金属浓度较高,在下一步的研究中可着重探讨。

4 结论

庙山坞大气降水中重金属离子浓度较低,但干沉降带来的重金属污染较严重。3种森林群落大量淋溶冠层叶片截留的尘埃中的重金属Mn和Zn,致使穿透雨中其浓度远超过其他森林水文分量中的浓度,同时森林冠层截留了降水中的As和Ni;枯透水中Mn、Cd和Zn的浓度远低于穿透雨,枯落物层对其表现出较强的截留状态,而对于Cu和Ni有淋溶或释放的作用;虽然3种森林群落的地表径流中Pb、Mn、Cd和Zn浓度明显降低,As和Ni的浓度略高于枯透水,但由于地表径流量非常小,土壤表层对降水中重金属均表现出极强的截留作用。3种森林群落对大气降水中的重金属均表现出极高的截留率,森林群落之间没有表现出显著差异。地表径流及土壤渗透水等汇集到森林集水区后,溪水中重金属Mn、Ni、Cd和Zn的浓度和通量均有大幅的增加,这可能与森林土壤重金属本底值偏高以及干沉降中重金属含量偏高有关,可以在未来的研究中增加对于干沉降和土壤渗透水的长期追踪监测来追溯集水区溪流中的重金属来源,以探明森林集水区出水中重金属的来源,使其达到生活饮用水地表水源地标准限值,降低其健康风险,保障饮用水安全。

参考文献 (References):

- [1] Ye L M, Huang M J, Zhong B Q, Wang X M, Tu Q L, Sun H R, Wang C, Wu L L, Chang M. Wet and dry deposition fluxes of heavy metals in Pearl River Delta Region (China): characteristics, ecological risk assessment, and source apportionment. *Journal of Environmental Sciences*, 2018, 70: 106-123.
- [2] 刘凤玲, 卢霞, 吴梦龙, 刘杰, 任玉锐, 郭照冰. 南京大气细粒子中重金属污染特征及来源解析. *环境工程学报*, 2014, 8(2): 652-658.
- [3] 焦荔, 沈建东, 姚琳, 杨乐. 杭州市大气降尘重金属污染特征及来源研究. *环境污染与防治*, 2013, 35(1): 73-76, 80-80.
- [4] 秦晓光, 程祥圣, 刘富平. 东海海洋大气颗粒物中重金属的来源及入海通量. *环境科学*, 2011, 32(8): 2193-2196.
- [5] 战雯静, 张艳, 马蔚纯, 卢士强, 陈立民. 长江口大气重金属污染特征及沉降通量. *中国环境科学*, 2012, 32(5): 900-905.
- [6] 罗遥. 我国南方典型森林生态系统汞的输入输出与迁移[D]. 北京: 清华大学, 2015: 35-40.
- [7] 孙涛, 马明, 王定勇. 中亚热带典型森林生态系统对降水中铅镉的截留特征. *生态学报*, 2016, 36(1): 218-225.
- [8] 张淑芬, 马明. 中亚热带典型林分不同层次降水的水质变化特征. *中国农学通报*, 2017, 33(22): 47-52.
- [9] Nicholson F A, Smith S R, Alloway B J, Carlton-Smith C, Chambers B J. An inventory of heavy metals inputs to agricultural soils in England and Wales. *Science of the Total Environment*, 2003, 311(1/3): 205-219.
- [10] Luo L, Ma Y B, Zhang S Z, Wei D P, Zhu Y G. An inventory of trace element inputs to agricultural soils in China. *Journal of Environmental Management*, 2009, 90(8): 2524-2530.
- [11] Lu H W, Yu S. Spatio-temporal variational characteristics analysis of heavy metals pollution in water of the typical northern rivers, China. *Journal of Hydrology*, 2018, 559: 787-793.
- [12] Duodu G O, Goonetilleke A, Ayoko G A. Comparison of pollution indices for the assessment of heavy metal in Brisbane River sediment. *Environmental Pollution*, 2016, 219: 1077-1091.
- [13] Singh U K, Kumar B. Pathways of heavy metals contamination and associated human health risk in Ajay River basin, India. *Chemosphere*, 2017, 174: 183-199.
- [14] 吴蕾, 刘桂建, 周春财, 刘荣琼. 巢湖水体可溶态重金属时空分布及污染评价. *环境科学*, 2018, 39(2): 738-747.
- [15] 孙涛. 四面山森林生态系统不同层次对大气降水中几种离子的截留特征[D]. 重庆: 西南大学, 2015: 7-7, 9-9.
- [16] 张胜利, 李光录. 秦岭火地塘森林生态系统不同层次的水质效应. *生态学报*, 2007, 27(5): 1838-1844.
- [17] 张胜利. 秦岭火地塘林区森林生态系统对降水中重金属的作用. *林业科学*, 2009, 45(11): 55-62.
- [18] 张楠, 范春楠, 陈思羽, 郑金萍, 郭忠玲. 次生落叶阔叶林降雨过程中的 4 种金属元素特征. *南京林业大学学报: 自然科学版*, 2019, 43(4): 178-184.
- [19] 杜敏, 文仕知, 杨丽丽, 王彦辉, 熊伟, 曹恭祥. 六盘山华北落叶松林降水转化中的阳离子通量变化特征. *林业科学研究*, 2013, 26(2): 133-139.
- [20] 顾爱军, 陈静峰. 杭州地区大气气溶胶中重金属含量特征研究. *环境科学与管理*, 2010, 35(3): 46-49, 57.
- [21] Huang S S, Tu J, Liu H Y, Hua M, Liao Q L, Feng J S, Weng Z H, Huang G M. Multivariate analysis of trace element concentrations in atmospheric deposition in the Yangtze River Delta, East China. *Atmospheric Environment*, 2009, 43(36): 5781-5790.
- [22] 孔维健. 庙山坞自然保护区典型森林类型水文生态效应研究[D]. 北京: 中国林业科学研究院, 2010.
- [23] 杨丽丽, 邢元军, 王彦辉, 文仕知, 李振华. 宁夏六盘山 4 种典型森林伴随降水的无机氮通量变化特征. *生态学报*, 2019, 39(8): 2851-2861.
- [24] 周本智, 王小明, 曹永慧, 李正才, 邵文豪, 葛晓改. 北亚热带典型森林生态系统研究——以浙江庙山坞自然保护区为例. 北京: 中国林业出版社, 2013: 156-156.
- [25] Thakur M, Deb M K, Imai S, Suzuki Y, Ueki K, Hasegawa A. Load of heavy metals in the airborne dust particulates of an urban city of central India. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2004, 95(1/3): 257-268.
- [26] 张娜, 乔玉娜, 刘兴诺, 褚国伟, 张德强, 闫俊华. 鼎湖山季风常绿阔叶林大气降雨、穿透雨和树干流的养分特征. *热带亚热带植物学报*, 2010, 18(5): 502-510.
- [27] González-Arias A, Amezcaga I, Echeandía A, Onaindia M. Buffering capacity through cation leaching of *Pinus radiata* D. Don canopy. *Plant Ecology*, 2000, 149(1): 23-42.
- [28] Tan S Y, Zhao H R, Yang W Q, Tan B, Yue K, Zhang Y, Wu F Z, Ni X Y. Forest canopy can efficiently filter trace metals in deposited precipitation in a Subalpine Spruce Plantation. *Forests*, 2019, 10: 318.
- [29] 何洁. 高山森林林窗位置对凋落物分解过程中元素释放的影响[D]. 雅安: 四川农业大学, 2015.
- [30] 刘霞, 周涛, 吴昊, 徐培培, 罗惠, 曹乐瑶. 中国森林凋落物分解速率的空间格局及主控因子: 基于最优线性混合模型. *北京师范大学学报: 自然科学版*, 2018, 54(4): 553-560.
- [31] 徐冯迪, 高扬, 董文渊, 郝卓, 徐亚娟. 我国南方红壤区氮磷湿沉降对森林流域氮磷输出及水质的影响. *生态学报*, 2016, 36(20): 6409-6419.
- [32] McBride M B, Richards B K, Steenhuis T, Russo J J, Sauvé S. Mobility and solubility of toxic metals and nutrients in soil fifteen years after sludge application. *Soil Science*, 1997, 162(7): 487-500.
- [33] 王良梅, 周立祥. 陆地生态系统中水溶性有机物动态及其环境学意义. *应用生态学报*, 2003, 14(11): 2019-2025.
- [34] 朱立安, 曾清苹, 柳勇, 柯欢, 程炯, 张会化, 李俊杰. 佛山城市典型森林群落土壤重金属分布、流通及枯落物富集特征. *生态学报*, 2020, 40(13): 4659-4669.
- [35] 闻丽. 白洋淀植物腐解 DOM 特性及其与重金属相互作用的研究[D]. 北京: 北京化工大学, 2014.
- [36] 李廷强, 杨肖娥. 土壤中水溶性有机质及其对重金属化学与生物行为的影响. *应用生态学报*, 2004, 15(6): 1083-1087.
- [37] 于波. 基于水生植物分区的湖泊 DOM 与重金属离子的结合特性研究[D]. 呼和浩特: 内蒙古大学, 2015.
- [38] 陈同斌, 陈志军. 水溶性有机质对土壤中镉吸附行为的影响. *应用生态学报*, 2002, 13(2): 183-186.
- [39] 蒋雨芮, 周蛟, 李晗, 谭波, 曹瑞, 袁吉, 杨万勤. 亚高山森林溪流镉储量与分配的动态变化特征. *生态学报*, 2020, 40(13): 4436-4444.