

石文静,刘轶哲,徐浩然,等.乌梁素海铁还原微生物对砷-磷迁移转化的影响 [J]. 中国环境科学, 2025,45(3):1612-1622.

Shi W J, Liu Y Z, Xu H R, et al. Effect of Wuliangsuhai iron-reducing microorganisms on the migration and transformation of As-P [J]. China Environmental Science, 2025,45(3):1612-1622.

乌梁素海铁还原微生物对砷-磷迁移转化的影响

石文静,刘轶哲,徐浩然,李卫平* (内蒙古科技大学能源与环境学院,黄河流域内蒙古段生态保护与综合利用自治区协同创新中心,内蒙古 包头 014010)

摘要: 以乌梁素海为研究对象,揭示湖泊沉积物微生物群落结构,阐明代表性铁还原微生物及其丰度,探究铁还原微生物驱动下 Fe 还原过程对 As-P 迁移转化影响的季节性差异以及 P 对 As 迁移转化的影响,旨在为深化寒旱区湖泊 As 的环境地球化学行为和 As 污染修复提供依据,为 As 污染和富营养化双重风险湖泊的水环境保护提供参考.结果表明,乌梁素海冰封期的铁还原微生物相对丰度较夏季更高.代表性铁还原微生物存在季节性差异,芽孢杆菌属和地杆菌属在冰封期和夏季均为铁还原微生物的优势菌属,但地杆菌属也是夏季代表性铁还原微生物之一,而希瓦氏菌属则是冰封期代表性铁还原微生物之一.相关性分析和 PLS-SEM 模型结果表明在 As-P 迁移转化中起主要驱动作用的代表性铁还原微生物和其对 As-p 迁移转化的影响均存在明显的季节性差异.夏季热厌氧菌属虽丰度较小,但其驱动的铁还原过程(路径系数 0.178)一定程度影响了沉积物中 As 和 P 向水中的释放,芽孢杆菌属也可促使 Fe 还原(路径系数 0.115)驱动 As-P 的迁移转化.而冰封期时,丰度较高的地杆菌属则是导致 As 迁移的重要驱动者(路径系数 0.530),其对 As-P 的迁移转化有重要影响,热厌氧菌属对 Fe 的还原作用(路径系数 0.284)以及对 As-P 迁移转化的影响较夏季更(路径系数 0.178).

关键词: 乌梁素海; 冰封期; 砷; 铁还原微生物; 迁移转化

中图分类号: X172 文献标识码: A 文章编号: 1000-6923(2025)03-1612-11

Effect of Wuliangsuhai iron-reducing microorganisms on the migration and transformation of As-P. SHI Wen-jing, LIU Yi-zhe, XU Hao-ran, LI Wei-ping* (Collaborative Innovation Center for Ecological Protection and Comprehensive Utilization of the Inner Mongolia Section of the Yellow River Basin, School of Energy and Environment, Inner Mongolia University of Science & Technology, Baotou 014010, China). *China Environmental Science*, 2025,45(3): 1612~1622

Abstract: This study taken Wuliangsuhai Lake as the research object to reveal the microbial community structure of lake sediments, elucidated the representative iron-reducing microorganisms and their abundance, investigated the seasonal differences in the impact of iron-reducing microorganisms on As-P migration and transformation during the ice-bound period and the summer, and the impact of P on As migration and transformation, with the aim of providing a basis for deepening the understanding of the environmental geochemical behavior of As in cold and arid regions and As pollution remediation, and providing reference for the water environmental protection of As pollution and eutrophication risks in dual-risk lakes. The results showed that the relative abundance of iron-reducing microorganisms during the ice-bound period was higher than that in summer. There were seasonal differences in the representative iron-reducing microorganisms. *Bacillus* and *Geobacter* were the dominant genera of iron-reducing microorganisms during the ice-bound period and summer, but *Geothrix* was also one of the representative iron-reducing microorganisms in summer, and *Shewanella* was one of the representative iron-reducing microorganisms during the ice-bound period. The correlation analysis and PLS-SEM model results showed that the representative iron-reducing microorganisms that play a major driving role in As-P migration and transformation and their impact on As-P migration and transformation exist significant seasonal differences. In summer, although the abundance of *Thermoanaerobium* was small, the iron-reduction process driven by *Thermoanaerobium* (path coefficient=0.178) would affect the release of As and P from sediments to water to a certain extent. In addition, *Bacillus* could also promote the iron-reduction process (Path coefficient=0.115) and was the main driver of As-P mobility and transformation. During the ice-bound period, the more abundant *Geobacter* was an important driver (path coefficient=0.530) of As mobility, which had an important effect on the mobility and transformation of As-P, and the effect of *Thermoanaerobium* on iron reduction (Path coefficient=0.284) and As-P mobility and transformation was greater than in summer (path coefficient=0.178).

Key words: Wuliangsuhai; ice-bound period; arsenic; iron-reducing microorganisms; mobility and transformation

收稿日期: 2024-08-30

基金项目: 内蒙古自治区自然科学基金资助项目(2022QN03009);内蒙古自治区直属高校基本科研业务费项目(2022063);内蒙古科技大学科研启动专项项目;内蒙古自治区事业单位引进高层次人才科研支持项目(2021)

* 责任作者, 教授, sjlwp@163.com

砷(As)被认为是最强的无机致癌物质,全球估计有 9400 万~2.2 亿人的健康受到 As 的威胁^[1]。As 的迁移转化由生物化学等多种作用共同调控^[2-4],其中铁还原微生物驱动的铁(Fe)还原过程是 As 迁移转化的重要因素^[5]。有研究表明,江汉平原含水层和沉积物的铁还原微生物是导致 As 释放的主要驱动者^[6]。有研究将可以吸附 As(V)的水合铁氧化物混合含 As 沉积物后加入铁还原微生物,Fe 被还原的同时一定量的 As(III)也释放到了液相中^[7]。此外,研究证实水环境中 Fe 还原过程也会导致吸附态磷(P)的释放^[8],同时,由于 As 和 P 两者物理和化学性质的相似性,As(V)和 P 在相同沉积物带电表面存在强烈的相互竞争^[9]。因此,Fe 还原微生物还原过程对 As-P 迁移转化的影响值得探究。基于当前 As 污染及水体富营养化的普遍共存性,对 As 污染和富营养化的并行思考与研究则尤为重要。而 P 是湖泊生态系统的关键限制性营养元素,是富营养化水平及初级生产力的关键限制因子。开展铁还原微生物驱动下 Fe 还原过程对 As-P 迁移转化的影响研究对深入理解水体富营养化对 As 迁移转化的调控作用,减少湖泊 As 污染风险具有十分重要的意义。

湖泊沉积物是 As 等污染物的“源”与“汇”^[10],往往会承接大量的工业、农业和生活污水进入^[11-12],当沉积环境不稳定时,沉积物中的 As 等污染物可以再次释放造成二次污染,外源性污染得到一定控制时,内源性污染则是水体 As 污染和富营养化控制所面临的严峻挑战。乌梁素海地处河套平原最东端,是河套灌区退排水的重要承接载体,农业面源污染是乌梁素海 As 富集的因素之一^[13]。同时,乌梁素海流域内矿产资源丰富,工业废水排入乌梁素海可能会造成 As 的进一步富集与污染^[14]。Fe 在乌梁素海表层沉积物中百分含量平均值为 3.1%,达到富铁沉积物的标准^[15]。而乌梁素海表层沉积物中总砷(TAs)浓度范围为 8.03~17.50mg/kg,其平均浓度是河套平原背景值的 1.7 倍,大都处于轻度 As 污染状态,且总排干处已经趋向于偏中度污染^[16]。研究表明,乌梁素海冰封期与夏季表层沉积物 Fe、As 含量分布规律具有差异性^[17],是否冰封也是 As 迁移转化的一个重要因素。冰封期使湖泊较长时间内处于还原环境,冰下水体氧化还原环境的改变会导致 As 多以还原态形式存在,增加 As 的溶解性及潜在生态风险,威胁湖

泊水生态安全。因此,有必要开展乌梁素海沉积物 Fe 还原微生物对 As-P 迁移转化影响的季节性差异研究。

当前对 As 污染的研究工作已经取得了不少进展,但是相关研究主要集中于土壤和地下水^[18-20],对北方高原寒区湖泊中冰封期 As 的迁移转化研究相对较少。尤其是目前针对乌梁素海沉积物微生物群落结构研究相对较少,铁还原微生物的丰度及优势菌属等尚未可知,其对 As-P 迁移转化影响的季节性差异尚不明晰。本研究针对乌梁素海冰封期较长、不同季节氧化还原和温度等条件差异较大等显著特征,探究夏季和冰封期湖泊沉积物微生物群落结构,明确代表性铁还原微生物及其丰度的季节性差异,结合 RDA 分析、相关性分析以及 PLS-SEM 模型探讨铁还原微生物驱动下铁还原过程对 As-P 迁移转化影响的季节性差异以及对 As 迁移转化的影响。对理解寒旱区湖泊冰封期微生物作用下 As 的迁移转化过程,深化寒旱区湖泊 As 的环境地球化学行为具有重要科学价值,对具有 As 污染和富营养化双重风险的湖泊水环境保护和黄河流域内蒙古段水生态安全等方面具有重要的现实意义。

1 材料与方法

1.1 研究区概况

乌梁素海(40°47'~41°03'N,108°43'~108°57'E)位于内蒙古巴彦淖尔市乌拉特前旗境内,是高原寒区的大型多功能湖泊,地球同一纬度最大的湿地,总面积 293km²,其中芦苇区面积为 118.97km²。乌梁素海属于典型的大陆性气候,全年温度变化大,日温差也明显。夏季炎热,冰封期寒冷且干燥。年平均气温在 3℃左右,最高气温可达 40℃,最低气温可达-40℃。年降水量较少,约在 100mm 左右,集中在 6~9 月份,且高温和大蒸发量导致湖泊水位出现较大的变化。乌梁素海每年存在约 5 个月冰封期,一般出现在 11 月~次年 4 月,尤其是在 12 月~次年 2 月期间,冰层最为稳定厚实。

1.2 样品采集与处理

在 2022 年 1 月的冰封期和 8 月的夏季进行样品采集工作,根据乌梁素海的支流位置、水文特征和芦苇植物分布等实际情况,按照均匀分布且具有代表性的原则设置采样点共 7 个,依次编号为 W1~W7(图 1)。W1 位于总排干处,是湖泊进水口区,

水下无沉水植被;W2 水下无沉水植被;W3 为湖中区,附近有芦苇包围,水面下有水草生长;W4 和 W5 位于南部明水区(旅游区),该水域水面下生长有水草;W6 位于出水区的退水渠附近,附近有少量芦苇,水下无沉水植物;而 W7 位于北部明水区,附近和下水下植物较少。

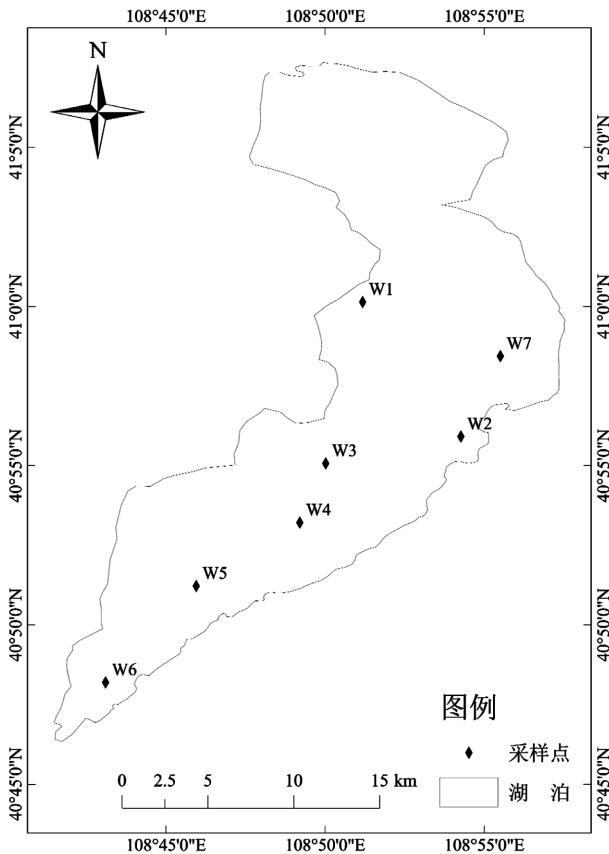


图 1 采样点分布示意

Fig.1 Sampling point distribution diagram

夏季和冰封期分别采集上覆水和沉积物,并在样品采集时现场使用多功能便携式水质分析仪(HACH HQ40d,美国)测定水中 pH 值、Eh 值和温度。采样后将上覆水置于 PVC 瓶中避光低温保存,沉积物装入聚乙烯封口袋中低温避光保存,取样结束后立即返回实验室,测定水和沉积物中的 As(III)、As(V)、Tas、Fe(II)、TFe、总磷(TP)等指标。其中,水中的 As(III)和 As(V)均采用砷钼蓝法测定^[21],Tas 采用电感耦合等离子体质谱法(ICP-MS)测定^[22],Fe(II)、Tfe、TP 的含量测定方法参考《水和废水监测分析方法》^[23],分别使用邻菲罗啉分光光度法和钼锑抗分光光度法测定。沉积物中 As(III)、As(V)、

Fe(II)和 TFe 的含量测定均使用新鲜沉积物,沉积物经浸提剂浸提振荡过滤后,滤液采用砷钼蓝法测定 As(III)和 As(V)的含量^[21],采用邻菲罗啉分光光度法测定 Fe(II)和 TFe 的含量^[23];TAs 和 TP 含量均使用风干沉积物样品分别采用原子荧光法和碱熔-钼锑抗分光光度法(HJ 632-2011)测定。沉积物鲜样采样后立即送往上海美吉生物科技有限公司,在 Illumina MiSeq 平台进行高通量测序。

为避免外部污染影响结果,本研究所使用的采样容器和玻璃器皿均使用硝酸(pH<2)浸泡 24h 以上,并用超纯水洗净后放入烘干箱干燥,实验与取样时衣着纯棉实验服和一次性丁腈手套。实验使用所有试剂均为分析纯或优级纯,实验用水均为超纯水(Milli-Q, Millipore, ≥18.2MΩ cm)。实验设置空白以及对照组且每个样品分析测试 2~3 次以保证试验结果的准确性。

1.3 数据处理

数据处理统计与相关性分析由 Excel 2020 和 SPSS27.0 完成,冗余分析(RDA)由 Canoco 5 完成,图像绘制由 Origin 2022 和 ArcGIS 10.8 完成,偏最小二乘法-结构方程模型(PLS-SEM)由 Smart-PLS 3 完成,微生物数据处理与分析在美吉生物平台完成。

2 结果与讨论

2.1 乌梁素海沉积物微生物多样性分析

研究区夏季和冰封期沉积物样品高通量测序结果表明,所有样本中,冰封期和夏季的沉积物都获得了超过 22000 个有效序列,经优化处理后,通过将测序结果以 97%相似度进行划分,在夏季分别为 1777~2182 个操作分类单元(OTU),在冰封期分别为 1382~2293 个 OTU。表明在当前的测序程度下,所得到的 OTU 数量已经接近于代表样本微生物多样性的饱和点,证明本研究测序数据量已经足够合理,并能够满足对微生物多样性分析的基本要求。同时,常用的覆盖率和稀释曲线这两种指标都显示,在乌梁素海冰封期和夏季样品中,检测到的基因序列的覆盖率均达到了 99%以上(图 2),表明样本中环境微生物的种类和数量已经足够充分地检测到,因此本次测序结果对于描述样本微生物的真实情况准确。夏季时各取样点 OUT 数量基本相同。而冰封期时 W3 点物种丰富度最大,W1 和 W2 物种丰富度相近

且最小,其他点位物种丰富度接近,但各取样点 OUT 数量有较大差距,W3 与 W2 的 OUT 数量差值达到 1000 多个.冰封期和夏季对比来看,W3 点在冰封期和夏季的 OUT 数量均为几个点位中最高,说明该点位微生物多样性较高.

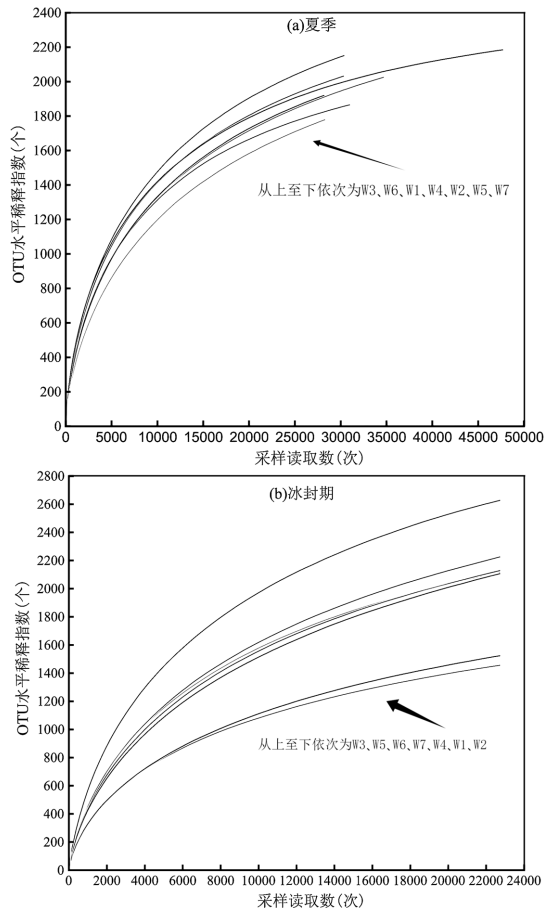


图 2 夏季和冰封期稀释曲线

Fig.2 Dilution curves in summer and ice-bound period

本研究计算并分析了冰封期和夏季沉积物微生物群落结构 Alpha 多样性指数(图 3).Chao1 指数、ACE 指数和 Simpson 指数都是用于评估生物多样性的统计指标,但它们各有侧重,Chao1 指数和 ACE 指数是用于评估物种总数的非参数方法,Simpson 指数则用于衡量群落的多样性,包括物种的丰富度和均匀度.由图 3(a)和图 3(b)可见,用于估计物种总数的 Chao1 和 ACE 丰度指数在夏季均高于冰封期,且夏季与冰封期的 Chao1 和 ACE 指数均差异性显著 ($P < 0.01$).夏季微生物群落的 Chao1 丰度指数和 ACE 丰度指数中位数为 3000 左右,各采样点的指数数值较为平均,而冰封期 Chao1 丰度指数和 ACE 丰度指

数中位数为 2400 左右,各采样点的指数数值差异较大.这可能是受采样点与陆地的距离导致的冰覆盖时间差异进而导致氧化还原条件的差异、采样点环境因子以及植被覆盖情况差异等因素影响.由图 3(c)可见,用于评估物种多样性的 Simpson 指数夏季与冰封期其中位数均较为相近,表明冰封期和夏季整体的物种总数虽有差异,但群落多样性程度基本相同.将冰封期和夏季微生物群落结构 Alpha 多样性指数对比分析可知,夏季时各样点物种多样性和丰富度较为一致,而冰封期各样点之间的物种多样性存在一定差异.物种的多样性和丰富度差异会影响它们的均匀性,在冰封期冻融过程中,细菌群落的 Alpha 多样性会发生变化.季节性冻融会显著改变微生物之间的相互作用,物种多样性和丰富度差异通过影响细菌群落的组成、结构和相互作用,进而影响群落的均匀性.乌梁素海地处寒旱地区,不同季节温差较大,温度是影响微生物生长和代谢的关键环境因素之一,也是冰封期和非冰封期产生的根本因素.温度偏低会减缓微生物的代谢反应速率,降低酶的活性,减少营养物质的吸收和代谢产物的分泌,从而影响微生物的生长和繁殖.此外,冰封期时冰盖的产生会导致水下光照条件、植被生长覆盖情况、氧化还原电位等因素与夏季不同,这些均对微生物的生长代谢产生影响.因此冰封期时不同点位微生物的种类和数量较夏季均更低.对不同采样点微生物群落结构 Alpha 多样性指数分析可知,W1 与 W2 两点微生物多样性较差,可能由于这两点处于乌梁素海总排干进水口附近,易沉降的矿物和重金属对细菌群落生长产生胁迫和毒害,造成这两点细菌群落多样性和丰富度较低^[24];而 W3 点沉积物在冰封期和夏季都表现出了较高的微生物物种丰富度和多样性,可能是由于 W3 位于湖心区,受到人为影响较少,且该点植物丰富多样,存在芦苇和水草等多种植物,生态系统较为复杂^[25].

乌梁素海冰封期和夏季沉积物微生物群落的主成分分析(PCA)结果显示(图 4 和图 5),PC1 和 PC2 的贡献率分别是 48.91%和 19.56%,累计贡献率 68.47%.不同时期的微生物群落组内均有效聚集,组间有效分离,表明每个时期的微生物群落主成分具有一定相似性,但冰封期和夏季的微生物群落点位在 PC1 轴上整体距离较远,表明由于温度、是否有冰

盖以及氧化还原电位等环境条件变化导致冰封期和夏季的微生物群落结构具有一定差异^[26].

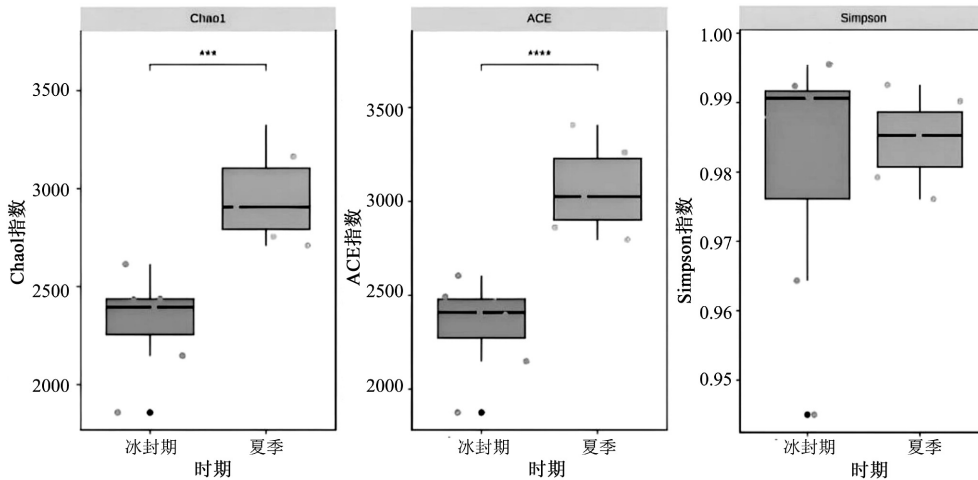


图3 夏季和冰封期 alpha 多样性指数

Fig.3 Index of alpha diversity in summer and ice-bound period

代表显著性 $P < 0.001$, *代表显著性 $P < 0.0001$

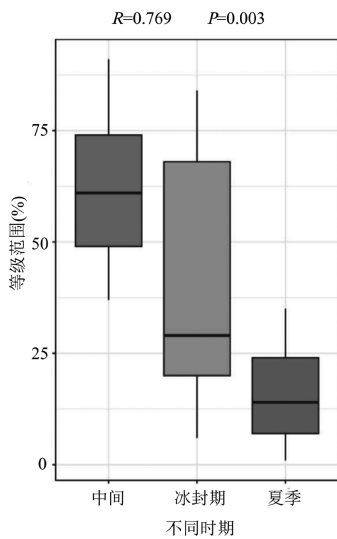


图4 ANOSIM 非参数统计检验

Fig.4 ANOSIM non-parametric statistical test

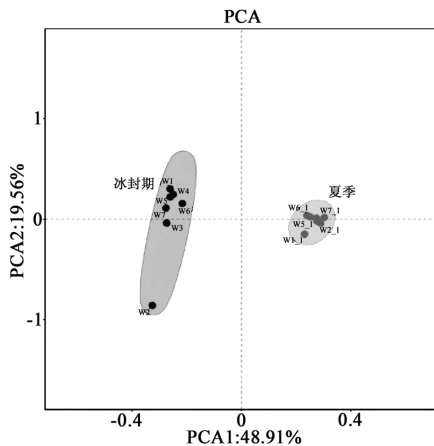


图5 基于 Bray-Curtis 的 PCA 分析

Fig.5 PCA analysis based on Bray-Curtis

2.2 乌梁素海中代表性铁还原微生物及其丰度分析

对高通量测序结果进行分析,从属水平筛选出研究区沉积物中冰封期和夏季代表性的铁还原微生物并对他们的丰度进行了分析.结果显示夏季的代表性铁还原微生物有芽孢杆菌属、地杆菌属、假单胞菌属、热厌氧菌属、厌氧粘细菌属和地发菌属,并且芽孢杆菌属和地杆菌属在 W1~W7 中均有分布(图 6(a)),且这两种铁还原微生物在所有采样点中均为优势菌属;同时芽孢杆菌属和地杆菌属的丰度在不同采样点之间差异较小,而厌氧粘细菌属、地发菌属、热厌氧菌数和假单胞菌属丰度相对较低,在各采样点占比较少.而冰封期筛选出的代表性铁还原微生物有芽孢杆菌属、地杆菌属、假单胞菌属、热厌氧菌属、厌氧粘细菌属和希瓦氏菌属(图 6(b)),芽孢杆菌属和地杆菌属在 W1~W7 中仍为各采样点的优势菌种,但两种菌属分别在不同采样点之间丰度的均匀性较差.厌氧粘细菌属、希瓦氏菌属、热厌氧菌数和假单胞菌属丰度均相对较低,在各采样点占比较少.因此,乌梁素海沉积物夏季与冰封期的代表性铁还原微生物存在明显差异,虽然夏季和冰封期时铁还原微生物的优势菌属相同均为芽孢杆菌属和地杆菌属,但在夏季时地发菌属是代表性铁还原微生物之一,而冰封期希瓦氏菌属则为代表性铁还原微生物之一.

对不同采样点的铁还原微生物丰度进行分析,结果显示夏季时 W2、W4、W5、W6 和 W7 中铁还

原微生物丰度较大,其中芽孢杆菌属和地杆菌属占比较高.铁还原微生物一般分为专性和兼性还原过程,地杆菌、希瓦氏菌为专性铁还原微生物,主要过程为菌种对脂肪酸的代谢,而芽孢杆菌的兼性 Fe 还原过程通常是在代谢有机物过程中产生的氢作为电子供体,依靠发酵过程进行 Fe 还原,这样的差异是造成芽孢杆菌属较地杆菌等专性铁还原微生物相对丰度较大的主要原因.而冰封期时 W1、W2、W5 和 W6 中铁还原微生物丰度较大.

冰封期时微生物群落结构的多样性和丰富度

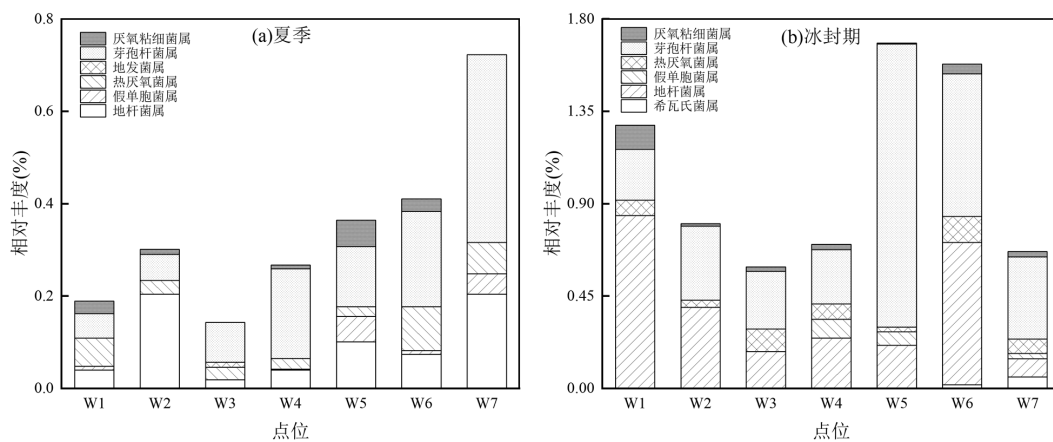


图 6 夏季和冰封期铁还原微生物的相对丰度(%)

Fig.6 Relative abundance(%) of iron-reducing microorganisms in summer and ice-bound period

2.3 铁的生物还原过程对砷迁移转化的影响

将夏季和冰封期沉积物中的代表性铁还原微生物丰度与水和沉积物中的 Fe、P、As 含量进行 RDA 分析和相关性分析,同时将温度、pH 值、Eh 等与 Fe 还原相关性较强的环境因子加入其中,探究夏季和冰封期代表性铁还原微生物介导的 Fe 还原过程对 As 迁移转化的影响以及 P 对 As 迁移转化的影响.

RDA 分析和相关性分析结果表明(图 7(a)、图 8(a)),夏季时,水和沉积物中的 Fe(II)均与 TP、TAs 和 As(III)呈相关关系,说明在 Fe 还原产生 Fe(II)的过程中存在着对 P 和 As 迁移转化的影响.同时水中 Eh 与沉积物中 TP、TAs 和 Fe(II)以及水中 Fe(II)显著相关,表明 Fe 的还原和释放过程与水中的 Eh 有较强关联性,进而影响 P 和 As 的迁移转化.沉积物中 pH 值与芽孢杆菌属呈显著相关关系,表明芽孢杆菌属丰度受到沉积物 pH 值影响较大,芽孢杆菌属适宜的 pH 值范围通常是在中性至微碱性^[30-31].同时,

虽不及夏季,但是铁还原微生物在冰封期的菌属相对丰度整体大于夏季;芽孢杆菌属和地杆菌属在冰封期和夏季均为优势菌种,但地杆菌属在冰封期相对丰度较夏季有显著增长,这可能是由于地杆菌属是严格厌氧微生物^[27],而芽孢杆菌是兼性厌氧微生物;希瓦氏菌属作为湖泊、海底沉积物中常见的重要铁还原微生物^[28]在夏季未检测出其存在,推测是因为其为厌氧型微生物,在夏季有氧条件下生长受到抑制^[29],在冰封期有冰盖的缺氧环境中较为适宜其生长.

沉积物中有机质(OM)与水中 TP 呈正相关关系,表明了 OM 与 TP 的同源性,即它们可能具有相似的来源,如农业面源污染、工业废水等.此外,OM 也会影响 P 的含量.冬季湖泊结冰后,冰面上的芦苇等植物会被收割,但是冰面以下的植物部分则在湖底腐烂沉积产生有机质,并释放出 P 等物质,进而富集到沉积物中^[32].OM 也会影响 As 的含量,OM 可充当含 As 铁矿物微生物还原过程中的电子受体,导致铁矿物的还原性溶解释放 As 和 Fe.沉积物中 TP、TAs 与 Fe(II)呈相关关系,水中的 TP 也影响 TAs,表明在 Fe 还原过程中,P 影响 As 的迁移转化过程.这可能是由于铁(氢)氧化物矿物是控制 As 与 P 环境行为的重要载体,因为其既是磷酸盐的有效储存库又是 As 的主要宿主矿物^[33-34].在 Fe 还原过程中,吸附在铁(氢)氧化物表面的 As 会随之释放,并且结晶的或弱结晶的铁(氢)氧化物可转化为对 As 结合亲和力相对较弱的亚铁矿物而增强 As 的转化和释放.但在 P 存在的条件下,可能导致铁(氢)氧化物的改变,进而影响 As

的含量.热厌氧菌属是一种在高温条件下生长的铁还原微生物^[35],其在夏季沉积物铁还原微生物中相对丰度较低,与沉积物中 Fe(II)和水中的 Fe(II)、TP、TAs 含量呈相关关系,表明该菌属以较低丰度促使 Fe 还原并一定程度影响着 P 和 As 向水中的释放.这可能是由于在夏季较高温度的水环境中较为适宜热厌氧菌属发挥其 Fe 还原作用,从而促使该菌属以低丰度促进了铁微生物还原^[36].芽孢杆菌属是具备 As、Fe 还原功能的一类微生物,在内蒙古河套盆地、大同盆地等环境中芽孢杆菌属都可以参与到 Fe(III)和 As(V)的还原过程中,促进 Fe 和 As 的迁移

转化^[37-39].其在夏季相对丰度较大,与水中的 Fe(II)、TP 相关性较强,表明其可能在夏季铁微生物还原过程中发挥重要作用,促进了 As 和铁氧化物的解吸附过程并向水中释放.芽孢杆菌属在夏季还与水中 As(III)呈负相关关系,推测是芽孢杆菌在较大丰度的情况下对 As 起到了一定的吸附作用,这与前人的结论相似^[40-42].地杆菌属与沉积物中 TFe 呈显著相关关系,和 OM 也表现出一定相关关系.地杆菌属是一种能够利用有机质作为电子供体和碳源的微生物,同时它是专性铁还原微生物,在 Fe 含量较大的环境中更适宜生长.

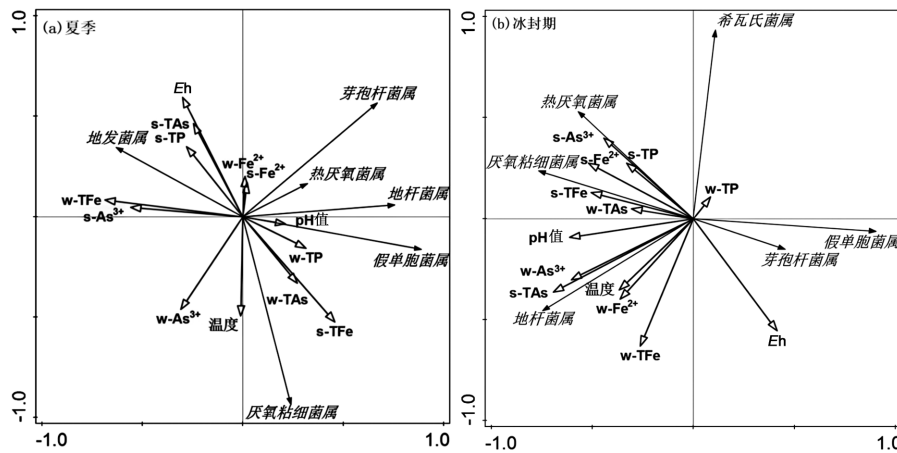


图 7 夏季与冰封期铁还原微生物冗余分析

Fig.7 Redundancy analysis of iron-reducing microorganisms in summer and ice-bound period

w-表示其水中指标,s-表示其为沉积物中指标

冰封期时(图 7(b)、图 8(b)),水和沉积物中的 Fe(II)与 TP、TAs 呈相关关系,这与夏季结果较为一致.沉积物中的 As(III)与沉积物中的 Tas、水中的 As(III)和 TAs 相关性较差,可能是沉积物中 TAs 含量较大,As(III)含量与 TAs 含量的比值较小,因而 As(III)与 TAs 相关性较差,但沉积物中 TAs 含量与向水中释放的 TAs 和 As(III)呈现显著相关关系.沉积物中的 TP 含量与 Tas、As(III)含量也呈现相关关系,同时与 Fe(II)相关,表明冰封期时 Fe 还原过程对 As 与 P 的迁移转化也具有重要影响,且在 Fe 还原过程中,P 同样影响着 As 的迁移转化.专性铁还原微生物厌氧粘细菌属、地杆菌属均与沉积物和水中的 Fe 含量呈现相关关系.厌氧粘细菌属丰度较小,但其与沉积物中 As(III)、Fe(II)和水中的 TAs 呈强相关关系,表明其在 Fe 还原过程中起到了一定的作用,造成了 As 从铁矿物上的解吸从而向水中释放.陈优

阳^[43]在其研究中也得到类似结论,即厌氧粘细菌属相对丰度在环境中铁还原微生物丰度占比虽然较小,但其与 Fe(II) 仍呈显著正相关关系,可能由于未达到其最适宜生长温度,厌氧粘细菌属未成为冰封期 Fe 还原的主要菌属^[44].沉积物中 Eh 与地杆菌属和热厌氧菌属均呈现一定正相关关系,表明在冰封期低 Eh 的条件更适宜地杆菌属和热厌氧菌属的生长.而地杆菌属作为一种严格厌氧菌属^[45],在冰封期缺氧的水环境中较为适宜其生长,因而其丰度较大.地杆菌属与沉积物和水中的 Fe(II)以及 As(III)均有显著相关性,表明大丰度的地杆菌属是冰封期 Fe 生物还原过程的主要驱动者,进而促使 As 的还原以及迁移转化过程.前人的研究也表明,地杆菌属在酸性矿山等环境中低浓度 DO 时更有利于发挥其铁微生物还原作用^[46-47].冰封期希瓦氏菌属是代表性铁还原微生物之一,相关性结果也表明就铁还原

微生物而言,OM 与希瓦氏菌属的相关性相对较强,OM 为希瓦氏菌属的生长提供了碳源与能源,且冰封期冰盖的形成导致水下的缺氧环境,更适宜其生长.热厌氧菌属丰度虽然较小,但是其与厌氧粘细菌属在冰封期有相似的分析结论,对 Fe 还原和 As 的迁移转化均有一定影响.

点.而乌梁素海 Fe 的生物还原过程易导致 P 向水中迁移转化,导致藻类等生物大量繁殖,进而导致湖泊水质变差^[49].在冰封期到来前可通过湖泊底泥疏浚等方式减少 Fe 还原过程中 P 和 As 的释放,避免冬季过后水体被 As 和 P 污染的风险.此外,可以通过调节 pH 值、有机质等的含量调控微生物 Fe 还原过程,冰封期时还可利用人工增氧等方式抑制铁还原微生物的活性,减少 As 与 P 的释放.

2.4 铁生物还原作用下 P 对 As 迁移转化影响的 PLS-SEM 模型分析

为进一步探讨 Fe 的生物还原过程对 P 和 As 迁移转化的影响,基于 RDA 和相关性分析结果(图 7 和 8),选取夏季的热厌氧菌属和芽孢杆菌属以及冰封期的地杆菌属和热厌氧菌属为代表性铁还原微生物,利用 PLS-SEM 模型探究其与 Fe、P、As 之间的关系(图 9).

在夏季,热厌氧菌属的含量对乌梁素海水和沉积物中的铁含量产生了显著影响(图 9(a)),路径系数和 R^2 分别是 0.178 和 0.281,表明热厌氧菌属对铁元素含量具有良好的解释性,同时可以看出在热厌氧菌属的影响下,Fe 和 P 的含量对 As 含量的影响也较为显著,其中 P 元素对 As 的路径系数也体现了 P 和 As 两种元素的竞争效应.此外,芽孢杆菌属在夏季也在一定程度能够解释铁元素含量及 P 元素对 As 元素含量的影响.但是值得注意的是,虽然芽孢杆菌属在夏季的丰度高于热厌氧菌属,但其对铁元素含量的解释性相对较小($R^2=0.130$)(图 9(b)).这可能是由于热厌氧菌属是一种在高温条件下生长的专性铁还原微生物,在夏季较高温度的环境中更能发挥其铁还原的功能性,而芽孢杆菌属是一类在环境中常见的兼性铁还原微生物,其不仅有铁还原的功能,还具有分解碳、氮等物质的功能^[37-38],故芽孢杆菌属在夏季的相对丰度虽高于热厌氧菌属,但芽孢杆菌属对铁含量的解释性较热厌氧菌属更小一些.

在冰封期,热厌氧菌属的含量对铁含量的路径系数较夏季更大(图 9(c)),其解释性较夏季虽有所下降,但也可以看出热厌氧菌属作用下的铁含量与 P 含量对 As 含量产生一定影响,且其作用和影响较夏季更大.而在冰封期地杆菌属对铁含量则有较强的解释能力,也印证了 RDA 的分析结果即地杆菌属在冰封期的厌氧环境中是铁还原的主要驱动者(图

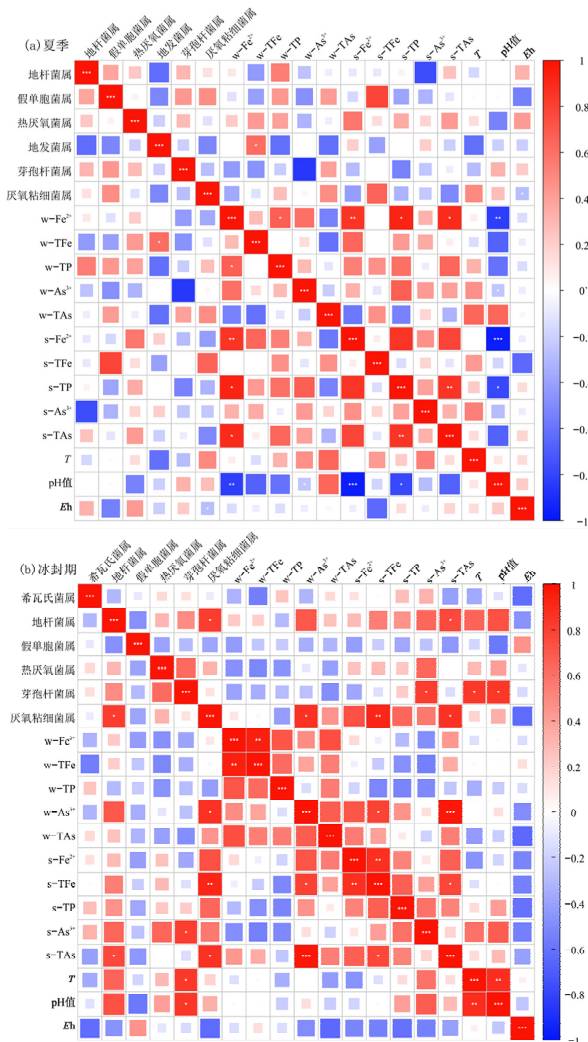


图 8 夏季与冰封期铁还原微生物丰度与环境因子的相关性分析

Fig.8 Correlation analysis of iron-reducing microbial abundance and environmental factors in summer and ice-bound period

w-表示其水中指标,s-表示其为沉积物中指标,*代表显著性 $P<0.05$,**代表显著性 $P<0.01$,***代表显著性 $P<0.001$

研究表明,乌梁素海采样点的氮磷比均大于 16:1,为 P 限制湖泊,P 元素是限制湖泊生产力和富营养化进程的关键因素之一^[48].在外源污染得到有效控制的情况下,湖泊的内源污染则是需要关注的重

9(d)).而地杆菌属作用下的铁与 P 含量对 As 含量均有显著影响,同时也对 As 含量具有较强的解释性,

也印证了地杆菌属含量在冰封期对铁、P 和 As 含量具有一定影响,是 As 含量变化的主要贡献者。

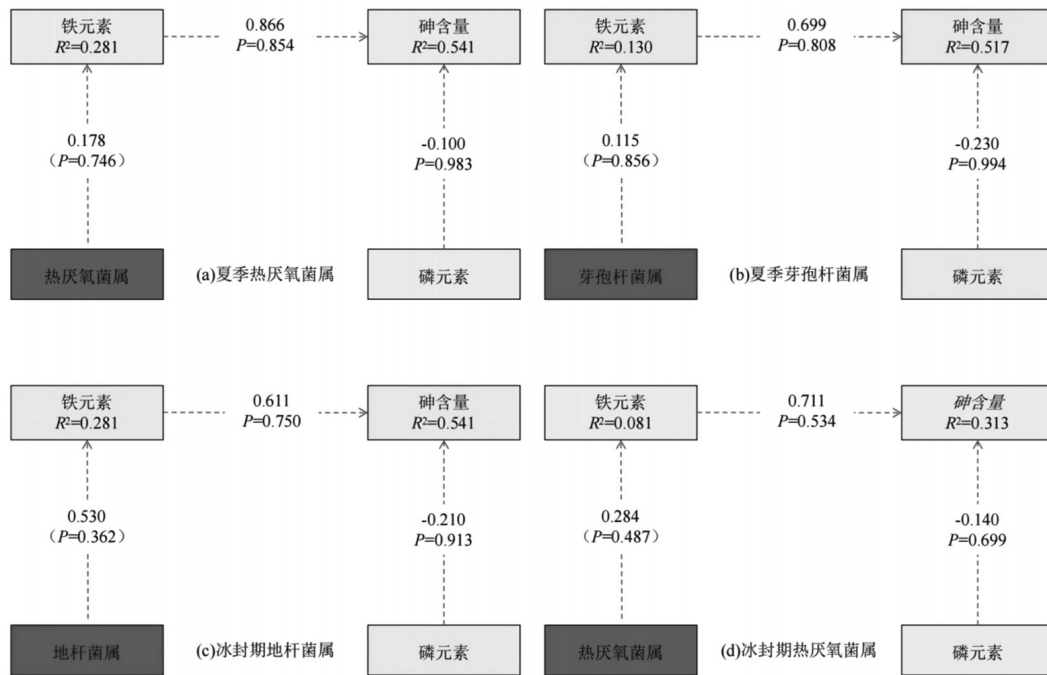


图9 铁还原微生物与铁、P、As 的含量的 PLS-SEM 模型分析

Fig.9 PLS-SEM model analysis of iron-reducing microorganisms and the contents of Fe, P and As

3 结论

3.1 乌梁素海冰封期和夏季的微生物群落结构具有一定差异性,夏季微生物群落的 Chao1 和 ACE 丰度指数均高于冰封期,且夏季与冰封期的 Chao1 和 ACE 丰度指数均差异性显著.冰封期的微生物群落结构整体与夏季有一定差异性,各取样点的物种丰富度和多样性均匀性较差.

3.2 乌梁素海冰封期和夏季的代表性铁还原微生物种类基本相同,但仍存在明显差异,虽然夏季和冰封期时铁还原微生物的优势菌属相同均为兼性铁还原微生物芽孢杆菌属和专性铁还原微生物地杆菌属,但在夏季时地发菌属是代表性铁还原微生物之一,而冰封期希瓦氏菌属则为代表性铁还原微生物之一.可能受冰盖、采样点位置、重金属等因素影响,冰封期和夏季的代表性铁还原微生物相对丰度和绝对丰度均有差异.整体来看,冰封期的铁还原微生物丰度较夏季更高.

3.3 夏季时,热厌氧菌属以较小丰度促使的铁还原过程一定程度上影响着沉积物中 As 和 P 向水中释

放;PLS-SEM 模型结果显示由于芽孢杆菌属不是专性铁还原微生物,虽其丰度较高但对铁还原过程解释性较差(路径系数 0.115);RDA 和相关性分析结果表明芽孢杆菌属与水中的 Fe(II)、TP、TAs 相关性仍较强,可能是因为它同时具有 As 和铁还原性进而导致 P 与 As 的迁移转化.冰封期时,热厌氧菌属可能因温度导致其丰度较低,但其与沉积物中 As(III)、Fe(II)和水中的 TAs 呈强相关关系,表明其促使的铁还原过程一定程度影响了 As-P 的迁移转化(路径系数 0.284);通过相关性分析和 PLS-SEM 模型发现冰封期丰度较高的铁还原微生物地杆菌属是铁生物还原过程导致 As-P 迁移转化的重要驱动者(路径系数 0.530).

参考文献:

[1] Long H, Sun Y, Li Z, et al. Beyond the geological origin of sediment arsenic in groundwater systems: Arsenic redux by redox [J]. Science Bulletin, 2023,68(15):1616-1620.
 [2] Michael H. An arsenic forecast for China [J]. Science, 2013,341(6148): 852- 853.
 [3] Anawar H, Akai J, Mihaljevic M, et al. Arsenic contamination in groundwater of Bangladesh: Perspectives on geochemical, microbial

- and anthropogenic issues [J]. *Water*, 2011,3(4):1050-1076.
- [4] Gorra R, Webster G, Martin M, et al. Dynamic microbial community associated with iron-arsenic co-precipitation products from a groundwater storage system in Bangladesh [J]. *Microbial Ecology*, 2012,64(1):171-186.
- [5] 刘 韩.河套平原高砷地下水中异化铁还原菌对砷迁移转化的影响研究 [D]. 武汉:中国地质大学, 2021.
Liu H. Arsenic mobilization affected by dissimilatory iron reducing bacteria from high arsenic groundwater in Hetao Basin [D]. Wuhan: China University of Geosciences, 2021.
- [6] Deng Y, Zheng T, Wang Y, et al. Effect of microbially mediated iron mineral transformation on temporal variation of arsenic in the Pleistocene aquifers of the central Yangtze River basin [J]. *Science of the Total Environment*, 2018,619:1247-1258.
- [7] Campbell K, Malasarn D, Saltikov C, et al. Simultaneous microbial reduction of iron(III) and arsenic(V) in suspensions of hydrous ferric oxide [J]. *Environmental Science and Technology*, 2006,40(19):5950-5955.
- [8] Wu X, Jiang Q, Ma T. Geochemical processes of phosphorus-iron on sediment-water interface during discharge of groundwater to freshwater lakes: Kinetic and mechanistic insights [J]. *Science of the Total Environment*, 2023,901:165962.
- [9] 郭华明,王焰新,李永敏.山阴水砷中毒区地下水砷的富集因素分析 [J]. *环境科学*, 2003,24(4):60-67.
Guo H, Wang Y, Li Y. Analysis of factors influencing arsenic enrichment in groundwater in the Shanxi arsenic poisoning area [J]. *Environmental Science*, 2003,24(4):60-67.
- [10] 杨桂山,马荣华,张 路,等.中国湖泊现状及面临的重大问题与保护策略 [J]. *湖泊科学*, 2010,22(6):799-810.
Yang G, Ma R, Zhang L, et al. Current status, major issues, and protection strategies of lakes in China [J]. *Journal of Lake Sciences*, 2010,22(6):799-810.
- [11] 刘 帅,谢茂嵘,吕 文,等.阳澄湖入湖河道分类、污染特征分析及治理策略 [J]. *湖泊科学*, 2024,36(3):741-755.
Liu S, Xie M, Lu W, et al. Classification, pollution characteristics and treatment strategy of the inflow rivers into Lake Yangcheng [J]. *Journal of Lake Sciences*, 2024,36(3):741-755.
- [12] 杨 安,邢文聪,王小霞等.西藏中部河流、湖泊表层沉积物及其周边土壤重金属来源解析及风险评估 [J]. *中国环境科学*, 2020,40(10):4557-4567.
Yang A, Xing W, Wang X, et al. Source and risk assessment of heavy metals in surface sediments of rivers, lakes and their surrounding soils in central Tibet [J]. *China Environmental Science*, 2020,40(10):4557-4567.
- [13] 史 锐,毛若愚,张 梦,等.乌梁素海流域地表水中全氟化合物分布、来源及其生态风险 [J]. *环境科学*, 2021,42(2):663-672.
Shi R, Mao R, Zhang M, et al. Distribution, sources, and ecological risks of polyfluoroalkyl substances in the surface water of the Wuliangsu Hai Watershed [J]. *Environmental Science*, 2021,42(2):663-672.
- [14] 何连生,席北斗,雷宏军,等.2013 乌梁素海综合治理规划研究 [M]. 北京:中国环境出版社, 2013:1-105.
He L, Xi B, Lei H, et al. Study on the comprehensive management plan of Wuliangsu Hai Lake in 2013 [M]. Beijing: China Environmental Science Press, 2013:1-105.
- [15] 李 磊.内蒙古高原湖泊铁的地球化学特征与环境意义 [D]. 呼和浩特:内蒙古大学, 2017.
Li L. Geochemical characteristics and environmental significance of iron fractions in lake sediments on the western inner mongolia plateau [D]. Hohhot: Inner Mongolia University, 2017.
- [16] 石文静,赵心亚,刘轶哲,等.乌梁素海冰封期砷与环境因子响应及风险评估 [J]. *中国环境科学*, 2024,44(2):972-983.
Shi W, Zhao X, Liu Y, et al. Response between arsenic and environmental factors and risk assessment in Wuliangsu Hai during the ice-bound period [J]. *China Environmental Science*, 2024,44(2):972-983.
- [17] 崔志谋,史小红,赵胜男,等.基于 PCA-APCS-MLR 模型的乌梁素海表层沉积物重金属时空分布及来源解析 [J]. *环境科学*, 2024,45(3):1415-1427.
Cui Z, Shi X, Zhao S, et al. Spatiotemporal distribution and source analysis of heavy metals in surface sediments in lake Ulansu Hai based on PCA-APCS-MLR model [J]. *Environmental Science*, 2024,45(3):1415-1427.
- [18] Yamaguchi N, Nakamura T, Dong D, et al. Arsenic release from flooded paddy soils is influenced by speciation, Eh, pH, and iron dissolution [J]. *Chemosphere*, 2011,83(7):925-932.
- [19] Bennett W W, Teasdale P R, Panther J G, et al. Investigating arsenic speciation and mobilization in sediments with DGT and DET: A mesocosm evaluation of oxic-anoxic transitions [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012,46(7):3981-3989.
- [20] 钟松雄,尹光彩,陈志良,等.Eh,pH 和铁对水稻土砷释放的影响机制 [J]. *环境科学*, 2017,38(6):2530-2537.
Zhong S, Yin G, Chen N et al. Influencing mechanism of Eh, pH and iron on the release of arsenic in paddy soil [J]. *Environmental Science*, 2017,38(6):2530-2537.
- [21] 周月雯.砷钼蓝法测定三价砷和五价砷 [J]. *环境保护科学*, 1990, (4):45-47.
Zhou Y. Determination of trivalent and pentavalent arsenic using arsenic molybdenum blue method [J]. *Environmental Protection Science*, 1990,(4):45-47.
- [22] Li Y, Yu C, Zhao B, et al. Spatial variation in dissolved phosphorus and interactions with arsenic in response to changing redox conditions in floodplain aquifers of the Hetao Basin, Inner Mongolia [J]. *Water Research*, 2022,209.
- [23] 国家环境保护总局水和废水监测分析方法编委会.水和废水监测分析方法(第四版) [M]. 北京:中国环境科学出版社, 2002.
Editorial Committee of Monitoring and Analysis Methods of Water and Wastewater, State Environmental Protection Administration. *Monitoring and analysis methods of water and wastewater* [M]. 4th Ed. Beijing: China Environmental Science Press, 2002.
- [24] 杨娅婷.冰封/非冰封期不同类型湖泊菌藻群落特征及差异性研究 [D]. 包头:内蒙古科技大学, 2023.
Yang Y. Characteristics and differences of bacterial and algal communities in different lakes during freezing and non freezing period [D]. Baotou: Inner Mongolia University of Science and Technology, 2023.

- [25] 邢奕,司艳晓,洪晨,等.铁矿区重金属污染对土壤微生物群落变化的影响[J].环境科学研究,2013,26(11):1201-1211.
Xing Y, Si, Hong C, et al. Impact of long-term heavy metal pollution on microbial community in iron mine soil [J]. Research of Environmental Sciences, 2013,26(11):1201-1211.
- [26] 于玲红,齐璐,杨文焕,等.包头南海湖冰封期沉积物细菌群落多样性[J].环境化学,2019,38(6):8.
Yu L, Qi L, Yang W, et al. Diversity of bacterial communities in the sediment of Baotou Nanhai Lake in ice period [J]. Environmental Chemistry, 2019,38(6):1348-1355.
- [27] 刘璐,刘星,靖宪月,等.地杆菌:驱动厌氧生物地球化学循环的"多面手"[J].微生物学报,2022,62(6):2277-2288.
Liu L, Liu X, Jing X, et al. Geoabacter: The "generalist" driving anaerobic biogeochemical cycles. Acta Microbiologica Sinica, 2022, 62(6):2277-2288.
- [28] Lin B, Hyacinthe C, Bonneville S, et al. Phylogenetic and physiological diversity of dissimilatory ferric iron reducers in sediments of the polluted Scheldt estuary, Northwest Europe [J]. Environmental Microbiology, 2007,9(8):1956-1968.
- [29] Laursen B, Bay L, Cleenwerck I, et al. Carnobacterium divergens and Carnobacterium maltaromaticum as spoilers or protective cultures in meat and seafood: phenotypic and genotypic characterization [J]. Systematic and Applied Microbiology, 2005,28(2):151-164.
- [30] Nayak S K, Maji P. Physiological characteristics of *Bacillus* species and their potential applications in agriculture [J]. Biocontrol Science and Technology, 2020,30(2):123-140.
- [31] Makkar R, Cameotra S. Production of biosurfactant at mesophilic and thermophilic conditions by a strain of *Bacillus subtilis* [J]. Journal of Industrial Microbiology & Biotechnology, 1998,20(1):48-52.
- [32] 杜彩丽,黎佳茜,李国文,等.乌梁素海表层沉积物中营养盐和重金属分布特征以及风险评价[J].环境科学,2022,43(12):5598-5607.
Du C, Li J, Li G, et al. Distribution and risk assessment on the nutrients and heavy metals in surface sediments of Wuliangsu Hai lake [J]. Environmental Science, 2022,43(12):5598-5607.
- [33] Fan L, Zhao F, Liu J, et al. The As behavior of natural arsenical-containing colloidal ferric oxyhydroxide reacted with Sulfate Reducing Bacteria [J]. Chemical Engineering Journal, 2017: S1385894717315772.
- [34] Lu C, He J, Zuo L, et al. Processes and their explanatory factors governing distribution of organic phosphorous pools in lake sediments [J]. Chemosphere, 2016,145(FEB.):125-134.
- [35] Zhu J, Yan X, Zhou L, et al. Insight of bacteria and archaea in Feammox community enriched from different soils [J]. Environmental research, 2022,203:111802.
- [36] Huang L, Feng C, Jiang H, et al. Reduction of structural Fe (III) in nontronite by thermophilic microbial consortia enriched from hot springs in Tengchong, Yunnan Province, China. Chemical Geology, 2018,(479):47-57.
- [37] Qiao J, Li X, Hu M, et al. Transcriptional activity of arsenic-reducing bacteria and genes regulated by lactate and biochar during arsenic transformation in flooded paddy soil [J]. Environmental Science & Technology, 2018,52(1):61-70.
- [38] Qiao J, Li X, Li F. Roles of different active metal-reducing bacteria in arsenic release from arsenic-contaminated paddy soil amended with biochar [J]. Journal of Hazardous Materials, 2018,344:958-967.
- [39] 贾蓉,曲东,乔莎莎.发酵脱氢产氢过程对微生物铁还原的影响[J].农业环境科学学报,2012,32(12):2395-2402.
Jia R, Qu D, Qiao S. Microbial iron reduction as influenced by fermentative dehydrogenation and hydrogen production [J]. Journal of Agro-Environment Science, 2012,32(12):2395-2402.
- [40] Giri A K, Patel R K, Mahapatra S S. Artificial neural network (ANN) approach for modelling of arsenic (III) biosorption from aqueous solution by living cells of *Bacillus cereus* biomass [J]. Chemical Engineering Journal, 2011,178(24):15-25.
- [41] 司慧.芽孢杆菌对铀、锰、砷富集植物的减容机理研究[D].绵阳:西南科技大学,2017.
Si H. Study on the mechanism of reducing of *Bacillus* to the U, Mn, As enrichment plants [D]. Mianyang: Southwest University of Science and Technology, 2017.
- [42] 邓博环,许丽英,王玉龙,等.一株芽孢杆菌对含砷矿物中砷的还原作用[J].生态学杂志,2016,35(12):3374-3381.
Deng B, Xu L, Wang Y, et al. Reduction of arsenic in arsenic bearing minerals by a *Bacillus* strain [J]. Chinese Journal of Ecology, 2016, 35(12):3374-3381.
- [43] 陈优阳.富氮生物炭对福州平原稻田土壤铁动态与碳释放的影响[D].福州:福建师范大学,2020.
Chen Y. Effects of nitrogen-rich biochar on soil iron dynamics and carbon release in paddy field of Fuzhou Plain [D]. Fuzhou: Fujian Normal University, 2020.
- [44] 林颖.水稻根际土壤铁还原微生物的丰度及多样性变化特征[D].杨凌:西北农林科技大学,2019.
Lin Y. Changing characteristics of iron-reducing microbial abundance and diversity in paddy rhizosphere soil [D]. Yangling: Northwest A&F University, 2019.
- [45] Lovley D, Holmes D, Nevin K. Dissimilatory Fe(III) and Mn(IV) reduction [J]. Advances in Microbial Physiology, 2004,49:219-286.
- [46] Antonio García-Moyano, Elena González-Toril, Aguilera N, et al. Comparative microbial ecology study of the sediments and the water column of the Río Tinto, an extreme acidic environment [J]. FEMS Microbiology Ecology, 2012,81(2):1-12.
- [47] Gonzalez-Toril E, Aguilera A, Souza-Egipsy V, et al. Geomicrobiology of La Zarza-perrunal acid mine effluent (Iberian Pyritic Belt, Spain) [J]. Applied & Environmental Microbiology, 2011,77(8):2685-2694.
- [48] 罗晓俊,张钊,黄伟,等.三峡库区澎溪河河段间水华程度差异及其机制[J].环境科学,2023,44(1):282-292.
Luo X, Zhang X, Huang W, et al. Severity differences and mechanisms of algal blooms among sections in Pengxi River of the three gorges reservoir [J]. Environmental Science, 2023,44(1):282-292.
- [49] 朱鹏航,于瑞宏,葛铮,等.乌梁素海长时序水质变化及其驱动因子[J].生态学杂志,2022,41(3):546-553.
Zhu P, Yu R, Ge Z, et al. Long-term changes of water quality and the driving factors of Wuliangsu Hai Lake. Chinese Journal of Ecology, 2022,41(3):546-553.

作者简介:石文静(1990-),女,内蒙古包头人,讲师,博士,主要研究方向为污染物的迁移、转化及效应机制.发表文章13篇.swj225@126.com.