

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第7期

Vol.38 No.7

2017

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

基于船载走航气溶胶质谱技术的海洋气溶胶研究	颜金培, 陈立奇, 林奇, 赵淑惠, 李磊, 朱大勇 (2629)
利用 MODIS C6 数据分析中国西北地区气溶胶光学厚度时空变化特征	赵仕伟, 高晓清 (2637)
秋冬季节华北背景地区 PM ₁ 污染特征及来源	张周祥, 张养梅, 张小曳, 王亚强, 沈小静, 孙俊英, 周怀刚 (2647)
杭州市 PM _{2.5} 中水溶性离子的污染特征及其消光贡献	吴丹, 蔺少龙, 杨焕强, 杜荣光, 夏俊荣, 齐冰, 刘刚, 李凤英, 杨孟, 盖鑫磊 (2656)
青岛不同强度霾天气溶胶中二次无机离子的生成及粒径分布	谢丹丹, 祁建华, 张瑞峰 (2667)
西安市重污染与清洁天 PM _{2.5} 组分及其活性氧物质对比	王堃, 韩永明, 何世恒, 张婷, 刘随心, 曹军骥 (2679)
黄山 PM ₁₀ 中二元羧酸类化合物的季节变化特征及其来源	孟静静, 侯战方, 张二勋, 董杰, 刘晓迪, 邢继钊, 刘加珍 (2688)
泉州市大气 PM _{2.5} 铜系元素组成特征及来源解析	张云峰, 于瑞莲, 胡恭任, 孙境蔚, 许文质, 张棕巍 (2698)
西北石化区周围毒害类空气污染物污染特征及健康风险评价	许亚宣, 李小敏, 于华通, 董林艳, 赵玉婷, 姚懿函, 邹广迅, 张新民 (2707)
G20 峰会期间宜兴市大气 VOCs 特征及来源分析	张璘, 张祥志, 秦玮, 茅晶晶, 秦艳红, 谢卫平, 史文科, 陈文泰 (2718)
四川省 2005 ~ 2014 年农业源氨排放清单及分布特征	冯小琼, 陈军辉, 姜涛, 钱骏, 叶宏 (2728)
长三角地区典型城市非道路移动机械大气污染物排放清单	鲁君, 黄成, 胡馨遥, 杨强, 井宝莉, 夏阳, 卢滨, 唐伟, 楼晨荣, 陶士康, 李莉 (2738)
我国城市饮用水中 N-亚硝基二甲胺的健康风险评估及水质标准制定	张秋秋, 潘申龄, 张昱, 杨敏, 安伟 (2747)
地下水污染风险评价中污染源荷载量化方法的对比分析	赵鹏, 何江涛, 王曼丽, 崔亚丰 (2754)
胶州湾表层海水中的正构烷烃及其来源解析	张倩, 宋金明, 彭全材, 李学刚, 袁华茂, 李宁, 段雨琴, 曲宝晓, 王启栋 (2763)
桂江流域夏季水-气界面 CO ₂ 脱气的空间变化及其影响因素	张陶, 李建鸿, 蒲俊兵, 吴飞红, 李丽, 袁道先 (2773)
都柳江水系沉积物锑等重金属空间分布特征及生态风险	宁增平, 肖青相, 蓝小龙, 刘意章, 肖唐付, 赵彦龙, 吴世良 (2784)
太湖表层水体及沉积物中双酚 A 类似物的分布特征及潜在风险	陈政宏, 郭敏, 徐怀洲, 刘丹, 程杰, 李江, 张圣虎, 石利利 (2793)
洱海沉积物水提取态有机氮特征及与其他来源溶解性有机氮的差异	李文章, 张莉, 王圣瑞, 肖尚斌, 钱伟斌, 席银, 许可宸, 史玲珑 (2801)
阿哈水库沉积物-水界面磷、铁、硫高分辨率空间分布特征	孙清清, 陈敬安, 王敬富, 杨海全, 计永雪, 兰晨, 王箫 (2810)
北京市水环境中精神活性物质污染特征	张艳, 张婷婷, 陈卫平, 郭昌胜, 花镇东, 张远, 徐建 (2819)
降雨特征及污染物赋存类型对路面径流污染排放的影响	陈莹, 王昭, 吴亚刚, 赵剑强, 杨文娟 (2828)
CaO ₂ 不同投加方式对黑臭河道底泥内源磷释放抑制作用	徐焱, 李大鹏, 韩菲尔, 宋小君, 李鑫, 周婧, 黄勇 (2836)
坡耕地薄层紫色土-岩石系统中氮磷的迁移特征	鲜青松, 唐翔宇, 朱波 (2843)
微生物强化组合浮床净化微盐碱水体的效果	陈友媛, 吴亚东, 孙萍, 吴丹 (2850)
氧化镁基生物炭高效去除水体中磷的特性	王彬斌, 林景东, 万顺利, 何锋 (2859)
Pd/Fe ⁰ 双金属复合催化纤维降解水中痕量亚硝基二甲胺	张环, 傅敏, 魏俊富, 王一冰, 安慧颖, 沈书怡 (2868)
针铁矿、磁铁矿和石膏对 2,4-二氯苯酚厌氧降解的影响	孔殿超, 周跃飞, 陈天虎, 王进, 李碧 (2875)
污水再生过程中消毒副产物前体物转化规律	韩慧慧, 缪恒峰, 张雅晶, 陆敏峰, 黄振兴, 阮文权 (2883)
微生物燃料电池改性阳极处理 PTA 废水	孙靖云, 范梦婕, 陈英文, 祝社民, 沈树宝 (2893)
水稻秸秆浸泡液对蓝藻和绿藻生长选择性抑制作用	苏文, 陈洁, 张胜鹏, 孔繁翔 (2901)
沼液 SBR 处理出水养殖螺旋藻	蔡小波, 郁强强, 刘锐, 赵远, 陈吕军 (2910)
K ⁺ 强化高盐环境下厌氧氨氧化脱氮效能	吴国栋, 于德爽, 李津, 周同, 王晓静 (2917)
包埋氨氧化细菌短程硝化的高效稳定运行	于濛雨, 刘毅, 田玉斌, 石欢, 徐富, 杨宏 (2925)
ANAMMOX 的快速启动及 EPS 在 ANAMMOX 颗粒污泥中的空间分布	李惠娟, 彭聪聪, 陈国燕, 姚倩, 卓杨, 王彬斌 (2931)
厌氧氨氧化污泥中氨氧化的潜在电子受体	李祥, 林兴, 王凡, 袁砚, 黄勇, 袁怡, 毕贞, 刘忻, 杨朋兵 (2941)
基于厌氧氨氧化的含氮废气原位处理	林兴, 王凡, 袁砚, 李祥, 黄勇, 袁澄伟 (2947)
基于污泥资源化利用的粗放型绿色屋顶生长基质的组成	沈庆然, 李田, 曹熠, 潘奥 (2953)
罗红霉素短期冲击对活性污泥中氨氧化微生物丰度和多样性的影响	高景峰, 孙丽欣, 樊晓燕, 潘凯玲, 李定昌 (2961)
不同盐度下活性污泥中微生物群落变化规律及其处理模拟染料废水	周贵忠, 许硕, 姚倩, 银钗 (2972)
CO ₂ -咸水-砂岩相互作用过程中微生物群落结构动态变化特征	王博强, 李晨阳, 卢伟, 樊昊, 张冬至, 汪治, 吕聪, 沈福东 (2978)
油菜/玉米轮作农田土壤呼吸和异养呼吸对秸秆与生物炭还田的响应	田冬, 高明, 黄容, 吕盛, 徐畅 (2988)
模拟气候升温对湿地土壤微生物群落及磷素形态的影响	腾昌运, 沈建国, 王忠, 王行, 李鸿毅, 张志剑 (3000)
秦岭红桦林土壤细菌群落剖面分布特征及其影响因素	杜璨, 许晨阳, 王强, 张帆, 马武功, 和文祥, 侯琳, 耿增超 (3010)
微生物对汞矿区农田土壤汞甲基化的影响	贾钦, 朱雪梅, 王琪, 傅海辉, 郝亚琼, 何洁, 杨子良 (3020)
施用海泡石对铅、镉在土壤-水稻系统中迁移与再分配的影响	方至萍, 廖敏, 张楠, 吕婷, 黄小斌 (3028)
BS + CTMAB 复配修饰在黄棕壤吸附苯酚上的应用	刘伟, 孟昭福, 任爽, 李文斌 (3036)
1999 年与 2014 年贡嘎山峨眉冷杉枝和叶中常见重金属的生物富集特征对比	李芬, 王训, 罗辑, 袁巍, 喻子恒, 商立海 (3045)
铅锌尾矿污染区 3 种菊科植物体内重金属的亚细胞分布和化学形态特征	朱光旭, 肖化云, 郭庆军, 张忠义, 杨曦, 孔静 (3054)
膨润土调质对污泥堆肥的脱毒及重金属钝化和雌酮消除作用	周莉娜, 蔡函臻, 李荣华, 王美净, 赵军超, 王权, 张增强 (3061)
餐厨垃圾与秸秆混合中温和高温厌氧消化对比	郭香麟, 左剑恶, 史绪川, 王凯军, 李静 (3070)
我国村镇生活垃圾可燃组分基本特征及其时空差异	晏卓逸, 岳波, 高红, 李志龙, 黄启飞, 聂小琴, 汪群慧 (3078)
甲烷催化还原 NO _x 中 Co 基/分子筛催化剂的助剂和载体优化	潘华, 建艳飞, 陈宁娜, 刘红霞, 何焱, 贺亚飞 (3085)
《环境科学》征稿简则 (2737) 《环境科学》征订启事 (2809) 信息 (2867, 2971, 3027)	

CO₂-咸水-砂岩相互作用过程中微生物群落结构动态变化特征

王博强¹, 李晨阳¹, 卢伟¹, 樊昊¹, 张冬至¹, 汪治¹, 吕聪^{1*}, 沈福东^{2*}

(1. 吉林大学地下水资源与环境教育部重点实验室, 长春 130021; 2. 黑龙江省有色金属地质勘查研究总院, 哈尔滨 150046)

摘要: 采用 MiSeq 高通量测序技术, 分析 CO₂-咸水-砂岩相互作用过程中微生物群落结构及多样性的动态变化特征。结果表明 CO₂ 注入咸水层后, 部分微生物可在极端条件(高温、酸性)下生长。在 CO₂-咸水-砂岩相互作用过程中, 微生物菌属种类趋于单一, 变形菌门相对丰度最终达到 99.77%。优势菌属在群落结构变化过程依次为假单胞菌属、柠檬酸杆菌属及短波单胞菌属。同时, CO₂ 注入后还存在着芽孢杆菌属、嗜氢菌属、根瘤菌属等微生物群落结构变化过程中特有的微生物菌群; 随着 CO₂ 注入时间的延长, 香农指数逐渐变小, 辛普森指数逐渐变大, 表明微生物群落结构变化过程中, 细菌多样性显著降低, 且变化过程中所发现的芽孢杆菌属、柠檬酸杆菌属、假单胞菌属等菌属均能够促进 CO₂ 在微生物介导的 CO₂-咸水-砂岩相互作用过程中的溶解/沉淀捕获。此外, 注入 CO₂ 后香农指数从 5.330 2 降至 1.946 5, 表明生物多样性显著减少。研究发现, 以上几类菌属对钾、钠长石类矿物以及绿泥石的溶蚀有着积极的作用, 同时也促进了方解石、菱铁矿等矿物的生成。反之, CO₂-咸水-砂岩相互作用过程中矿物溶解或沉淀过程导致的 pH 的变化, 水化学组分中的阴阳离子浓度的变化等, 与微生物群落结构变化存在着密切的关系。

关键词: CO₂ 捕获; 高温; 咸水; 微生物群落结构; 宏基因组

中图分类号: X172 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)07-2978-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.201612067

Shift of Microbial Communities During the CO₂-Brine-Sandstone Interaction Process

WANG Bo-qiang¹, LI Chen-yang¹, LU Wei¹, FAN Hao¹, ZHANG Dong-zhi¹, WANG Zhi¹, LÜ Cong^{1*}, SHEN Fu-dong^{2*}

(1. Key Laboratory of Groundwater Resources and Environment, Ministry of Education, Jilin University, Changchun 130021, China; 2. Nonferrous Metal Geological Exploration and Research Institute of Heilongjiang Province, Harbin 150046, China)

Abstract: In this study, the dynamic variation of the structure, functionality and biodiversity of indigenous microorganism during the CO₂-brine-sandstone interaction process was investigated using MiSeq sequencing techniques. The results indicated that some kinds of indigenous microorganisms could grow well under the extreme condition induced by CO₂-injection. After injection of CO₂, the species of indigenous microorganisms tended to be single and the relative abundance of Proteobacteria reached up to 99.77% after 6 months. The dominant species varied as follows: *Pseudomonas* sp., *Citrobacter* sp. and *Brevundimonas* sp.. Meanwhile, some special genera such as *Bacillus* sp., *Hydrogenophaga* sp. and *Rhizobium* sp. with functionality of iron-reducing and denitrification were found in this study, which may have a potential effect on the capture and storage of CO₂. In addition, the Shannon index decreased from 5.330 2 to 1.946 5 after injection of CO₂, suggesting that the biodiversity reduced significantly. Function and main metabolites analysis of bacteria in the CO₂-brine-sandstone interaction process showed that bacteria like *Bacillus* sp., *Citrobacter* sp. and *Pseudomonas* sp. could enhance CO₂ solubility-trapping process. Bacteria metabolisms could accelerate the dissolution of feldspar and chlorites, and facilitate the formation of transition-state calcite and siderite. Otherwise, the great variation was mainly attributed to the change of condition driven by CO₂-brine-sandstone interactions, such as pH and the chemical composition of brine water(anion and cation), etc.

Key words: CO₂ capture; high temperature; brine; microbial community structure; metagenomics

随着工业化和经济的不断发展,化石燃料的燃烧所排放的温室气体正引起人类的广泛关注^[1]。国际上提出了许多应对全球气候变化的新方法和新技术,其中,二氧化碳捕获与封存技术(carbon capture and storage, CCS)是目前国际社会公认的应对气候变化的重要对策和显著减少温室气体排放量的有效技术手段之一^[2, 3]。目前,一些国家(如美国、加拿

大、挪威等)相继开展了 CCS 的技术研究和工程实践^[4, 5], 而我国仍处于起步阶段。

收稿日期: 2016-12-08; 修订日期: 2017-02-08

基金项目: 国家自然科学基金项目(41472214)

作者简介: 王博强(1990~), 男, 硕士, 主要研究方向为微生物介导的 CO₂ 咸水层封存过程的生物地球化学行为, E-mail: lemonpod@163.com

* 通信作者, E-mail: lvcong@jlu.edu.cn; 13936314406@163.com

深部咸水层因分布广泛和储存容量大而被认为是 CO₂ 地质储存的理想储层^[6, 7],而在咸水层中,微生物是不可缺少的生命群落,且数量巨大,种类繁多^[8]. 微生物的参与对于 CO₂-水-岩相互作用过程的演化起着非常重要的作用,特别是其动力学过程. 它可以作为反应酶加快反应速率,或者以反应物的身份参与到反应中从而改变矿物溶解/沉淀的速率^[9, 10]. 因此,微生物群落的结构、功能及其多样性会随着 CO₂ 溶解-沉淀捕获过程做出动态的响应变化^[11~13]. 研究初期发现,CO₂-水-岩作用过程中矿物溶解或沉淀过程可以导致离子强度或终端电子受体分布(如三价铁离子)发生变化,进而影响微生物新陈代谢^[14~16]. 随后, Fierer 等^[17]发现 CO₂ 注入后由于碳酸的形成导致 pH 降低,从而对微生物多样性产生显著影响. 随后,学者们发现了这些变化对 CO₂ 地质储存过程中的地球化学及矿物学均会产生重要的影响作用^[18, 19]. 然而,目前关于“微生物群落对 CO₂-水-岩作用过程中地球化学变化的响应”的认知较少,且国内尚未见报道.

因此,基于我国某 CO₂ 储层场地情况,本文开展了微生物介导的 CO₂-咸水-砂岩作用的模拟实验研究. 本文采用 MiSeq 高通量测序技术^[20, 21],深入探究 CO₂ 捕获过程中微生物群落结构的动态变化特征,以期揭示 CO₂ 地质储存过程的微生物学响应机制提供科学的理论依据.

1 材料与方法

1.1 实验材料

1.1.1 实验材料

实验菌种通过对某灌注场地深度 600 m 地下咸水层水样进行离心获得. 气体选用纯度为 99.5% 的 CO₂ 气体. 所用样品为某场地砂岩岩心,实验前,将岩心样品加工成 10 mm × 10 mm × 1 mm 的试件. 本实验温度设定为 50℃, pH 值为 5^[22]. 咸水成分组成, Na⁺: 7 667 mg·L⁻¹, Ca²⁺: 2 955 mg·L⁻¹, K⁺: 197 mg·L⁻¹, Mg²⁺: 37 mg·L⁻¹, NO₃⁻: 0.197 6 g·L⁻¹, Cl⁻: 13 731 mg·L⁻¹, SO₄²⁻: 1 000 mg·L⁻¹, 酵母膏: 0.02 g·L⁻¹^[20].

1.1.2 实验试剂及仪器

Qubit2.0 DNA 检测试剂盒(上海生工生物工程有限公司),生工琼脂糖回收试剂盒(cat:SK8131),PBS 缓冲溶液(pH7.0),无水乙醇,氯仿,10 × TE Buffer,1% 的琼脂糖凝胶,Trans15k Marker,DL2000 DNA Marker,2 × PCR Mix Buffer,RNasefree-ddH₂O,

移液枪,1.5 mL 离心管,50 mL 离心管,天平,烧杯,涡旋振荡器,水浴锅,制冰机,TGL-16M 微量高速离心机,PCR 仪,凝胶成像仪,电泳槽.

1.1.3 实验反应釜装置

实验设备为容积 200 mL 的高温高压反应釜,置于可恒温控制的加热装置内,反应釜最高工作压力为 25 MPa,加热装置最高工作温度为 120℃. 取样装置采用自行设计的取样管,连接反应釜体进行取样操作,反应釜与取样装置如图 1 所示.

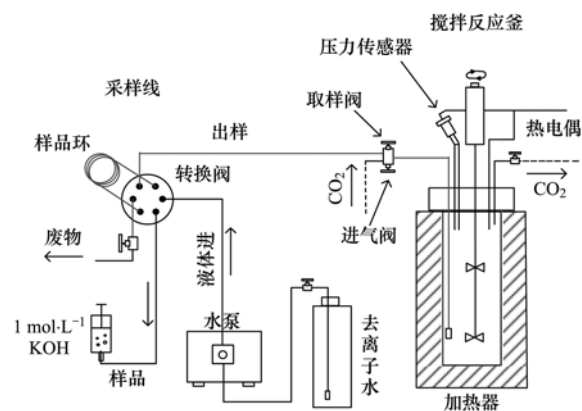


图1 实验装置设计示意

Fig. 1 Design of experimental device

1.2 实验方法

1.2.1 摇瓶实验

在厌氧培养箱中,取离心后的菌样加入到已灭菌的 MSM 培养基中,在 MSM 培养基中通入 CO₂ 气体,并将培养瓶的顶空部分充满 CO₂ 气体,用锡箔纸密封瓶口. 于 55℃、110 r·min⁻¹ 的恒温振荡培养箱中连续培养至浑浊.

1.2.2 反应釜模拟实验

将培养瓶中的菌样离心(10 mL 离心管),去上清液,倒入配置好的地层水漩涡振荡混匀,在厌氧培养箱中向反应釜中投加离心后的菌样,岩样 17 g,地层水样 170 mL,即固液比为 1:10. 并充入 CO₂ 气体至压力为 3 MPa,在 55℃ 条件下连续运行,每 60 d 进行一次取样,样品按取样周期编号,分别为 0 M: 初始样品;2 M: 反应进行到 2 个月时的样品;4 M: 反应进行到 4 个月时的样品;6 M: 反应进行到 6 个月时的样品. 通过分析细菌 16S rRNA 基因高通量测序结果,研究 CO₂-咸水-砂岩作用过程中微生物群落变化特征.

1.2.3 基因组 DNA 提取

参照 OMEGA 土壤提取试剂盒说明书进行提取. 此具体步骤如下:称取 500 mg 玻璃珠于 10 mL

离心管中,并加入 1 mL SLX MLUS 缓冲液,混匀 3 ~ 5 min;加入 100 μ L DS 缓冲液并混匀;70℃ 水浴 10 min,持续振荡(为使菌类裂解完全可以提高温度至 90℃);3 000 $r \cdot \min^{-1}$ 室温离心 3 min,取 800 μ L 上清液至干净 2 mL 离心管中,加入 270 μ L SP2 缓冲液,振荡混匀;冰浴 5 min,11 000 $r \cdot \min^{-1}$ 4℃ 离心 5 min;取上清到新 2 mL 离心管中,并加入 0.7 倍体积的异丙醇(预冷处理),倒转离心管混匀,在 -20℃ 放置 1 h;11 000 $r \cdot \min^{-1}$, 4℃ 离心 10 min,收集 DNA;小心除去上清,倒置管于吸水纸上 1 min;加入 70℃ 预热 Elution 200 μ L 振荡,65℃ 水浴约 15 min 溶解 DNA,并重复两次. 将抽取的基因组 DNA 用 0.8% 的琼脂糖凝胶电泳检测,以检测其完整性.

1.3 高通量测序分析

针对细菌 16S rRNA 基因 V3 + V4 区设计含 barcode 的特异引物 341F/805R^[23],引物序列如下.

341F 引物:CCCTACACGACGCTCTTCCGATCTG (barcode) CCTACGGGNGGCWGCAG

805R 引物:GACTGGAGTTCCTTGGCAGCCGAG AATTCCAGACTACHVGGGTATCTAATCC

PCR 扩增采用 20 μ L 反应体系: 5 $\times$ FastPfu Buffer 4 μ L, 2.5 mmol $\cdot$ L⁻¹ dNTPs 2 μ L, 引物 338F/806R 各 0.4 μ L, *Taq* 酶 0.4 μ L, 模板 1.0 μ L, ddH₂O 12.2 μ L. PCR 条件: 95℃ 变性 120 s; 95℃ 30 s, 55℃ 30 s, 72℃ 30 s, 30 个循环;最后 72℃ 5 min 延伸. PCR 产物经过 2% 琼脂糖凝胶电泳检测,条带清晰,片段大小合适(430bp 左右),使用生工琼脂糖回收试剂盒(cat: SK8131) 切胶回收 PCR 产物,以 Tris-HCl 洗脱后连接“Y”接头,使用磁珠筛选去除接头自连片段,按照每个样品测一万条序列加入 1 ng PCR 产物的标准富集 PCR 产物,然后用 0.1 mol $\cdot$ L⁻¹ 的 NaOH 溶液变性,获得单链 DNA 片段,构建测序文库后在 16S-338F-806R MiSeq 平台进行高通量测序[生工生物工程(上海)股份有限公司].

1.4 数据分析

数据分析流程如下.

(1)数据预处理 采用 Flash 软件融合双末端序列,而后通过各样品 barcode 使数据回归样品,并对各样本序列做 QC.

(2)去除非靶区域序列及嵌合体.

(3)物种分类 采用 RDP classifier 将序列进行物种分类,对每个样本和每个物种单元分类进行序列丰度计算,构建样本和物种分类单元序列丰度矩阵.

(4)OTU 聚类 将多条序列根据其序列之间的距离来对它们进行聚类,后根据序列之间的相似性作为阈值分成操作分类单元(OTU).

(5)Alpha 多样性分析 计算各种物种多样性指数(香农指数、辛普森指数、ACE 指数、Chao1 指数等),衡量样本物种多样性.

(6)Beta 多样性分析 Beta 多样性指标用来比较多组样本之间的差别度量,将代表性序列比对照参考核心 16S rDNA 序列,根据多序列队列构建代表性序列为节点的进化树,利用 Unifrac 算法计算得出样本距离、样本聚类、样本 PCOA.

2 结果与讨论

2.1 基于 OTU 数量的细菌鉴定

在门和属的分类水平上分别对微生物介导的 CO₂-咸水-岩反应实验菌群组成进行鉴定,结果表明 CO₂ 注入后不同时期的优势菌种类不同,且各时期优势菌的数量分布存在较大差异. 基于 0 M、2 M、4 M 和 6 M 样品中全部 OTU 做 Venn 图,比较 4 个样品间的差异. 不同时期样品有效 OTU 总数为 7 607 个,各个时期下共有 OTU 数为 649 个(图 2),占 OTU 总数的 8.53%. 其中 0M 特有的 OTU 数为 5 376 个,对应的细菌主要是杆菌属(*Lysinibacillus*)、气单胞菌属(*Aeromonas*)、寡养单胞菌属(*Stenotrophomonas*)、琥珀酸弧菌属(*Succinivibrio*)和高温脱硫杆菌属(*Thermodesulfobacterium*)等,占 OTU 总数的 70.67%;2M 特有的 OTU 数为 762 个,对应的细菌主要是金黄杆菌属(*Chryseobacterium*)、嗜氢菌属(*Hydrogenophaga*)等,占 OTU 总数的 10.02%;4M 特有的 OTU 数为 194 个,对应的细菌主要是罗尔斯通菌属(*Ralstonia*)等,占 OTU 总数的 8.23%;6 M 特有的 OTU 数为 626 个,对应的细菌主要是支原体属(*Mycoplasma*)、嗜二氧化碳嗜细胞菌属(*Capnocytophaga*)、苯基杆菌属(*Phenylobacterium*)等,占 OTU 总数的 2.55%. 由此可知,微生物介导的 CO₂-咸水-砂岩反应实验不同时期均具有一定比例的特有菌属,在初始水样相同的前提下,CO₂-咸水-砂岩相互作用所引起的 pH 降低、水化学组分变化、离子强度或终端电子接受过程的变化均可能是造成体系菌群结构差异的因素^[24, 25].

2.2 菌群结构及功能动态变化特征

对全部样品的有效序列进行归类操作分析,统计不同分类单元所对应的细菌门类及相对丰度,见表 1.

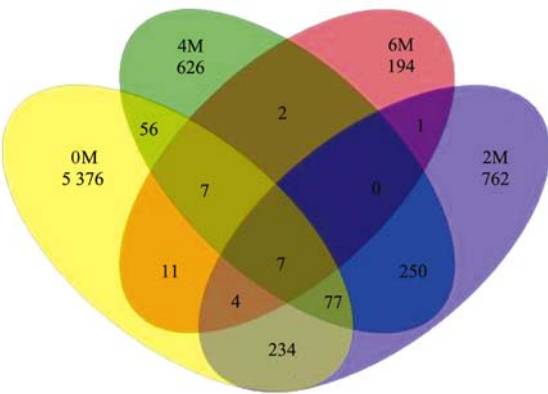


图2 微生物介导的CO₂-咸水-砂岩反应实验
不同时期样品间共有 OTU 分析

Fig. 2 Shared OTU analysis of the samples collected in different stages of CO₂-water-rock interaction mediated by microorganisms

表1 各样品优势细菌门类及相对丰度/%

Table 1 Advantageous bacterial phyla and the relative abundance of each sample/%

项目	0 M	2 M	4M	6 M
变形菌门	47.29	79.13	92.27	99.77
厚壁菌门	37.00	3.46	4.90	0.03
拟杆菌门	8.05	14.12	0.66	0.03
放线菌门	1.48	1.11	0.91	0.01

有研究表明,不同时期下不同样品间的菌群结构存在较大差异. 变形菌门在各样品中相对丰度均最大,且随时间推移逐步增大,在 0M、2M、4M、6M 中分别占 47.29%、79.13%、92.27%、99.77%;2M 中厚壁菌门占 3.46%,拟杆菌门占 14.12%,放线菌门占 1.11%;4M 中厚壁菌门占 4.90%,拟杆菌门占 0.66%,放线菌门占 0.91%;6M 中厚壁菌门占 0.03%,拟杆菌门占 0.03%,放线菌门占 0.01%.

通过 RDP 分析,每个样品相对丰度最高的前 10 个菌属,在属水平上对每个样品的菌群结构及分布进行统计分析(图3). 结果表明,0M 中可分类的细菌主要是假单胞菌科(Pseudomonadales)的假单胞菌属(16.77%),其他按丰度由高到低依次为杆菌属(*Lysinibacillus*)、气单胞菌属(*Aeromona*)、寡养单胞菌(*Stenotrophomonas*)、普氏菌属(*Prevotella*)和颤杆菌科(*Oscillibacter*);2M 中主要是假单胞菌科(Pseudomonadales)的假单胞菌属(24.18%),柠檬酸杆菌属(12.35%)、甲基杆菌属(11.8%)和金黄杆菌属(10.99%);4M 中主要是柠檬酸杆菌属(41.34%)、甲基杆菌属(25.57%)、肠杆菌属(5.76%);6M 中主要是柄杆菌科

(Caulobacteraceae)的 *Brevundimonas* 属(83.97%),根瘤菌科(Rhizobiaceae)的 *Rhizobium* 属(12.48%),鞘脂单胞菌科(Sphingomonadaceae)的 *Sphingomonas* 属(2.43%)等,相对丰度差异较显著. 由数据可知,实验前4个月时的优势菌属为假单胞菌属和柠檬酸杆菌属,这两类优势菌属中均存在硝酸盐还原菌种^[26, 27]. 随着 CO₂ 注入时间的推移,酵母膏作为氮源消耗明显,假单胞菌属与柠檬酸杆菌属已无法适应高温,酸性的咸水环境,进一步表明硝酸根浓度及终端电子接受过程的改变均会对 CO₂ 捕获过程造成影响. 当 CO₂ 注入6个月时刻,随着假单胞菌属与柠檬酸杆菌属数量明显下降,短波单胞菌属开始展现对环境的高适应性并且数量显著上升,成为优势菌属. 根据 16S rDNA 测序结果得知,在微生物介导的 CO₂-咸水-砂岩反应实验过程中,存在着能够在高温,酸性咸水环境中存活的微生物(表2),且具有某种特定的功能,如铁还原作用,反硝化作用等^[28~32],这些作用的发生,同样可以证明在微生物群落结构发生变化的同时,对 CO₂ 捕获过程也造成了潜在的影响.

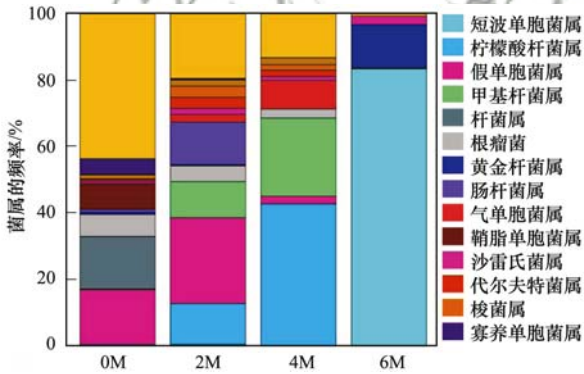


图3 样品中属水平细菌种群结构及分布

Fig. 3 Bacterial communities and distribution of the samples at the genus level

表2 细菌功能

Table 2 Function of the bacteria

细菌	功能	文献
<i>Bacillus</i>	铁还原作用	[27]
	反硝化作用	[26]
<i>Hydrogenophaga</i>	反硝化作用	[28]
<i>Citrobacter</i>	硝酸盐还原作用	[25]
<i>Pseudomonas</i>	反硝化作用	[24]
	铁还原作用	[29]
<i>Rhizobium</i>	反硝化作用	[30]

2.3 细菌多样性

以 97% 相似性水平为标准划分可操作分类单元(OTU),0M、2M、4M 和 6M 样品数据分别可划分

为1 494、1 470、1 237及296 个 OTU,主要代表变形菌门(Proteobacteria)、厚壁菌门(Firmicutes)、拟杆菌门(Bacteroidetes)和放线菌门(Actinobacteria)4 个优势菌门. 基于随机选取一定数量的测序序列及其对应的 OTU 种类得到的稀释性曲线如图4 所示.

通过样品测序序列计算各样品中细菌多样性指数(表3),其中0M 样品的香农指数最大为5.330 2,辛普森指数最小为0.032 8,即微生物介导的CO₂-咸水-砂岩反应实验初始时刻的细菌多样性最高;6M 样品的香农指数最小为1.946 5,辛普森指数最大为0.375 5,表明CO₂ 注入6 个月时的细菌多样性最低. 综合分析各个时期各样品的细菌多样性,发现随着微生物介导的CO₂-咸水-砂岩反应时间的延长,实验菌群多样性逐渐降低,表明在高温、酸性的咸水条件下微生物多样性随着CO₂注入时间的延

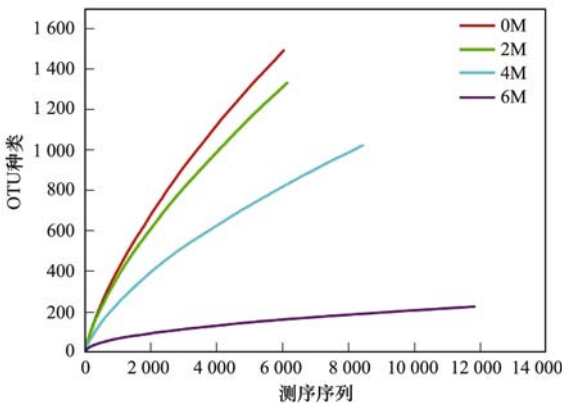


图4 稀疏性曲线
Fig. 4 Rarefaction curves

长,对于环境的适应性逐渐降低,CO₂ 注入6 个月时菌群单一性明显.

表3 基于16Sr DNA 基因序列的细菌多样性指数
Table 3 Bacterial diversity index based on16S rDNA gene sequences

样品	有效序列数	可操作分类单元	香农指数	辛普森指数	ACE 指数
0M	6 040	1 494	5.330 2	0.032 8	8 297.44
2M	6 140	1 470	5.157 3	0.034 5	7 629.61
4M	8 441	1 237	3.616 3	0.171 5	5 004.35
6M	11 811	296	1.946 5	0.375 5	691.951

为了解微生物介导的CO₂-咸水-砂岩反应不同时期实验菌群结构的相似性,构建了样品聚类关系树的热图(图5). 图5 的不同颜色代表不同的相对丰度,图顶端为样品间聚类关系树. 结果显示,2M 与4M 相对丰度分布较为类似,然后依次为0M 和6M,结合各样品间菌群的进化关系,本次研究发现实验菌群的进化关系与CO₂-咸水-砂岩相互作用时间有一定关系,CO₂ 注入6 个月时的菌群(6M)与初始时刻的菌群(0M)的进化关系差异十分明显. 不同样品主成分分析图分析结果显示,2M 和4M 聚集明显,说明CO₂ 注入两个月时刻与4 个月时刻的菌群结构相似度高;0M 与6M 空间距离较远,说明随着反应时间的延长,6 个月时与初始菌群相比相似度差异较大(图6).

2.4 微生物群落变化过程中功能总结

本文中发现的几种微生物菌属及其主要代谢产物如表4 所示,其主要代谢产物有小分子有机酸和CH₄、H₂ 等气体,根据表5 可知,产生低分子量的短链有机脂肪酸如甲酸、乙酸、丙酸等,可以有效地促进储层沉积的碳酸盐的溶蚀,产生的CH₄、H₂ 等气体能够提高渗透率并溶蚀碳酸盐,这些微生物菌属及主要代谢产物对矿物的溶解捕获存在积极的作

用. 这也可以证明在微生物群落结构发生变化的同时,对CO₂ 捕获过程也造成了潜在的影响.

表4 微生物在CO₂-水-岩相互作用过程中的作用
Table 4 Function of bacteria in the CO₂-brine-sandstone interaction process

产物	作用
小分子有机酸	增大孔隙度和渗透率 溶蚀碳酸盐
气体(CH ₄ 、H ₂ 、N ₂)	增加地层压力 溶蚀碳酸盐,提高渗透率
有机溶剂	溶解孔喉中重质组分
生物表面活性物质	降低界面张力 湿润性改变
生物类聚合物	选择性堵塞高渗透层
微生物菌体	选择性堵塞高渗透层 改善岩石表面湿润性

表5 微生物主要菌属及其特征
Table 5 Main microbial groups and their characteristics

类型	菌属	需氧情况	主要特征和适应环境
弧状	弧菌属	兼性厌氧	有鞭毛、对酸敏感
短杆菌	气单胞杆菌属	兼性厌氧	有鞭毛、有些产酸
杆菌	埃希氏杆菌属	兼性厌氧	有鞭毛、荚膜
	肠杆菌属	兼性厌氧	有鞭毛、产酸、产气
	芽孢杆菌属	兼性厌氧	有鞭毛、荚膜、嗜热产酸
	柠檬酸杆菌属	兼性厌氧	有鞭毛、产酸产气

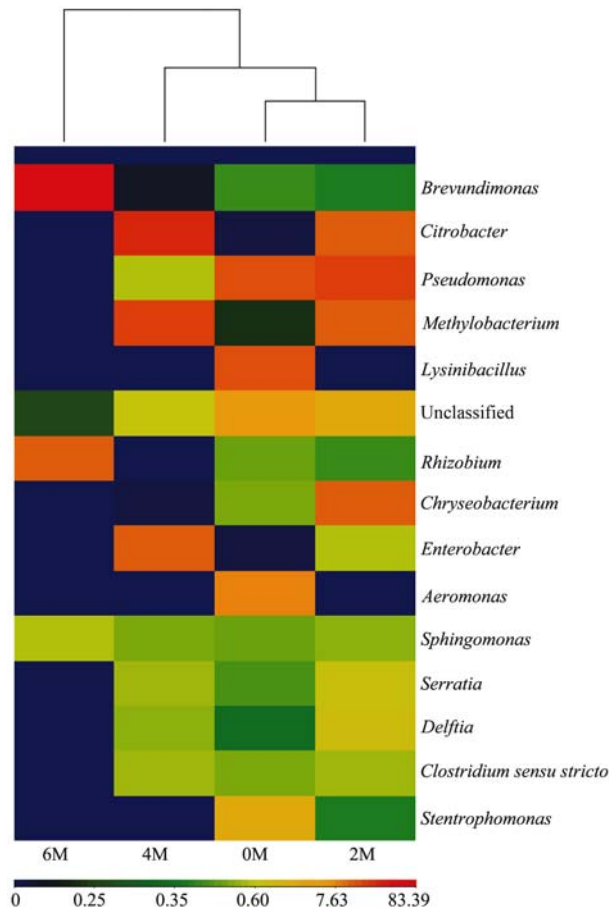


图5 聚类热图
Fig. 5 Clustered heatmap

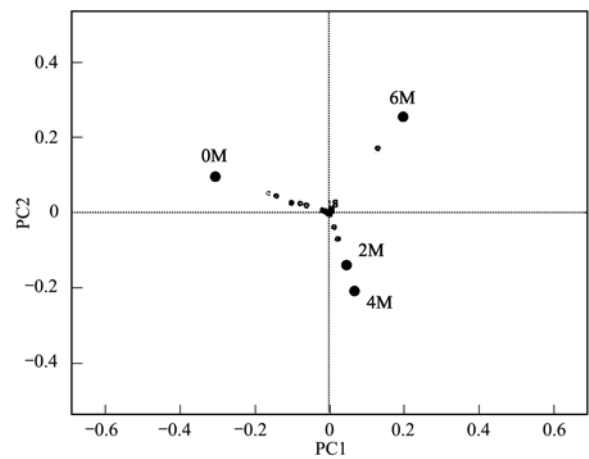


图6 不同样品主成分分析
Fig. 6 Principal component analysis of samples

2.5 原生矿物的溶蚀

根据图7水化学组分变化情况可知,CO₂-咸水-砂岩的相互作用进行到6个月时,Na⁺、K⁺、Mg²⁺离子溶出量均有所上升.

结合图8及图9电镜照片及能谱图片可知长石与绿泥石发生溶蚀现象.这主要是由于各时期特有的菌属如气单胞菌属、肠杆菌属、芽孢杆菌属等,以及CO₂-咸水-砂岩的相互作用过程进行到2个月及4个月时的优势菌属柠檬酸杆菌属,均具有代谢小分子有机酸的特征,使微生物所在岩石表面局部

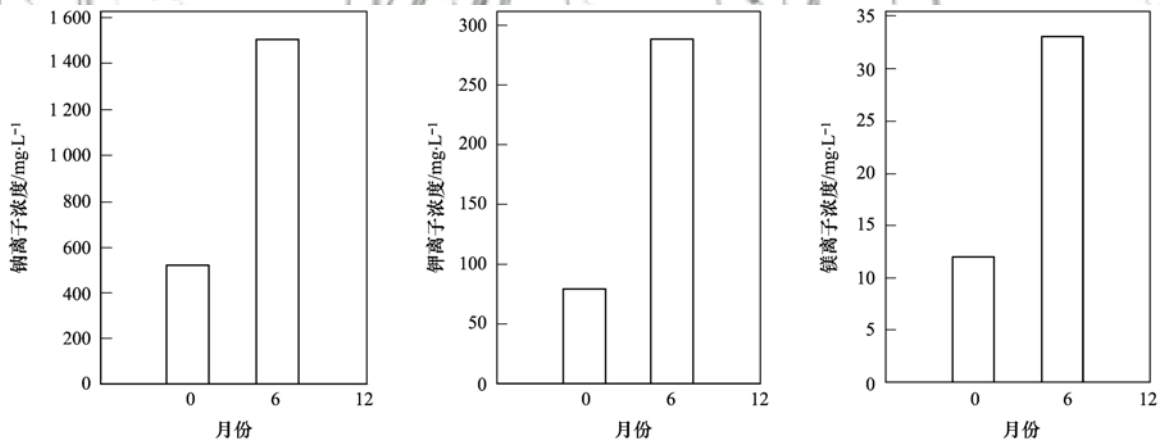


图7 原生矿物溶蚀
Fig. 7 Erosion of primary minerals

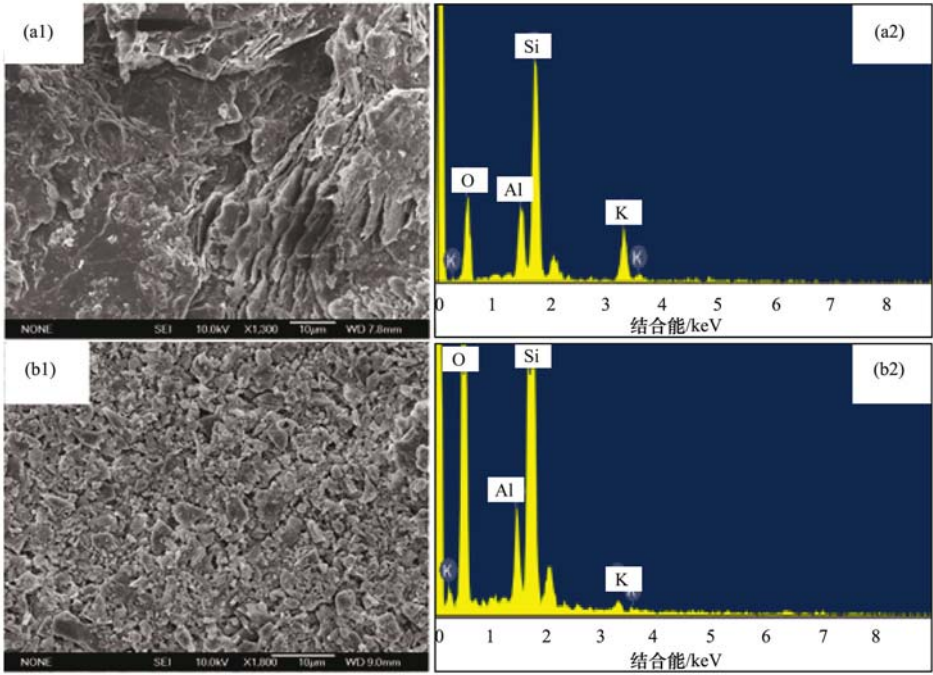
pH降低,从而促进长石的溶蚀.这说明,在微生物的参与下,微生物的生命代谢活动可以促进长石及绿泥石更为剧烈的溶蚀,进而促进二氧化碳的矿物捕获.反之其对微生物群落结构及多样性也存在着影响作用.

2.6 新矿物的生成

韩金鑫等^[33]发现,假单胞菌属所产生的代谢产

物碳酸酐酶能够促进CO₂的水合作用,诱导钙离子与碳酸根结合生成为碳酸钙.

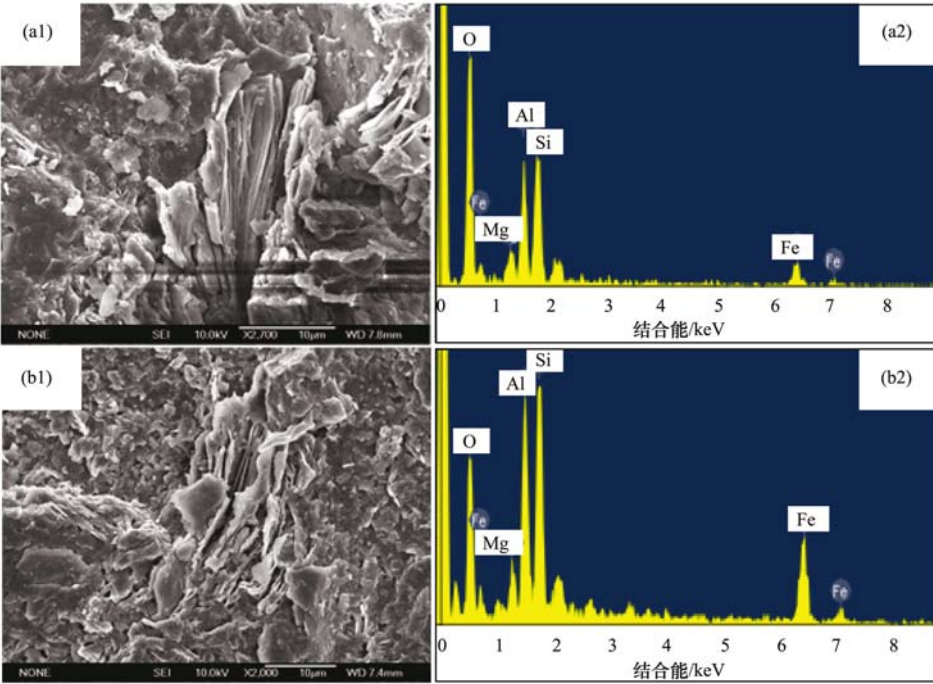
微生物介导的CO₂-咸水-砂岩相互作用过程中新矿物的生成情况如图10所示.从电镜结果可以看出,微生物介导的CO₂-咸水-砂岩相互作用实验进行到6个月时,发现了晶相比较好的方解石.这说明在微生物(假单胞菌属)的参与下,促进了含钙碳



(a1) 原始岩样表面;(b1) 6 个月后岩石表面;长石的溶蚀 EDS 图谱;(a2) 原始岩样;(b2) 6 个月后岩样

图 8 长石的溶蚀 SEM 图

Fig. 8 SEM images of feldspars erosion



(a1) 原始岩样表面;(b1) 6 个月后岩石表面;长石的溶蚀 EDS 图谱;(a2) 原始岩样;(b2) 6 个月后岩样

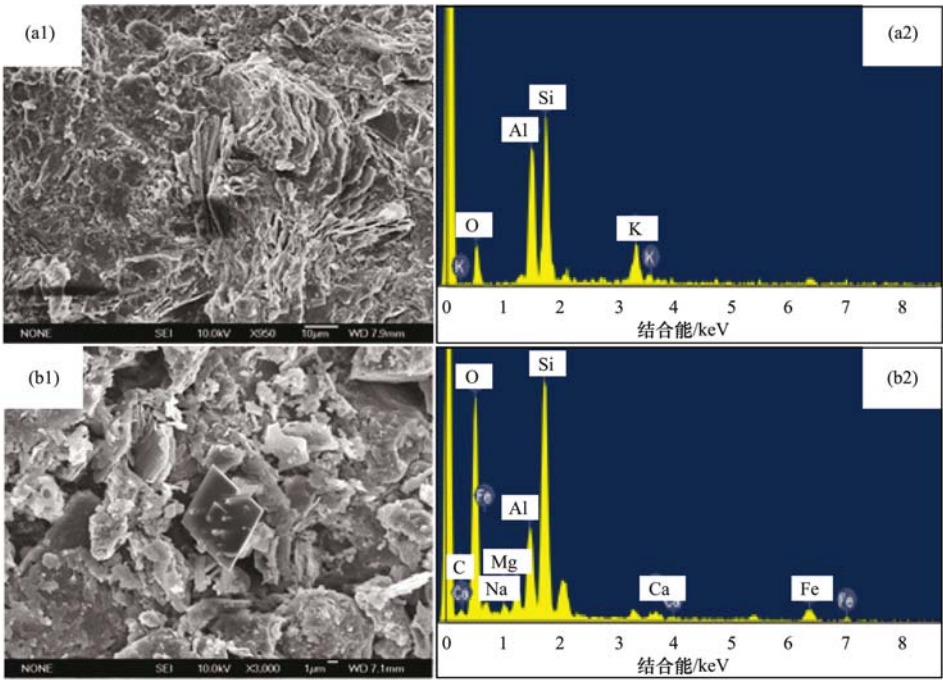
图 9 绿泥石的溶蚀 SEM 图

Fig. 9 SEM images of chlorite erosion

酸盐矿物的沉淀捕获.

微生物介导的 CO_2 -咸水-砂岩相互作用进行到 6 个月时,有含铁碳酸盐的生成. 结合微生物群落结构数据可知,本实验存在微生物介导的 CO_2 -咸水-砂岩相互作用初始时刻及 2 个月时的优势菌属

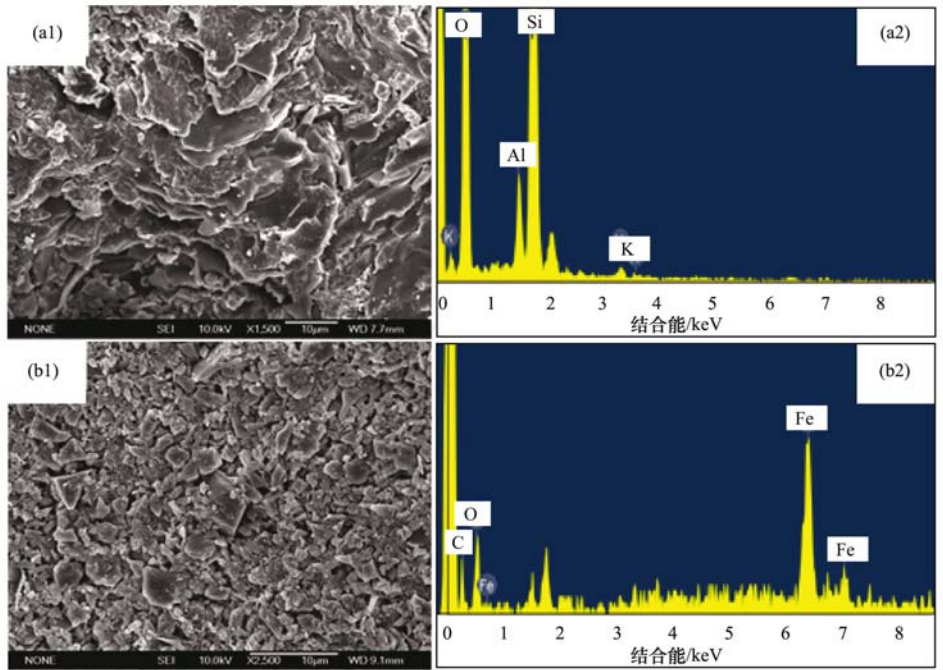
假单胞菌属,某时期特定菌属芽孢杆菌属等微生物菌属,这两个微生物菌属具有铁还原作用(表 2),这些菌属能够利用 Fe^{3+} 、 Mg^{2+} 厌氧生长并将 Fe^{3+} 还原为 Fe^{2+} ,从而伴随更多的新矿物沉淀,这表明这类具有铁还原作用的菌属可以将菱铁矿形成的动力



(a1) 原始岩样表面;(b1) 6 个月后岩石表面;方解石的生成 EDS 图谱;(a2) 原始岩样;(b2) 6 个月后岩样

图 10 方解石的生成 SEM 图

Fig. 10 SEM images of calcite formation



(a1) 原始岩样表面;(b1) 6 个月后岩石表面;菱铁矿的生成 EDS 图谱;(a2) 原始岩样;(b2) 6 个月后岩样

图 11 菱铁矿的生成 SEM 图

Fig. 11 SEM images of siderite formation

学屏障降低,促进更多 Fe^{2+} 的溶出,从而说明微生物的参与促进了菱铁矿的生成. 微生物介导的 CO_2 -咸水-砂岩相互作用过程中,由于微生物的加入,进一步促进了菱铁矿的沉淀捕获. 反之由于亚铁离子浓度的变化,也会影响微生物群落结构及多样性.

3 结论

(1) CO_2 注入咸水层后,造成了不利于微生物生长的极端环境(高温,酸性的咸水环境),但本实验研究表明,部分微生物(如短波单胞菌、假单胞菌

及柠檬酸杆菌)可在极端条件下生长,进而导致群落结构、功能及多样性发生变化,并对 CO₂ 捕获过程造成潜在的影响作用。

(2)随着 CO₂ 的注入,微生物相对丰度趋于单一,变形菌门相对丰度最终达到 99.77%。优势菌属在群落结构变化过程依次为假单胞菌属,柠檬酸杆菌属及短波单胞菌属。同时,CO₂ 注入后还存在着芽孢杆菌属,嗜氢菌属,根瘤菌属等各个时期特有的微生物菌群。并且具有铁还原作用,反硝化作用等功能,从而对 CO₂ 的捕获与封存存在着潜在的影响作用。另外,随着 CO₂ 注入时间的延长,香农指数逐渐变小,辛普森指数逐渐变大,表明土著微生物群落结构变化过程中,细菌多样性逐渐降低。

(3)本研究中发现各时期特有的菌属如气单胞菌属、肠杆菌属、芽孢杆菌属等,以及 CO₂-咸水-砂岩的相互作用过程进行到 2 个月及 4 个月时的优势菌属柠檬酸杆菌属,均具有产酸或产气的特征,从而促进了长石、绿泥石及含钙碳酸盐的溶蚀。CO₂-咸水-砂岩的相互作用过程前 2 个月的优势菌属假单胞菌属,其代谢产物碳酸酐酶,能够促进 CO₂ 的水合作用,诱导钙离子与碳酸根结合生成为碳酸钙,即生成方解石。在微生物介导的 CO₂-咸水-砂岩相互作用过程中还发现了具有铁还原作用的菌属,如在微生物介导的 CO₂-咸水-砂岩相互作用初始时刻及 2 个月时的优势菌属假单胞菌属,某时期特定菌属芽孢杆菌属等,这些菌属能够利用 Fe³⁺、Mg²⁺ 厌氧生长并将 Fe³⁺ 还原为 Fe²⁺,从而伴随更多的新矿物沉淀,这表明这类具有铁还原作用的菌属可以促进菱铁矿的生成。

参考文献:

- [1] Maddali V, Tularam G A, Glynn P. Economic and time-sensitive issues surrounding CCS: a policy analysis [J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, **49**(15): 8959-8968.
- [2] Gough C. State of the art in carbon dioxide capture and storage in the UK: an experts' review [J]. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 2008, **2**(1): 155-168.
- [3] Zhang L J, Jun Y S. Distinctive reactivities at biotite edge and basal planes in the presence of organic ligands: implications for organic-rich geologic CO₂ sequestration [J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, **49**(16): 10217-10225.
- [4] Metz B, Davidson O, de Coninck H. IPCC Special report on carbon dioxide capture and storage [M]. New York: Cambridge University Press, 2005.
- [5] Benson S M, Cole D R. CO₂ sequestration in deep sedimentary formations [J]. *Elements*, 2008, **4**(5): 325-331.
- [6] Li C Y, Zhang F J, Lyu C, *et al.* Effects of H₂S injection on the CO₂-brine-sandstone interaction under 21 MPa and 70°C [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2016, **106**(1-2): 17-24.
- [7] Zhao J, Lu W, Zhang F J, *et al.* Evaluation of CO₂ solubility-trapping and mineral-trapping in microbial-mediated CO₂-brine-sandstone interaction [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2014, **85**(1): 74-85.
- [8] Whitman W B, Coleman D C, Wiebe W J. Prokaryotes: the unseen majority [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 1998, **95**(12): 6578-6583.
- [9] 李义曼, 庞忠和. 二氧化碳地质封存中的水-岩反应动力学模拟: 进展及问题 [J]. *吉林大学学报(地球科学版)*, 2012, **42**(S2): 352-360.
Li Y M, Pang Z H. Development and issue on kinetic model of water-rock interaction in CO₂ geological sequestration [J]. *Journal of Jilin University(Earth Science Edition)*, 2012, **42**(S2): 352-360.
- [10] 张凤君, 赵静, 王天野, 等. 土著微生物对 CO₂ 地质储存过程中水岩作用的影响 [J]. *吉林大学学报(地球科学版)*, 2013, **43**(2): 544-551.
Zhang F J, Zhao J, Wang T Y, *et al.* The effect of indigenous microorganisms on water-rock interaction during the geological storage of CO₂ [J]. *Journal of Jilin University(Earth Science Edition)*, 2013, **43**(2): 544-551.
- [11] Benzerara K, Yoon T H, Menguy N, *et al.* Nanoscale environments associated with bioweathering of a Mg-Fe-Pyroxene [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2005, **102**(4): 979-982.
- [12] Morozova D, Wandrey M, Alawi M, *et al.* Monitoring of the microbial community composition in saline aquifers during CO₂ storage by fluorescence *in situ* hybridisation [J]. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 2010, **4**(6): 981-989.
- [13] 曾国驱, 贾晓珊, 郑小红, 等. 硫酸盐还原反应器污泥驯化过程中微生物群落变化分析 [J]. *环境科学*, 2014, **35**(11): 4244-4250.
Zeng G Q, Jia X S, Zheng X H, *et al.* Analysis of microbial community variation in the domestication process of sludge in a sulfate-reducing reactor [J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(11): 4244-4250.
- [14] Liu D, Wang F P, Dong H L, *et al.* Biological reduction of structural Fe(III) in smectites by a marine bacterium at 0.1 and 20 MPa [J]. *Chemical Geology*, 2016, **438**: 1-10.
- [15] Miller H M, Matter J M, Kelemen P, *et al.* Modern water/rock reactions in Oman hyperalkaline peridotite aquifers and implications for microbial habitability [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2016, **179**: 217-241.
- [16] Mu A, Moreau J W. The geomicrobiology of CO₂ geosequestration: a focused review on prokaryotic community responses to field-scale CO₂ injection [J]. *Frontiers in Microbiology*, 2015, **6**: 263.
- [17] Fierer N, Jackson R B. The diversity and biogeography of soil bacterial communities [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2006, **103**(3): 626-631.
- [18] Ahmed E, Homström S J M. Microbe-mineral interactions: the impact of surface attachment on mineral weathering and element selectivity by microorganisms [J]. *Chemical Geology*, 2015, **403**: 13-23.
- [19] 田美, 刘汉湖, 申欣, 等. 百乐克(BIOLAK)活性污泥宏基因

- 组的生物多样性及功能分析[J]. 环境科学, 2015, **36**(5): 1739-1748.
- Tian M, Liu H H, Shen X, *et al.* Biodiversity and function analyses of BIOLAK activated sludge metagenome [J]. Environmental Science, 2015, **36**(5): 1739-1748.
- [20] Zhao J, Lu W, Zang F J, *et al.* Evaluation of CO₂ solubility-trapping and mineral-trapping in microbial-mediated CO₂-brine-sandstone interaction[J]. Marine Pollution Bulletin, 2014, **85**(1): 78-85.
- [21] Zhou J M, Zhou X M, Li Y G, *et al.* Bacterial communities in haloalkaliphilic sulfate-reducing bioreactors under different electron donors revealed by 16S rRNA MiSeq sequencing[J]. Journal of Hazardous Materials, 2015, **295**: 176-184.
- [22] 赵静. 微生物介导的 CO₂-水-砂岩相互作用实验研究[D]. 长春: 吉林大学, 2014.
- [23] Herlemann D P R, Labrenz M, Jürgens K, *et al.* Transitions in bacterial communities along the 2 000 km salinity gradient of the Baltic Sea[J]. The ISME Journal, 2011, **5**(10): 1571-1579.
- [24] Xu T F. Incorporating aqueous reaction kinetics and biodegradation into TOUGHREACT: applying a multiregion model to hydrobiogeochemical transport of denitrification and sulfate reduction[J]. Vadose Zone Journal, 2008, **7**(1): 305-315.
- [25] Mu A, Boreham C, Leong H X, *et al.* Changes in the deep subsurface microbial biosphere resulting from a field-scale CO₂ geosequestration experiment [J]. Frontiers in Microbiology, 2014, **5**: 209.
- [26] Xiao Z X, Awata T, Zhang D D, *et al.* Denitrification by *Pseudomonas stutzeri* coupled with CO₂ reduction by *Sporomusa ovata* with hydrogen as an electron donor assisted by solid-phase humin[J]. Journal of Bioscience and Bioengineering, 2016, **122**(3): 307-313.
- [27] Li B, Pan X, Zhang D, *et al.* Anaerobic nitrate reduction with oxidation of Fe(II) by *Citrobacter freundii* strain PXL1-a potential candidate for simultaneous removal of As and nitrate from groundwater[J]. Ecological Engineering, 2015, **77**: 196-201.
- [28] Kim J K, Park K J, Cho K S, *et al.* Aerobic nitrification-denitrification by heterotrophic *Bacillus* strains[J]. Bioresource Technology, 2005, **96**(17): 1897-1906.
- [29] Lay J L, Bahloul H, Sérino S, *et al.* Reducing activity, glucose metabolism and acid tolerance response of *Bacillus cereus* grown at various pH and oxydo-reduction potential levels [J]. Food Microbiology, 2015, **46**: 314-321.
- [30] Morozova D, Zettlitzer M, Let D, *et al.* Monitoring of the microbial community composition in deep subsurface saline aquifers during CO₂ storage in Ketzin, Germany [J]. Energy Procedia, 2011, **4**: 4362-4370.
- [31] Ko M S, Cho K, Jeong D, *et al.* Identification of the microbes mediating Fe reduction in a deep saline aquifer and their influence during managed aquifer recharge [J]. Science of the Total Environment, 2016, **545-546**: 486-492.
- [32] Daniel R M, Smith I M, Phillip J A D, *et al.* Anaerobic growth and denitrification by *Rhizobium japonicum* and other rhizobia [J]. Microbiology, 1980, **120**(2): 517-521.
- [33] 韩金鑫, 连宾, 唐源, 等. 恶臭假单胞菌对碳酸钙的诱导矿化作用[J]. 南京大学学报(自然科学版), 2013, **49**(6): 681-688.
- Han J X, Lian B, Tang Y, *et al.* Induced mineralization of calcium carbonate by *Pseudomonas putida*[J]. Journal of Nanjing University(Natural Sciences Edition), 2013, **49**(6): 681-688.

CONTENTS

Marine Aerosol Using On-board Aerosol Mass Spectrometry	YAN Jin-pei, CHEN Li-qi, LIN Qi, <i>et al.</i> (2629)
Analysis of Spatio-temporal Distribution and Variation Characteristics of Aerosol Optical Depth over the Northwest of China by MODIS C6 Product	ZHAO Shi-wei, GAO Xiao-qing (2637)
Sources and Characteristics of Regional Background PM ₁ in North China During the Autumn and Winter Polluted Period ...	ZHANG Zhou-xiang, ZHANG Yang-mei, ZHANG Xiao-ye, <i>et al.</i> (2647)
Pollution Characteristics and Light Extinction Contribution of Water-soluble Ions of PM _{2.5} in Hangzhou	WU Dan, LIN Shao-long, YANG Huan-qiang, <i>et al.</i> (2656)
Formation and Size Distribution of the Secondary Aerosol Inorganic Ions in Different Intensity of Haze in Qingdao, China	XIE Dan-dan, QI Jian-hua, ZHANG Rui-feng (2667)
Comparison of Characteristics and Reactive Oxidative Species of PM _{2.5} in Xi'an, China During Haze and Clean Days	WANG Kun, HAN Yong-ming, Ho Steven Sai Hang, <i>et al.</i> (2679)
Seasonal Variation and Sources of Dicarboxylic Acids and Related Compounds in PM ₁₀ from Mt. Huangshan	MENG Jing-jing, HOU Zhan-fang, ZHANG Er-xun, <i>et al.</i> (2688)
Composition Characteristics and Sources Apportionment of Lanthanoid in PM _{2.5} of Quanzhou	ZHANG Yun-feng, YU Rui-lian, HU Gong-ren, <i>et al.</i> (2698)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Hazardous Air Pollutants in the Surroundings of Three Petrochemical Industries in Northwest China	XU Ya-xuan, LI Xiao-min, YU Hua-tong, <i>et al.</i> (2707)
VOCs Characteristics and Sources Apportionment in Yixing City During the G20 Summit	ZHANG Lin, ZHANG Xiang-zhi, QIN Wei, <i>et al.</i> (2718)
Agricultural Ammonia Emission Inventory and Its Spatial Distribution in Sichuan Province from 2005 to 2014	FENG Xiao-qiong, CHEN Jun-hui, JIANG Tao, <i>et al.</i> (2728)
Air Pollutant Emission Inventory of Non-road Machineries in Typical Cities in Eastern China	LU Jun, HUANG Cheng, HU Qing-yao, <i>et al.</i> (2738)
Estimation of Health Risk and Enaction of Safety Standards of <i>N</i> -nitrosodimethylamine (NDMA) in Drinking Waters in China	ZHANG Qiu-qiu, PAN Shen-ling, ZHANG Yu, <i>et al.</i> (2747)
Comparison and Analysis of the Quantitative Methods for Pollutant Sources Load in Groundwater Contamination Risk Assessment	ZHAO Peng, HE Jiang-tao, WANG Man-li, <i>et al.</i> (2754)
Distribution and Sources of <i>n</i> -alkanes in Surface Seawater of Jiaozhou Bay	ZHANG Qian, SONG Jin-ming, PENG Quan-cai, <i>et al.</i> (2763)
Spatial Variations of CO ₂ Degassing Across Water-air Interface and Its Impact Factors in Summer in Guijiang River, China	ZHANG Tao, LI Jian-hong, PU Jun-bing, <i>et al.</i> (2773)
Spatial Distribution Characteristics and Potential Ecological Risk of Antimony and Selected Heavy Metals in Sediments of Duliujiang River	NING Zeng-ping, XIAO Qing-xiang, LAN Xiao-long, <i>et al.</i> (2784)
Distribution Characteristics and Potential Risk of Bisphenol Analogues in Surface Water and Sediments of Lake Taihu	CHEN Mei-hong, GUO Min, XU Huai-zhou, <i>et al.</i> (2793)
Characteristics of Water Extractable Organic Nitrogen from Erhai Lake Sediment and Its Differences with Other Sources	LI Wen-zhang, ZHANG Li, WANG Sheng-rui, <i>et al.</i> (2801)
High-resolution Distribution Characteristics of Phosphorous, Iron and Sulfur Across the Sediment-Water Interface of Aha Reservoir ...	SUN Qing-qing, CHEN Jing-an, WANG Jing-fu, <i>et al.</i> (2810)
Distribution Characteristics of Drugs of Abuse and Their Metabolites in Aqueous Environment of Beijing, China	ZHANG Yan, ZHANG Ting-ting, CHEN Wei-ping, <i>et al.</i> (2819)
Impacts of Rainfall Characteristics and Occurrence of Pollutant on Effluent Characteristics of Road Runoff Pollution	CHEN Ying, WANG Zhao, WU Ya-gang, <i>et al.</i> (2828)
Inhibition of Internal Phosphorus Release in the Black-Odor Channel Under Different Adding Methods of CaO ₂	XU Yao, LI Da-peng, HAN Fei-er, <i>et al.</i> (2836)
Transport of Nitrogen and Phosphorus from Sloping Farmland with Thin Purple Soil Overlying Rocks	XIAN Qing-song, TANG Xiang-yu, ZHU Bo (2843)
Purification of Slightly Salt-alkaline Water Bodies by Microorganism Enhanced Combined Floating Bed	CHEN You-yuan, WU Ya-dong, SUN Ping, <i>et al.</i> (2850)
MgO-Biochar for the Adsorption of Phosphate in Water	WANG Bin-bin, LIN Jing-dong, WAN Shun-li, <i>et al.</i> (2859)
Degradation of <i>N</i> -nitrosodimethylamine by Palladium/ Iron Bimetallic Composite Catalytic Fiber	ZHANG Huan, FU Min, WEI Jun-fu, <i>et al.</i> (2868)
Effects of Goethite, Magnetite and Gypsum on the Anaerobic Degradation of 2,4-Dichlorophenol	KONG Dian-chao, ZHOU Yue-fei, CHEN Tian-hu, <i>et al.</i> (2875)
Transformation of Disinfection Byproduct Precursors During the Wastewater Regeneration Processes	HAN Hui-hui, MIAO Heng-feng, ZHANG Ya-jing, <i>et al.</i> (2883)
Treatment of PTA Wastewater by Modified Anode Microbial Fuel Cell	SUN Jing-yun, FAN Meng-jie, CHEN Ying-wen, <i>et al.</i> (2893)
Selective Inhibition of Rice Straw Extract on Growth of Cyanobacteria and Chlorophyta	SU Wen, CHEN Jie, ZHANG Sheng-peng, <i>et al.</i> (2901)
Cultivation of <i>Spirulina platensis</i> in Digested Piggery Wastewater Pretreated by SBR with Operating Conditions Optimization	CAI Xiao-bo, YU Qiang-qiang, LIU Rui, <i>et al.</i> (2910)
Nitrogen Removal Performance of ANAMMOX Process with K ⁺ Addition in Saline Surroundings	WU Guo-dong, YU De-shuang, LI Jin, <i>et al.</i> (2917)
Efficient and Stable Operation of Shortcut Nitrification by Entrapping Ammonia Oxidizing Bacteria	YU Meng-yu, LIU Yi, TIAN Yu-bin, <i>et al.</i> (2925)
Fast Start-up of ANAMMOX and the Spatial Distribution of EPS in ANAMMOX Granules	LI Hui-juan, PENG Dang-cong, CHEN Guo-yan, <i>et al.</i> (2931)
Ammonia Oxidation with Potential Electron Acceptor in ANAMMOX Sludge	LI Xiang, LIN Xing, WANG Fan, <i>et al.</i> (2941)
Ammoniac Waste Gas in-situ Treatment Based on ANAMMOX Process	LIN Xing, WANG Fan, YUAN Yan, <i>et al.</i> (2947)
Extensive Green Roof Substrate Composition Based on Sludge Recycling	SHEN Qing-ran, LI Tian, CAO Yi, <i>et al.</i> (2953)
Short-term Effect of Roxithromycin on Abundance and Diversity of Ammonia-Oxidizing Microorganisms in Activated Sludge	GAO Jing-feng, SUN Li-xin, FAN Xiao-yan, <i>et al.</i> (2961)
Influence of Salinity on Microbial Community in Activated Sludge and Its Application in Simulated Dye Wastewater Treatment	ZHOU Gui-zhong, XU Shuo, YAO Qian, <i>et al.</i> (2972)
Shift of Microbial Communities During the CO ₂ -Brine-Sandstone Interaction Process	WANG Bo-qiang, LI Chen-yang, LU Wei, <i>et al.</i> (2978)
Response of Soil Respiration and Heterotrophic Respiration to Returning of Straw and Biochar in Rape-Maize Rotation Systems	TIAN Dong, GAO Ming, HUANG Rong, <i>et al.</i> (2988)
Effect of Simulated Climate Warming on Microbial Community and Phosphorus Forms in Wetland Soils	TENG Chang-yun, SHEN Jian-guo, WANG Zhong, <i>et al.</i> (3000)
Patterns of Bacterial Community Through Soil Depth Profiles and Its Influencing Factors Under <i>Betula albosinensis</i> Burkill in the Xinjiashan Forest Region of Qinling Mountains	DU Can, XU Chen-yang, WANG Qiang, <i>et al.</i> (3010)
Effects of Microbial Activities on Mercury Methylation in Farmland near Mercury Mining Area	JIA Qin, ZHU Xue-mei, WANG Qi, <i>et al.</i> (3020)
Effect of Sepiolite Application on the Migration and Redistribution of Pb and Cd in Soil Rice System in Soil with Pb and Cd Combined Contamination	FANG Zhi-ping, LIAO Min, ZHANG Nan, <i>et al.</i> (3028)
Application of Amphoteric-Cationic Combined Modification on Phenol Adsorption of Yellow Brown Soil	LIU Wei, MENG Zhao-fu, REN Shuang, <i>et al.</i> (3036)
Bioaccumulation of Heavy Metals in Twigs and Leaves of <i>Abies fabri</i> at Mount Gongga in China; A Comparison Study Between 1999 and 2014	LI Fen, WANG Xun, LUO Ji, <i>et al.</i> (3045)
Subcellular Distribution and Chemical Forms of Heavy Metals in Three Types of Compositae Plants from Lead-Zinc Tailings Area	ZHU Guang-xu, XIAO Hua-yun, GUO Qing-jun, <i>et al.</i> (3054)
Effects of Bentonite Amendment on Detoxification, Heavy Metal Passivation and Estrone Elimination of Sewage Sludge Compost	ZHOU Li-na, CAI Han-zhen, LI Rong-hua, <i>et al.</i> (3061)
Mesophilic and Thermophilic Anaerobic Co-Digestion of Food Waste and Straw	GUO Xiang-lin, ZUO Jian-e, SHI Xu-chuan, <i>et al.</i> (3070)
Basic Features of Combustible Rural Garbage Component and Its Spatial-temporal Difference in China	YAN Zhuo-yi, YUE Bo, GAO Hong, <i>et al.</i> (3078)
Optimization of Promoter and Support for Co-based/zeolites Catalysts in Catalytic Reduction of NO _x by CH ₄	PAN Hua, JIAN Yan-fei, CHEN Ning-na, <i>et al.</i> (3085)