



鄂尔多斯典型煤矿不同功能区水化学与微生物群落特征及环境响应

张莉 徐智敏 孙亚军 朱璐璐 陈歌 高雅婷 赵先鸣

引用本文:

张莉, 徐智敏, 孙亚军, 等. 鄂尔多斯典型煤矿不同功能区水化学与微生物群落特征及环境响应[J]. 煤炭科学技术, 2023, 51(12): 180–196.

ZHANG Li, XU Zhimin, SUN Yajun. Hydrochemistry and microbial community characteristics and environmental response in different functional zones of a typical coal mine in Ordos[J]. Coal Science and Technology, 2023, 51(12): 180–196.

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.12438/cst.2023-1124>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

生态脆弱煤矿区水体中微生物群落特征及矿井充水指示

Characteristics of microbial communities in water bodies of ecologically fragile coal mining areas and indications for mine water filling
煤炭科学技术. 2024, 52(1): 255–266 <https://doi.org/10.12438/cst.2023-1798>

黄淮平原矿区土地复垦对微生物群落结构和功能的影响

Effects of land reclamation on soil microbial community structure and function in the Huang–Huai plain mining area
煤炭科学技术. 2023, 51(11): 223–233 <https://doi.org/10.13199/j.cnki.cst.2023-0036>

土壤微生物及酶活性对露天矿不同土壤重构方式的响应特征

Response characteristics of soil microorganisms and enzyme activities to different soil remodeling modes in open-pit mine
煤炭科学技术. 2022, 50(9): 249–260 <http://www.mtkxjs.com.cn/article/id/a8308372-8744-4b78-abd7-7d4297133260>

植被恢复类型对露采矿山复垦土壤丰富和稀有微生物类群的影响

Impacts of vegetation restoration type on abundant and rare microflora in reclaimed soil of open-pit mining area
煤炭科学技术. 2024, 52(2): 363–377 <https://doi.org/10.12438/cst.2023-1882>

矿井水水化学特征及资源化利用研究

Study on chemical characteristics and resource utilization of mine water: taking Zhangji Coal Mine as an example
煤炭科学技术. 2023, 51(4): 254–263 <https://doi.org/10.13199/j.cnki.cst.2021-0927>

呼吉尔特矿区矿井水回灌模拟的水化学演化研究

Hydrochemical evolution of mine water injection in Hojirt Mining Area
煤炭科学技术. 2023, 51(S1): 470–476 <https://doi.org/10.13199/j.cnki.cst.2022-1601>



关注微信公众号, 获得更多资讯信息



移动扫码阅读

张莉, 徐智敏, 孙亚军, 等. 鄂尔多斯典型煤矿不同功能区水化学与微生物群落特征及环境响应[J]. 煤炭科学技术, 2023, 51(12): 180–196.

ZHANG Li, XU Zhimin, SUN Yajun, *et al.* Hydrochemistry and microbial community characteristics and environmental response in different functional zones of a typical coal mine in Ordos[J]. Coal Science and Technology, 2023, 51(12): 180–196.

鄂尔多斯典型煤矿不同功能区水化学与微生物群落特征及环境响应

张莉¹, 徐智敏^{1,2}, 孙亚军^{1,2}, 朱璐璐^{1,3}, 陈歌¹, 高雅婷¹, 赵先鸣¹

(1. 中国矿业大学资源与地球科学学院, 江苏徐州 221116; 2. 矿山灾害防治技术基础研究国家级专业中心实验室, 江苏徐州 221116;

3. 中煤航测遥感集团有限公司, 陕西西安 710199)

摘要:为探究煤矿井下不同功能区的微生物群落分布及其对水文地球化学特征的响应,以鄂尔多斯某矿为研究对象,在涉及矿井水的来源、形成、汇集和排放全过程的6个功能区中采集了24份水样,进行水化学组分检测和微生物16S rRNA基因高通量测序,并采用多元统计方法进行序列数据处理。研究表明:矿井水的水化学类型继承了其直接充水水源,均为高矿化度的 SO_4Na 型,而特征污染物 SO_4^{2-} 在煤巷和地表水池中浓度最高。不同功能区的微生物群落组成差异明显:属水平上检出的优势菌属包括能氧化硫化物的发硫菌属和硫氧化菌属,以及可降解有机物的新鞘氨醇杆菌属和短波单胞菌属等在煤巷、采空区中分布较高;好氧的 *Uliginosibacterium* 和具有极强吸附力且能降解有机物的不动杆菌属在岩巷中丰度最高;与氮循环有关的噬氢菌属和红细菌属在水仓和地表水中分布较高。微生物群落与水化学过程响应灵敏且关系密切;井工煤矿微生物群落分布不仅与C、N、Ca、Mg等营养元素相关,还与Fe、COD和 SO_4^{2-} 等氧化还原敏感物质密切相关。煤巷和采空区是地下水污染防控的关键区域;开采扰动后,煤中伴生的低价硫化物在化学氧化和硫氧化菌的催化氧化作用下生成大量 SO_4^{2-} ;然而,当工作面停采半年到3年后,在物理或化学吸附、沉淀作用(前期占主导),以及硫酸盐还原菌的还原作用下(后期占主导), SO_4^{2-} 降低了15%~34%,这说明采空区具有一定的自净能力。综上所述,研究成果可为矿井水污染防控的工程应用提供以下理论支撑:一方面可通过通氮气保持工作面的厌氧条件,从源头上减少 SO_4^{2-} 的生成;另一方面可以筛选、培养硫酸盐还原菌和有机物降解菌,制作成生物材料投加到井下进行原位地下水污染修复。

关键词: 煤矿开采;微生物群落;水化学特征;生物地球化学作用;矿井水

中图分类号: X171

文献标志码: A

文章编号: 0253-2336(2023)12-0180-17

Hydrochemistry and microbial community characteristics and environmental response in different functional zones of a typical coal mine in Ordos

ZHANG Li¹, XU Zhimin^{1,2}, SUN Yajun^{1,2}, ZHU Lulu^{1,3}, CHEN Ge¹, GAO Yating¹, ZHAO Xianming¹

(1. School of Resources and Geosciences, China University of Mining and Technology, Xuzhou 221116, China; 2. Fundamental Research Laboratory for Mine Water Hazards Prevention and Controlling Technology, Xuzhou 221116, China; 3. China Coal Aerial Survey and Remote Sensing Group Co., Ltd., Xi'an 710199, China)

Abstract: To explore the distribution of microbial communities in different functional zones of coal mine and their response to hydrogeochemical characteristics, a coal mine in Ordos was taken as the research object. 24 water samples were collected from six typical functional zones involved in the whole process of the mine water source, formation, collection and discharge. Hydrochemical components detection and high-throughput sequencing of microbial 16S rRNA genes were carried out. and multivariate statistical methods were used for sequence data processing. The results showed that the hydrochemical type of mine water was high salinity $\text{SO}_4\text{-Na}$ type, which directly inher-

收稿日期: 2023-08-02

责任编辑: 黄小雨

DOI: 10.12438/cst.2023-1124

基金项目: 国家重点研发计划资助项目(2019YFC1805400); 国家自然科学基金资助项目(42172272, 42102290)

作者简介: 张莉(1991—),女,江苏徐州人,讲师,博士。E-mail: li-zhang@cumt.edu.cn

通讯作者: 孙亚军(1963—),男,安徽涡阳人,教授,博士生导师。E-mail: syj@cumt.edu.cn

ited the supplied water-source, while the concentration of characteristic pollutant SO_4^{2-} was highest in coal roadways and surface water pools. The compositions of microbial communities in different functional zones presented significant differences. The dominant bacterial genera detected at the genus level included *Thiothrix* and sulfur oxidizing bacteria that could oxidize sulfides (i.e., *Thiothrix* and *Sulfuricurvum*), as well as new *Sphingobacteria* and *Shortwave Monocmonas* that can degrade organic matter (i.e., *Novosphingobium* and *Brevundimonas*), while they distributed relatively high in coal tunnels and goafs. The abundances of aerobic *Uliginosibacterium* and *Acinetobacter* with strong adsorption and organic degradation, was highest in rock roadways. Bacteria related to nitrogen cycle (i.e., *Hydrogenophaga* and *Rhodobacter*) accounted for the higher proportion in water sumps and surface water. Microbial communities were sensitive and closely related to the hydro-chemical processes. The distribution of microbial communities in underground coal mine was not only related to nutrients such as C, N, Ca and Mg, but also closely interrelated to redox sensitive substances such as Fe, COD and SO_4^{2-} . Coal roadways and goafs are the key zones for groundwater pollution prevention and control. After mining disturbance, the low valent sulfides associated with coal have generated a large amount of SO_4^{2-} through the chemical oxidation and catalytic oxidation of sulfur oxidizing bacteria. However, it is worth noting that when the working pannel stopped for six months to three years, the characteristic pollutant SO_4^{2-} was reduced by 15%-34% due to the physical or chemical adsorption, precipitation (dominated in the early stage), and the reduction of sulfate reducing bacteria (dominated in the later stage). This result indicated that the goaf had a certain degree of self-cleaning ability. In summary, the research results could provide theoretical supports for the engineering applications of mine water pollution prevention and control, which was reflected in the following two aspects: on the one hand, to reduce the generation of SO_4^{2-} from the source by maintaining the anaerobic condition on the working pannel through nitrogen gas supply; on the other hand, after screening and cultivating the sulfate-reducing bacteria and organic matter degrading bacteria, they would be produced into bio materials, and added to the underground for in-situ remediation of groundwater pollution.

Key words: coal mining; microbial community; hydrodynamic characteristic; biogeochemical processes; mine water

0 引 言

煤炭是我国能源安全的“压舱石”。同时,我国是煤炭的生产和消费大国,煤炭资源开采以井工矿为主,为了保证井下的安全生产,必须排出大量矿井水^[1],在产矿井水水质主要取决于原生充水水源的水-水混合作用,并且受到巷道内破碎的煤、岩石和开采活动中排放的润滑油、乳化液、废弃物和人类排泄物的影响^[2-3]。受污染矿井水的渗漏、外排会导致矿区的生态环境恶化^[4-6]。明确矿井水的水化学特征及其影响因素是煤矿区地下水污染防治的基础。在地下水系统中,微生物群落是物质循环、能量转换和信息传递的重要承担者,可以催化水环境中污染物的生成或降解,是生物地球化学循环的主要驱动因子。微生物群落组成的特异性可反映和影响水文地球化学特征^[7-9]。已经报道的关于煤矿区微生物的研究,主要集中在酸性矿井水的形成,以及外排矿井水对土壤、河流等地表生态系统的微生物群落结构和水化学特征的影响,结果表明微生物群落在矿区生态环境变化中起着重要作用,尤其是影响了 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NO_2^- 、 NH_4^+ 、Fe 和 Mn 等氧化还原敏感组分的迁移和转化^[10-14]。然而,对于煤矿井下不同功能区的微生物群落分布及其对水文地球化学特征的响应或影响鲜有报道。

研究表明煤矿开采扰动会影响地下水的微生物群落结构和水-岩作用^[15-17]。一般情况下,井工煤矿

在井下有不同的功能分区,包括岩巷、煤巷(包括采煤工作面)、采空区、水仓、地表排水系统等,这些不同功能区中的物源特征和采矿扰动环境不同。煤炭的开采和运输主要在煤巷中进行。煤炭含有大量的有机物和伴生的硫化物矿物(如黄铁矿),这些矿物可为微生物代谢活动提供大量的营养物质和电子供体^[18]。此外,井下通风会将氧气引入地下巷道。因此,煤巷中氧化还原敏感物质的转化和有机质的微生物降解作用可能比较显著。高波^[19]和张燕婷^[20]均从井下巷道沉积物中筛选出了多种多环芳烃优势降解细菌。工作面停采后被封闭形成采空区,此时采空区不仅含有大量残余煤和垮落的岩石,还会保持一定的积水水位。因此,在闭坑矿井中随着停采时间的延长,水位逐渐升高,氧气浓度逐渐降低,导致水-煤(岩)反应的长期动态演化。水仓用于临时储存从岩道、煤巷和采空区等汇集的矿井水,水仓的微生物群落结构和水化学特征可以反映所容纳矿井水的综合特征。因此,不同功能区的矿井水可能形成差异性的微生物群落结构,进而影响矿井水的水质形成及演化。

选取了鄂尔多斯某矿为侏罗系煤田的代表,在涉及矿井水的来源、形成、汇集和排放全过程的 6 个主要功能区(地下水含水层、岩巷、煤巷、采空区、水仓和地表暂存水池)采集了 24 份水样,进行微生物群落和水化学组分检测分析;并采用多元统计方法探究了微生物群落组成特征及其与水化学变量之间

的响应关系, 阐明不同功能区微生物群落结构的变化机制及其对水化学组分的响应或影响, 从而有助于获取煤矿井下不同功能分区中微生物群落分布特征及其环境响应过程, 为煤矿区地下水污染微生物修复提供理论支撑。

1 材料与方法

1.1 研究区概况与样品采集

研究的某煤矿属于东胜煤田呼吉尔特矿区, 位于鄂尔多斯高原东南部, 毛乌素沙地的东北边缘地带。属干旱—半干旱区, 井田内地表水系不发育, 也无水库、湖泊等地表水体。矿井采用立井式开拓, 综合机械化采煤工艺, 工作面顶板管理方法为全部垮落法。井田内煤层为近水平煤层, 目前正开采煤组为侏罗系中统延安组 2 煤组 (2^{-1} 、 2^{-2} 中煤)、3 煤组 (3^{-1} 煤), 产能约为 800 万 t/a。该矿井煤炭储量大且生产量大于鄂尔多斯盆地生产总量的 1/3, 矿井充水水源主要是煤层顶板砂岩含水层且矿井排水量大, 所以被选为侏罗系煤矿的代表矿井。

如图 1 所示, 研究区主要的地下水含水层由上到下依次为: 第四系松散岩类孔隙潜水含水层, 白垩系下统志丹群孔隙、裂隙承压含水层 (I 含), 侏罗系安定组、直罗组至 2 煤顶裂隙承压含水层 (II 含), 侏罗系延安组 2 煤底板至 3 煤顶板裂隙承压含水层 (III 含)。实际开采过程中, 结合主要充水含水层的富水性及前期矿井突(涌)水源进行综合计算, 2 煤的主要充水来源为 II 含, 3 煤的主要充水含水层为 II 含 (占比超过 50%) 和少量 III 含 (弱富水)。

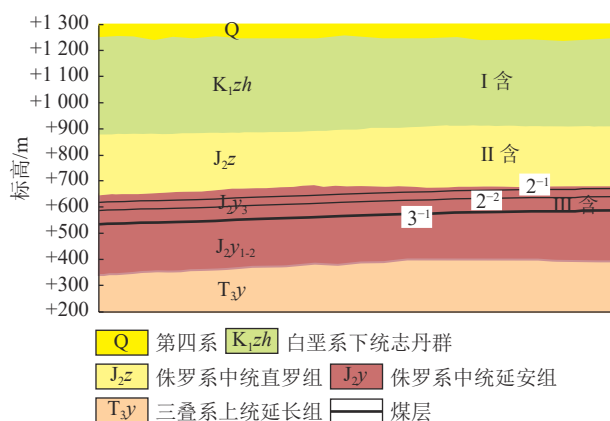


图 1 研究区主要含水层与煤层赋存关系示意

Fig.1 Schematic of the relative positions of the main aquifers and coal seams in the study coal mine

在煤层开采过程中, 充水水源从导水裂隙中流出形成初期的矿井水, 然后流经岩巷或煤巷 (包括工

作面) 或采空区, 汇集到中央水仓后抽排至 3 个地表水池暂存待处理。为研究矿井水的来源、形成、汇集和排放的全过程, 布设了 6 个功能区的 24 份水样的采样点, 采样点平面位置如图 2 所示。研究团队于 2021 年 9 月采集了 3 份不同含水层地下水、3 份不同岩巷的淋水、5 份不同煤巷或工作面的积水、5 份不同停采时间的采空区水、3 份收集不同矿井水的水仓水和 5 份地表水池的水, 每份水样的具体说明见表 1。每份水样分别取 500 mL、2 L 和 5 L 聚乙烯取样瓶各 1 瓶, 4 °C 冷藏避光保存和运输, 根据国家 GB/T 14848—2017《地下水质量标准》关于样品保存和送检要求, 其中 500 mL 现场加优级纯硝酸调节 pH 值小于 2, 经 0.45 μm 聚醚砜膜过滤后用于金属离子检测, 2 L 用于其它水化学组分的检测; 5 L 取样 48 h 内过无菌 0.22 μm 聚四氟乙烯膜后, 立即收集滤膜于 -80 °C 保存, 加干冰和冰块运输到上海美吉生物医药科技有限公司实验室进行微生物测试。

1.2 地下水和矿井水中水化学组分测试

野外现场取样时采用哈纳多参数水质分析仪对 pH、氧化还原电位 (ORP)、溶解氧 (DO)、浊度、水温等指标进行现场校准和测定。取样后 48 h 内在实验室分别用碱滴定法和酸滴定法测定游离 CO_2 和 $\text{HCO}_3^-/\text{CO}_3^{2-}$ 。采用电感耦合等离子体发射光谱仪检测 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 和 Mg^{2+} ; 采用分光光度法测定 NH_4^+ 、 Fe^{2+} 、 Fe^{3+} 和 H_2SiO_3 。采用离子色谱法检测 NO_3^- 、 NO_2^- 、 SO_4^{2-} 和 Cl^- ; 使用重量法测定溶解性总固体 (TDS); 采用高锰酸钾指数法分析化学需氧量 (COD)。所有样品的阴阳离子电荷平衡计算误差均小于 5%, 说明检测结果可信。使用 OriginPro 2022 和 AqQA 软件绘制水化学分析图件。

1.3 水样中 DNA 提取与 16S rRNA 基因测序

使用 FastDNA Spin Kit for Soil (MP Biomedical, USA) 抽提水样的总 DNA, 并测定抽提的 DNA 浓度和纯度。使用 338F (5'-ACTCCTACGGGAGGCAGCAG-3') 和 806R (5'-GGACTACHVGGGTWTCTAAT-3') 对 16S rRNA 基因 V3-V4 可变区进行 PCR 扩增, 每个样本做 3 个重复。

将同一样本的 PCR 产物混合后使用 2% 琼脂糖凝胶回收 PCR 产物, 利用 AxyPrep DNA Gel Extraction Kit (Axygen Biosciences, USA) 进行回收产物纯化, 2% 琼脂糖凝胶电泳检测, 并用 Quantus™ Fluorometer (Promega, USA) 对回收产物进行检测定量。使用 NEXTFLEX® Rapid DNA-Seq Kit 进行建库, 利用 Illumina 公司的 Miseq PE300 平台进行测序。

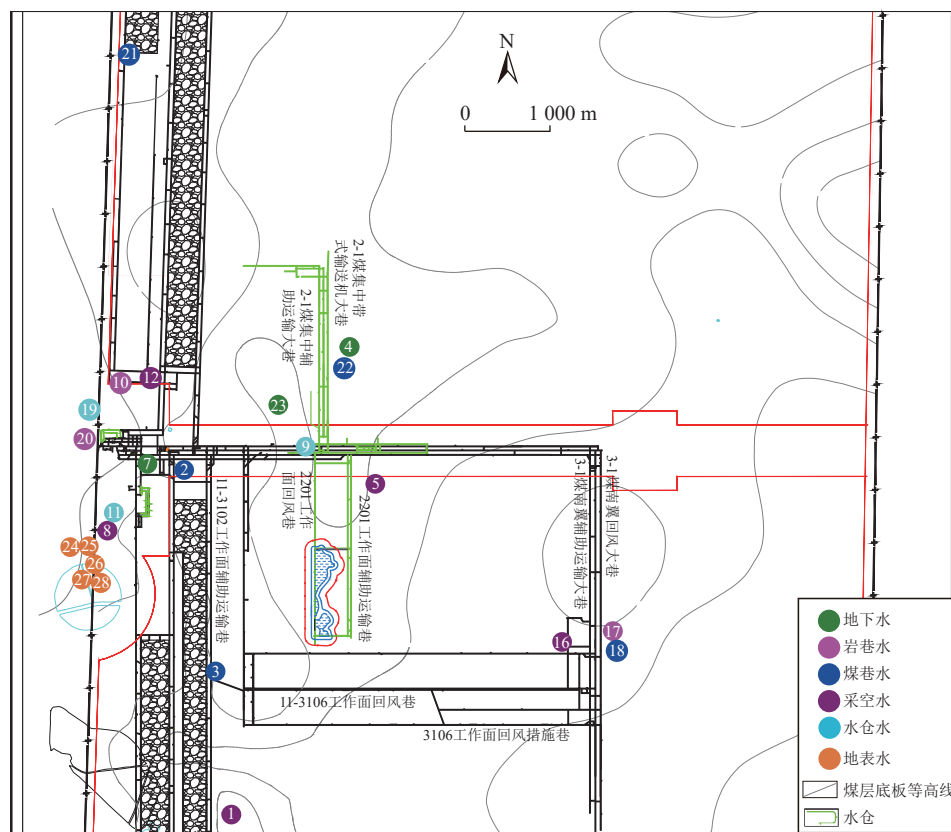


图2 研究区取样点平面位置图

Fig.2 Sampling sites in the study coal mine

1.4 序列数据处理和统计分析

使用 UPARS 软件, 根据 97% 的相似度对序列进行 OTU 聚类并剔除嵌合体。利用 RDP Classifier 2.11 对每条序列进行物种分类注释, 比对 Silva 16S rRNA 数据库 (v138), 设置比对阈值为 70%。在 motherur 1.30.2 计算 Alpha 多样性指数; 在分析 Alpha 多样性之前, 通过 R 语言得到稀释曲线, 当每个样本的读数超过 20 000 时, 观察到的 OTU 数接近饱和。采用 Kruskal-wallis H 方法检验各组间的显著性差异。同时, 利用 R 语言 3.3.1 进行 Beta 多样性分析。采用冗余分析 (RDA) 方法分析微生物群落与环境因子之间的相关性。利用共现网络对所研究煤矿不同功能区的微生物与环境因子的相关性进行可视化描述, 并利用交互平台 Gephi 0.9.2 对共现网络进行可视化处理。选取水样中最丰富的 100 个物种构建共发生网络, 根据文献常用参数^[21-22], 设置 Spearman 相关性系数 $|r| > 0.5$ 且 $p < 0.05$ 。

2 结果与讨论

2.1 水化学组分的空间分布特征

测试获取 6 个不同功能区中地下水和矿井水的水化学特征如图 3 和图 4 所示。Piper 和 Durov 图表

明, 直罗组中部含水层 (M4) 和直罗组底部含水层混约 10% 延安组水 (M7) 落点相近, 水化学类型均为 SO_4Na 型; 根据主要充水含水层的富水性及前期矿井突 (涌) 水源进行综合计算, M4 和 M7 是矿井水的主要来源。岩巷、煤巷、采空区、水仓和地表水池水样也呈聚集状, 水化学类型 (SO_4Na 型) 与其补给水源一致。但是, 白垩系志丹群地下水落点较远, 水化学类型为 HCO_3Na 型, 且 TDS 明显偏低 (仅 0.34 g/L), 表明白垩系志丹群含水层与矿井主要充水含水层水力联系较弱。

为了分析这 6 个功能分区中水样水化学特征的异同, 绘制了不同功能区的水化学组分半箱线图 (图 4)。5 个功能区矿井水的 TDS 普遍高于所有层位的地下水, 其中 3-1 煤南翼大巷巷道淋水 (M17) 为高离群值, 结合其 Cl^- 也异常高的现象, 推断是由于取样点的巷道岩壁淋水流量小矿化度高, 通风作用下易蒸发结晶形成了白色结晶盐, 取样时有少量结晶盐掉入水样, 导致其 TDS 高达 8.97 g/L; 煤巷的 TDS 明显高于其他功能区。对 TDS 贡献量最大的是 SO_4^{2-} 和 $\text{Na}^+ + \text{K}^+$, 其中煤巷的 SO_4^{2-} (2.07 ~ 3.49 g/L) 和 $\text{Na}^+ + \text{K}^+$ (1.02 ~ 1.92 g/L) 最高, 其次是地表水 SO_4^{2-} (1.41 ~ 2.48 g/L) 和 $\text{Na}^+ + \text{K}^+$ (0.70 ~ 1.22 g/L)。究其

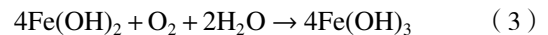
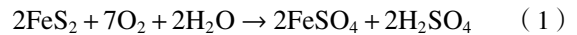
表 1 6 种功能分区 24 个取样点详细信息
Table 1 Details of 24 sampling sites in 6 zones

功能分区	样品编号	采样点位置
地下水GW	M4	直罗组中部含水层
	M7	直罗组底部含水层混约10%延安组水
	M23	白垩系志丹群含水层
煤巷水CR	M2	3102工作面回采中
	M3	3102工作面进风措施巷道积水
	M18	3-1煤南翼大巷巷道积水
	M21	3105工作面回采中
	M22	2-1煤集中巷L2联巷
	M9	2-2中煤水仓(2煤巷道和采空区水)
水仓水sump	M11	2号水仓(3煤采空区水)
	M19	中央水仓(收集部分M9与M11水仓水以及3煤巷道水)
	M10	副井管道道冻结管滴水
岩巷水RR	M17	3-1煤南翼大巷巷道滴水, 墙壁上挂白色结晶物
	M20	井底车场岩巷滴水
	M1	3102工作面2020年采空水
采空水goaf	M5	2201工作面回撤通道2020年采空水
	M8	3101工作面2018年采空水
	M12	3103工作面回撤通道2019年采空水
	M16	3104工作面回撤通道2021年3月采空水
	M24	2号水池矿井水排水口②
地表水SW	M25	2号水池设备清洗废水排水口①
	M26	2号水池排水口正南水池边界
	M27	1号水池南边界
	M28	3号水池北边界

注: 不同功能区简介: 地下水为原生地下水含水层; 岩巷是指开挖断面岩石面积大于80%的巷道, 主要用于通风、运输设备和物料等; 煤巷是指开挖断面煤的面积大于80%的巷道包括掘进工作面, 主要用于采煤和运输煤炭; 采空区是当采矿停止后, 将建一堵墙来封闭形成的采矿“空洞”, 被封闭的空间; 水仓用于暂存井下所收集的矿井水; 地表暂存水池是中央水仓的矿井水经抽排至井上水处理厂预处理后, 排入3个地表水池暂存待深度处理。

原因, 主要有两个方面: ①煤中的 S 元素含量较高为 2.49%, 且肉眼可见煤中伴生金黄色黄铁矿, 在开采扰动影响下, 黄铁矿被氧化产生大量 SO_4^{2-} 、 H^+ 和铁氢氧化物(式(1)一式(3)); ②煤巷积水水力交换弱, 煤屑破碎可溶盐溶滤作用、蒸发浓缩作用和人类采矿活动影响较强。煤巷水中 M18 的 pH 值全区最高为 8.5, 主要原因是此处有较多水泥块, 其中的氧化钙与水反应释放 OH^- 。从 pH 值中位数来看, 采空区 pH 值最低(7.1~7.6), 其余水样与充水水源 pH 值相近。结合采空水中的 Fe^{3+} (ND~0.28 mg/L)和 Fe^{2+} (ND~

0.05 mg/L)也最高的特点(ND 为未检出), 表明采煤工作面停采后形成采空区, 矿井水、地下水流进采空区的初期, 水位逐渐上升并进行更加充分的黄铁矿氧化反应。同时, 采空区一直处于排水状态既保障安全生产及时排出积水, 又能使污水暂存沉淀进行初步净化, 所以 SO_4^{2-} 和浊度都比煤巷水低。因此, 采空区的水化学演化过程受到复杂的生物地球化学反应驱动, 是矿井水污染防控的关键区域。



受 pH 的影响, HCO_3^- 、 CO_3^{2-} 与游离 CO_2 在不同功能区含量变化较大。地表水、采空区、水仓和煤巷水中游离 CO_2 浓度较高, 可能与较强的微生物呼吸作用有关。 NH_4^+ 、 NO_3^- 和 NO_2^- 含量存在较大的组间差异, 主要受氧化还原环境与生物作用的影响, 其中煤巷和采空区中 NH_4^+ 和 NO_3^- 浓度较高, 这与饮食、排泄、采矿设备维护等人类活动有关。所有水样的 COD 值均低于地下水质量Ⅲ类水标准(<3.0 mg/L), 浅层白垩系地下水比深层直罗组地下水浓度高; 矿井水中煤巷水的 COD 浓度最高在 0.68~1.89 mg/L, 其次是地表水和水仓水, 而采空水和岩巷中 COD 值较低。究其原因, 与煤巷中长期水-煤(岩)作用时有有机物的溶解释放和人类活动有关。煤矿设备清洗废水排放到 2 号水池的①号排水口, 其 COD 值高达 1.9 mg/L, 这是因为废水中含有石油烃等有机污染物。有益组分 H_2SiO_3 和 Sr 的分布特征不同, H_2SiO_3 在白垩系下统志丹群地下水含量最高达 19.5 mg/L, 且 TDS 较低, 可以作为饮用水供水水源; 而 Sr 在地下水中含量最低(<2 mg/L), 说明在水-煤(岩)作用过程中 Sr 可以被溶解释放到矿井水中。综上所述, 水化学分析结果表明所研究的井工煤矿水化学特征具有明显的区域差异性, 主要包括特征组分 SO_4^{2-} 浓度随着含水层埋藏深度的增加而增加, 且在煤巷和地表水池中最高。

2.2 不同功能区中微生物多样性及群落结构差异

2.2.1 微生物群落的多样性分析

通过 Miseq 高通量测序, 并去除低质量和嵌合序列后, 总共从 24 个水样本中获得 628 178 个有效序列, 为保证不同样品间的可比性, 按最小序列数对样品进行抽平。在 97% 的相似度水平下进行 OTU 聚类, 24 个样本共获得 3 339 类 OTU, 单个样本 OTU 数量从 127 类到 803 类不等。样本的覆盖率

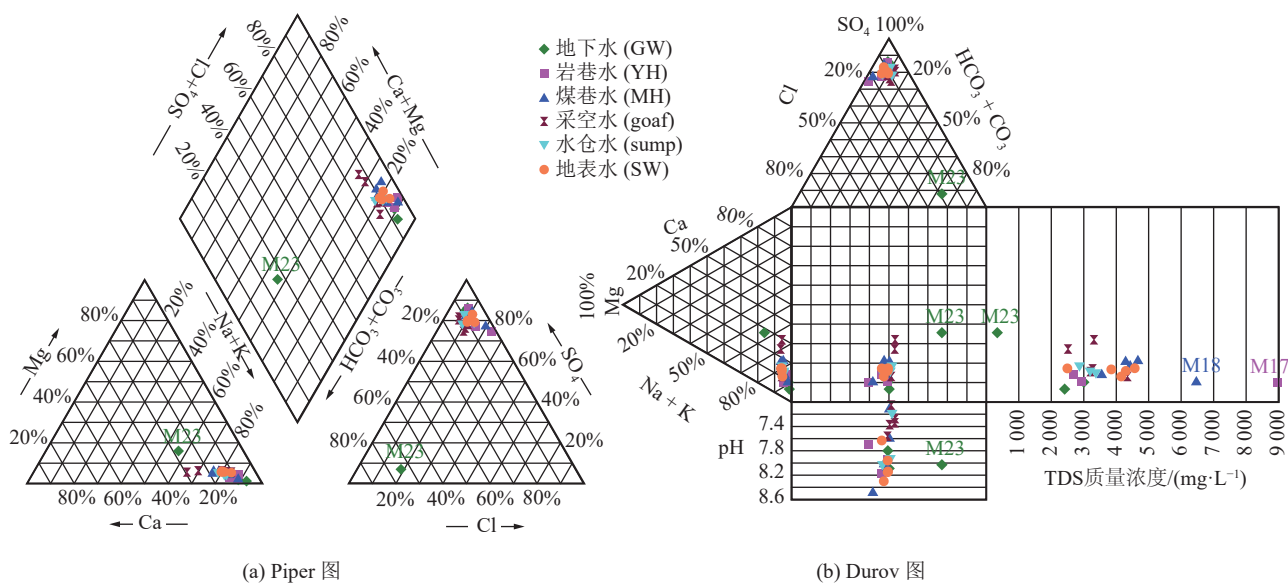
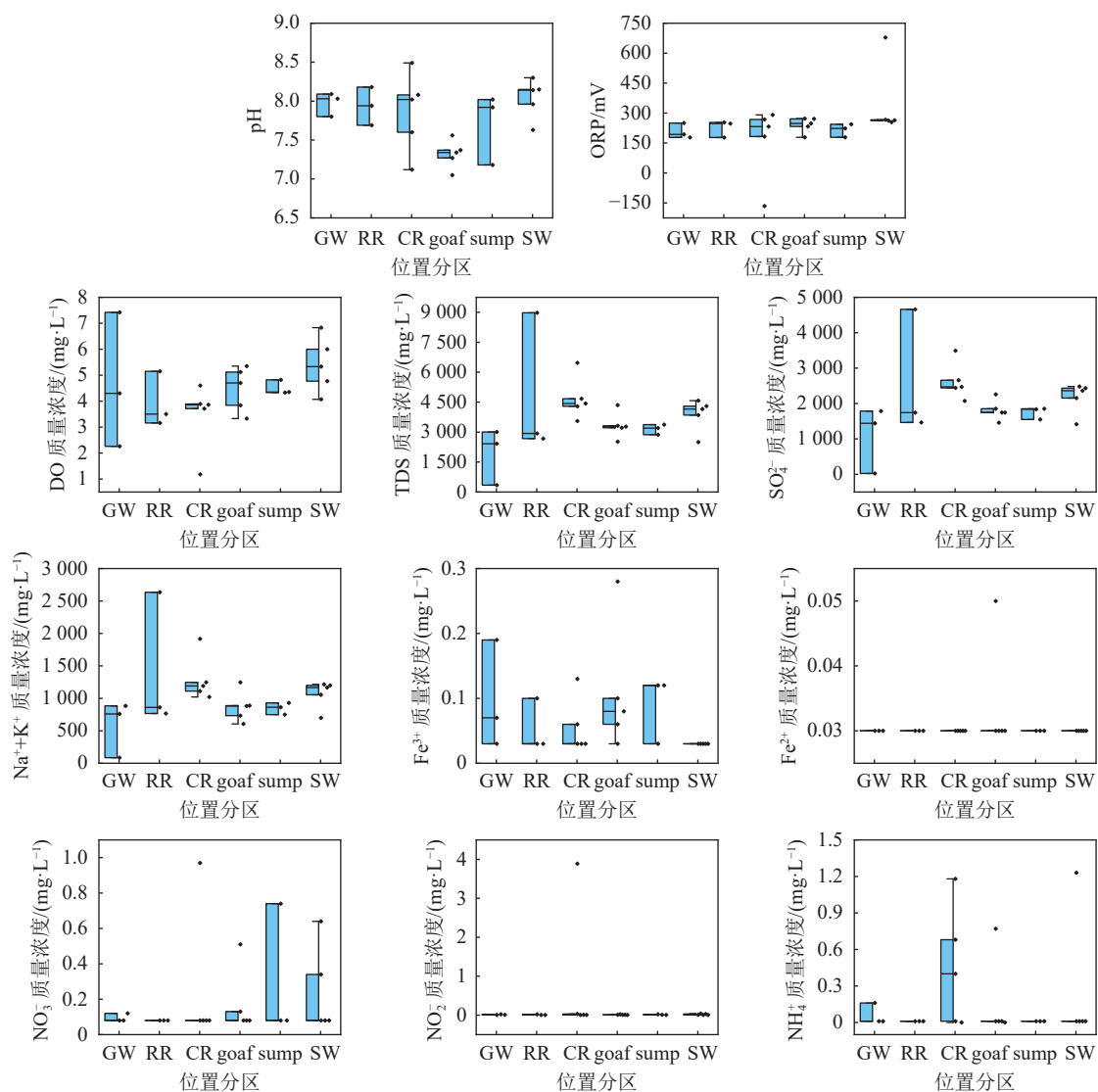
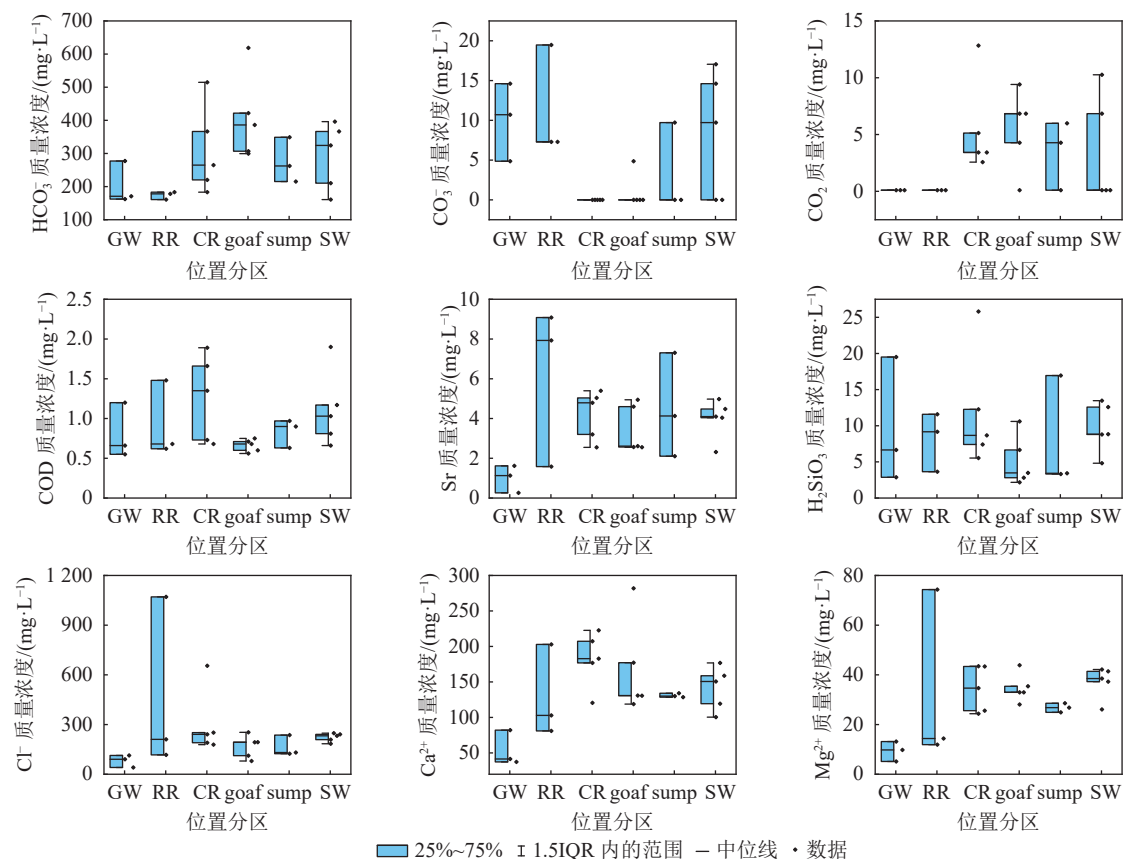


图 3 不同功能区水样的 Piper 和 Durov 图
Fig.3 Piper and durov diagrams of the water samples in different zones





(GW—地下水; RR—岩巷水; CR—煤巷水; goaf—采空区; sump—水仓水; SW—地表水; 方法检出限分别为 pH: 0; DO: 0; ORP: -2 000 mV; K^+Na^+ : 0.04 mg/L; Ca^{2+} : 0.01 mg/L; Mg^{2+} : 0.05 mg/L; Fe^{3+} : 0.03 mg/L; Fe^{2+} : 0.03 mg/L; NH_4^+ : 0.01 mg/L; Sr: 0.01 mg/L; Cl^- : 10 mg/L; SO_4^{2-} : 10 mg/L; NO_3^- : 0.08 mg/L; NO_2^- : 0.01 mg/L; TDS: 20 mg/L; CO_2 : 0.1 mg/L; H_2SiO_3 : 0.1 mg/L; COD: 0.5 mg/L)

图 4 不同功能区水化学特征组分半箱线图

Fig.4 Half-box and whisker diagrams of the major hydrochemical components in the six zones

在 98.70%~99.82%(表 2), 结合稀释曲线逐渐趋于饱和, 可以看出能够检测到样本中的绝大多数微生物, 说明检测结果可靠性高。Alpha 多样性指数(表 2)可解释水样微生物群落的丰富度和多样性。其中, ACE 指数和 Chao1 指数用于表征细菌群落的丰度, 指数值越大表示细菌群落丰度越高。结果表明, 6 组样品微生物群落平均丰富度排序为: 水仓>采空区>岩巷≈地表水≈煤巷>地下水。细菌群落的多样性用 Shannon 指数和 Simpson 指数来表示, Shannon 指数值越大, Simpson 指数值越小, 表明样品细菌群落多样性越高。结果表明, 6 组样品微生物群落平均多样性排序为: 水仓>地表水>煤巷>采空区>岩巷≈地下水。其中, 水仓水中的微生物丰富度和多样性最高, 而地下水中的均最低, 这与地下水含水层受人类活动等外界影响较小, 与环境中的物质能量交换较少, 而水仓汇集了几乎所有井下的矿井水且底部沉积煤泥, 更有利于多种微生物的生长和繁殖有关, 这与山东新巨龙煤矿研究结果相似^[23]。岩巷组中巷道淋水(M17, 蒸发浓缩导致高盐)为高离群值, 其微生物丰

度和多样性为矿区内最高值, 扣除此水样后岩巷的丰富度和多样性仅高于地下水。物种 Venn 图(图 5)也表明地下水中的总物种和独特物种数量最少, 而煤巷中的数量最多, 这与煤巷中煤粉、采煤机械油等采煤活动引入新的物源有关。以上结果也表明, 采煤活动对矿井水中的微生物群落产生明显影响, 特别是在含煤量较高的区域。

2.2.2 微生物群落结构组成及差异分析

在 6 个不同功能区的 24 份水样中共检出 53 个菌门, 其中前 9 个丰度最高的菌门占微生物群落总数的 97% 以上(图 6a)。群落组成分析结果表明, 检出丰度最高的是变形菌门(*Proteobacteria*) (94.91%~56.49%) 和放线菌门(*Actinobacteriota*) (18.64%~1.55%), 该结果与某些矿区、含水层和地表水中检出的主要菌门一致^[23-25]。其次检出的主要菌门包括: 拟杆菌门(*Bacteroidota*) (13.72%~0.53%)、酸杆菌门(*Patescibacteria*) (7.46%~0.04%)、脱硫杆菌门(*Desulfobacterota*) (3.98%~0.12%)、弯曲杆菌门(*Campilobacterota*) (9.63%~0.01%)、厚壁菌门

表 2 不同功能区中地下水和矿井水微生物群落 Alpha 多样性指数
Table 2 Alpha diversity indexes of microbial community in water of different zones

位置分区	样品编号	序列	OTUs	覆盖率/%	群落丰富度		群落多样性指数	
					ACE	Chao 1	Shannon	Simpson
地下水GW	M4	28542	153	99.73	269.46	232.80	2.28	0.20
	M7	27072	127	99.82	166.63	166.06	2.28	0.19
	M23	28374	161	99.78	248.04	231.50	2.58	0.16
岩巷水RR	M10	28214	136	99.74	205.21	228.81	1.44	0.42
	M17	21334	803	98.89	1 035.25	1 067.10	4.57	0.04
	M20	28306	250	99.51	458.73	363.96	1.25	0.58
煤巷水CR	M2	22183	434	99.42	567.18	567.98	4.10	0.04
	M3	24298	599	99.13	785.39	772.79	3.22	0.19
	M18	27376	303	99.49	534.29	489.39	3.14	0.10
	M21	27087	572	99.81	588.03	589.73	4.75	0.04
	M22	27741	177	99.74	240.46	225.13	2.02	0.27
采空水goaf	M1	26277	320	99.56	407.21	402.27	2.60	0.22
	M5	25235	508	99.03	926.01	792.28	2.53	0.29
	M8	23872	502	99.17	847.03	717.79	3.10	0.15
	M12	24495	554	99.97	1 031.50	930.41	3.55	0.08
	M16	25636	449	99.24	655.71	637.61	3.35	0.08
水仓水sump	M9	23622	638	98.88	1 242.34	995.00	4.24	0.04
	M11	27031	666	98.70	1 032.62	1 013.51	3.39	0.09
	M19	25999	337	99.40	652.45	537.03	3.43	0.07
地表水SW	M24	27197	389	99.29	769.42	587.68	3.56	0.06
	M25	27 769	433	99.66	476.17	468.04	3.47	0.09
	M26	27231	562	99.19	739.28	766.25	4.42	0.03
	M27	25973	217	99.73	277.84	272.03	2.30	0.29
	M28	27314	379	99.42	529.15	496.32	3.43	0.08

(*Firmicutes*) (2.60% ~ 0.12%)、疣微菌门(*Verrucomicrobiota*) (1.05% ~ 0.12%)、*Dependentiae* (1.44% ~ 0.01%)。为研究煤矿区不同功能区内微生物群落组成的差异,针对 6 组样本采用 Kruskal-Wallis 秩和检验进行组间差异显著性检验分析,结果表明,变形菌门和疣微菌门在 6 组不同功能区间有显著差异($p<0.05$,图 6b)。变形菌门在原生地下水中丰度最高,但在煤巷中丰度最低;而疣微菌门则在原生地下水中丰度最低,在地表水中丰度最高。放线菌门在地表水中的丰度远高于其它分区,这可能与放线菌门多为好氧腐生菌有关。脱硫杆菌门大多具有硫酸盐还原功能则在煤质含量较高的煤巷、水仓和采空区中丰度较高,而在地下水中丰度最低。

如图 7a 所示,属水平上不同功能区的水样在组成上差异较大,检出的优势菌属包括地下水中的为噬氢菌属(*Hydrogenophaga*)和鞘氨醇单胞菌(*Sphin-*

gobium);岩巷水中的为好氧的 *Uliginosibacterium* 和具有极强吸附力和有机物降解能力的不动杆菌属(*Acinetobacter*);煤巷水中的为能降解 PAH^[26] 等有机物的新鞘氨醇杆菌属(*Novosphingobium*)和能以硫化物为电子供体进行反硝化作用的伪弧菌(*Pseudarcobacter*)^[27];采空水中的为新鞘氨醇杆菌属、能降解苯并芘的短波单胞菌属(*Brevundimonas*)和氧化硫化物的发硫菌属(*Thiothrix*);水仓水的为具反硝化作用的噬氢菌属和红细菌属(*Rhodobacter*);地表水中的为红细菌属和好氧能降解有机物的生丝单胞菌属(*Hyphomonas*)。采用 Kruskal-Wallis 秩和检验进行属水平上组间差异显著性检验分析,在 6 组水样本中存在显著性差异且丰度在前 15 属的分布结果如图 7b 所示,具有氧化硫化物功能的发硫菌属和硫酸化菌属(*Sulfuricurvum*)^[28-30] 在采空区中分布最高。与氮循环有关的红细菌属、*Candidatus_Limnoluna*、

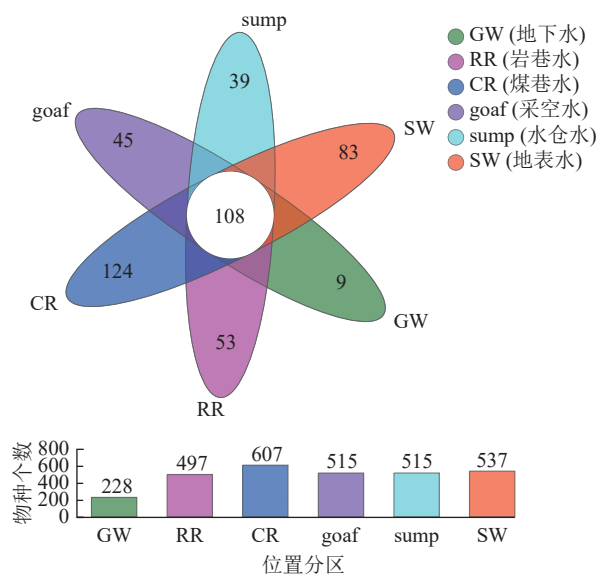


图 5 某矿 6 个分区微生物的总物种、独特物种和共有物种数量在属水平上的分布(Venn 图)

Fig.5 The numbers of total species, unique species and shared species of the microorganisms in the six zones of the research coal mine on genus level (Venn diagram)

Phaeodactylibacter、*norank_f_Saprospiraceae*、*hgcl*、*clade* 和 *Dinghuibacter*^[27,30-32] 在地表水中分布最高。军团菌属(*Legionella*)是一种需氧的机会致病菌,能引起以发热和呼吸道症状为主的疾病,在煤矿和采空区中分布最高,这与该功能区受矿井工作人员活动影响较大有关。具有 PAH 等有机物降解能力的土微菌属(*Pedomicrobium*)和德沃斯氏菌属(*Devosia*)^[33] 在煤巷、水仓和地表水中广泛分布。

2.3 微生物群落与环境特征的相关性

RDA 和 Spearman 相关关系网络图可以用来分析微生物群落与环境变量的相关关系,并有助于揭示微生物群落与环境因子间的响应机制。采用方差膨胀因子分析筛选出共线性较小的 15 个环境因子用于相关性分析。基于 Bray-Curtis 距离的 RDA 分析结果如图 8 所示,图中红色箭头表示数量型环境因子,环境因子箭头的长短可以代表环境因子对于物种数据的影响程度的大小;环境因子箭头间的夹角代表正、负相关性,锐角为正相关、钝角为负相关、直角为无相关性)。不同颜色或形状的点表示水样点,点之间的距离表示两个样本的相似性;从样品点向数量型环境因子的箭头做投影,投影点距离原点的距离远近代表环境因子对样本群落分布相对影响的大小,点与箭头的方向是否一致代表正、负相关性。如图 8 所示,6 组样品点总体上按照分组聚集,但也有组内有离群点,比如白垩系地下水(M23)与其它所有水点距离都较远,这是因为 M23 与矿井水基本没

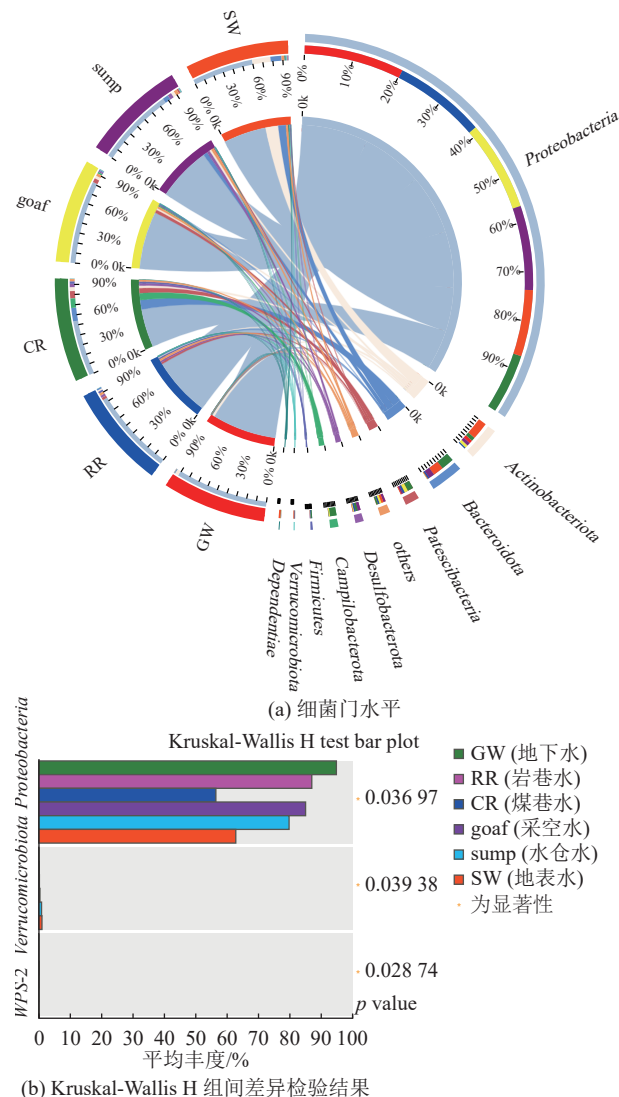


图 6 细菌门水平 Circos 图及 Kruskal-Wallis H 组间差异检验结果

Fig.6 Circos diagram and Kruskal-Wallis H test of distribution of microbial phyla in different zones

有水力联系;煤巷的 3102 工作面进风措施巷道积水(M3)为组内离群值,这可能与此点煤屑含量和 DO 组内最高有关;3 煤采空时间较短的 2 个采空水与其它 3 个采空水差异较大,究其原因与停采时间不同有关,两组停采时间差 1~3 a。水仓水和地表水水样点相近,水仓水通过预处理后排入地表水池会导致其微生物群落分布有一定相似性。 Fe^{2+} ($r^2=0.29$, $p<0.05$)、COD ($r^2=0.25$, $p<0.05$) 和 Fe^{3+} ($r^2=0.22$, $p<0.05$) 与微生物群落分布呈显著相关性。 Fe^{2+} 、 Fe^{3+} 、 NH_4^+ 和 NO_2^- 共 4 个组分与 NO_3^- 、 H_2SiO_3 和 CO_2 共 3 个组分呈负相关,并且与停采时间较长(1~3 a)的 3 个采空水和煤巷的 3102 工作面进风措施巷道积水(M3)呈正相关性,而与岩巷水、大部分地下水、水仓和地表水呈负相关性。COD 和 ORP 与 SO_4^{2-} 呈负相关性,并且与岩巷水和地下水呈正相关性,与大部分

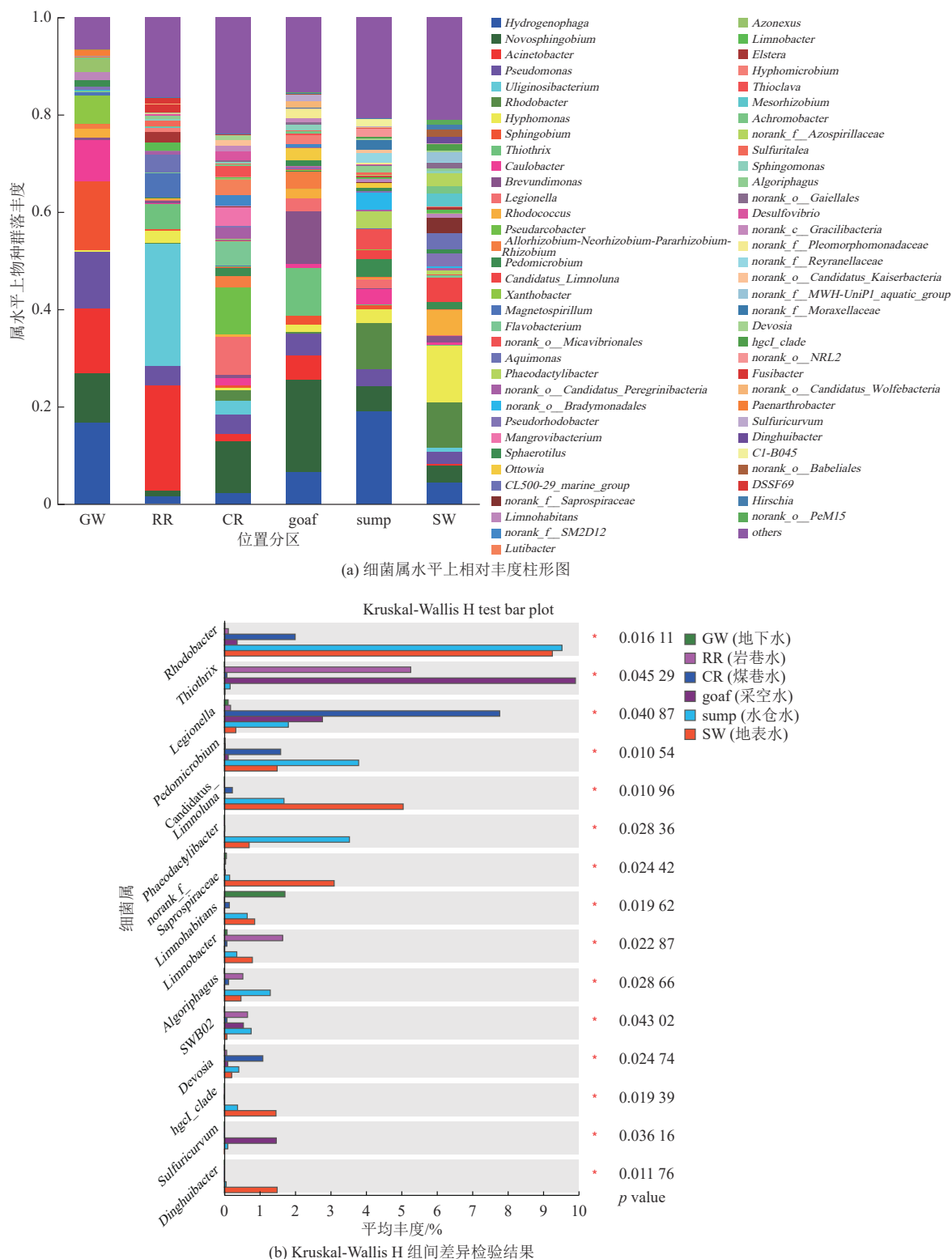


图 7 细菌属水平上相对丰度柱形图及 Kruskal-Wallis H 组间差异检验结果

Fig.7 Relative abundance of the dominant lineages on genus levels and Kruskal-Wallis H test of distribution of microbial genera in different zones

地表水和水仓水呈负相关性。 Ca^{2+} 和 Sr 的元素物理化学性质相似,二者呈正相关关系,主要与地表水和水仓水呈正相关性。综上所述,井工煤矿微生物群落分布不仅与 C 和 N 等营养元素相关,还与 Fe、

COD 和 SO_4^{2-} 等氧化还原敏感物质密切相关,这主要与煤矿开采扰动引发新的水-煤(岩)反应有关。

同时, Spearman 相关关系网络图可进一步反映样本中环境因子与各物种间的相互作用。由图 9 可

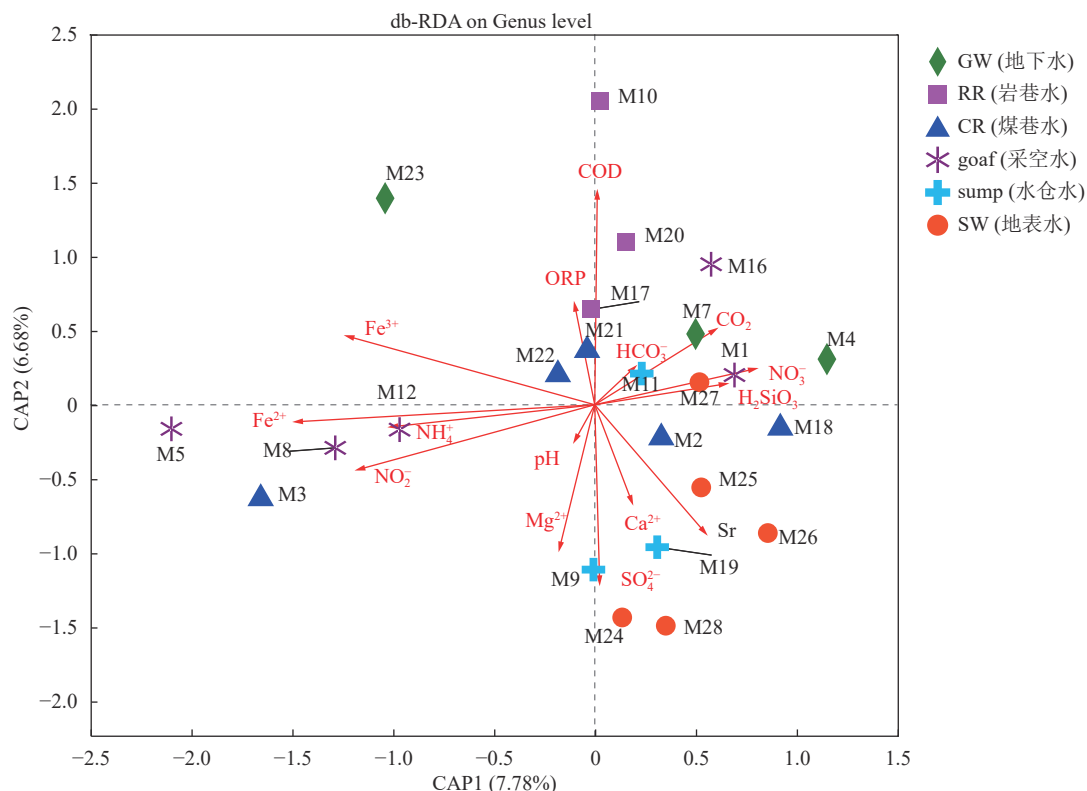


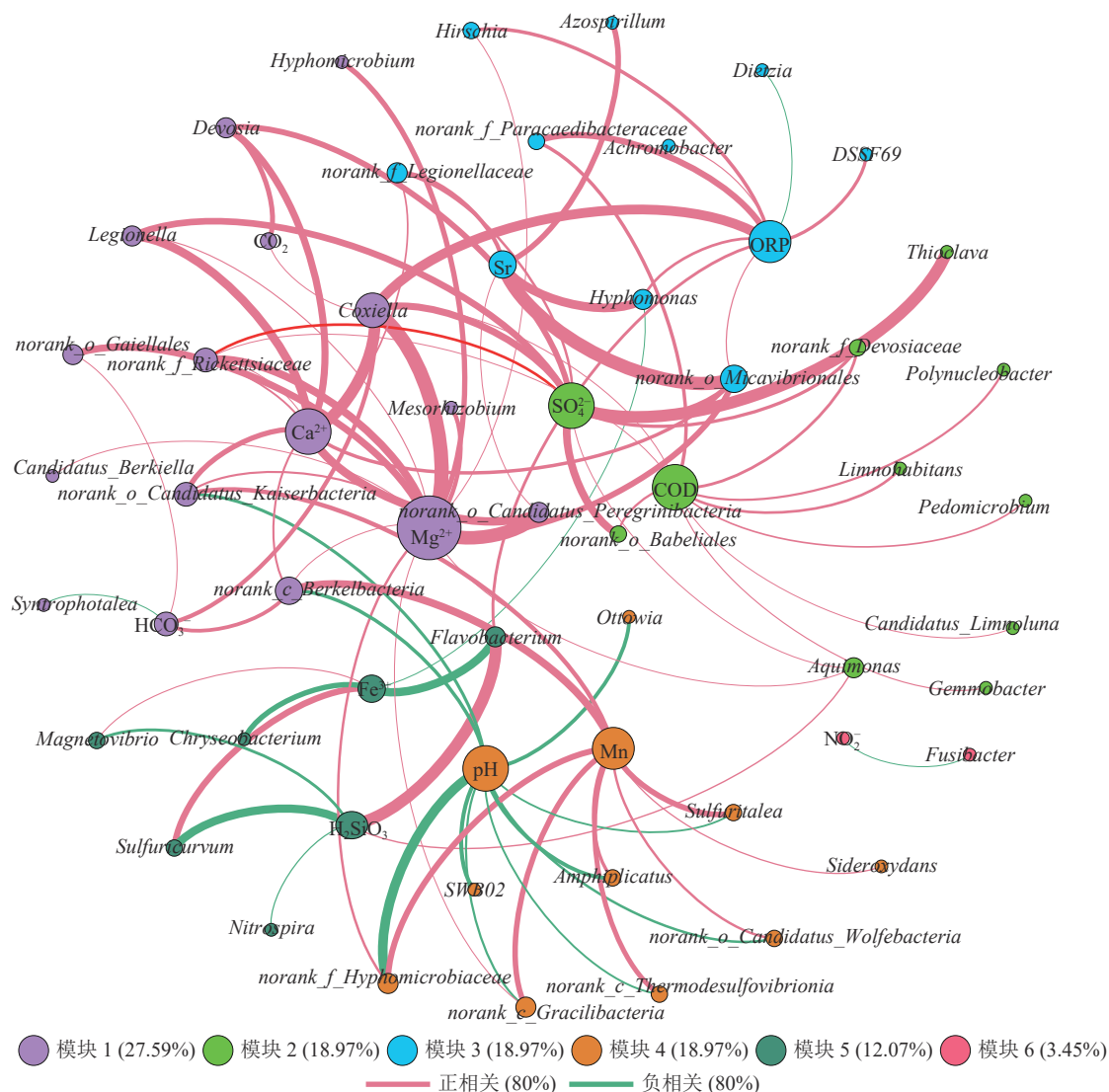
图 8 环境因子和微生物属分类群落基于 Bray-Curtis 距离的 RDA 分析

Fig.8 Bray-Curtis distance-based RDA of the relations between the selected environmental variables and microbial communities in water samples

知,共现性网络图生成了 6 个模块,并且每个模块中的“枢纽”(最大的点即连接度最多的点)都为环境因子,且微生物属水平上前 100 种的物种丰度与大部分水化学指标呈现出显著的相关性($p < 0.05$),说明多数菌群与水化学过程响应灵敏且关系密切。其中,模块 1 占总连接度的 27.59%,包括 4 个环境因子 Mg^{2+} (枢纽)、 Ca^{2+} 、 HCO_3^- 和 CO_2 ,岩层或巷道构筑物水泥中的方解石和白云石的溶解/沉淀是影响这 4 个环境因子的关键水化学过程。钙、镁离子是微生物生命活动中必须的元素, HCO_3^- 和 CO_2 既是微生物重要的无机碳源又是呼吸作用的产物,因此具有致病性的柯克斯体属(*Coxiella*)、军团菌属、立克次氏体属(*norank_f_Rickettsiaceae*)和 *Candidatus_Berkiella*,具有一定耐盐性的 *norank_o_Candidatus_Kaiserbacteria*^[34]、*norank_c_Berkelbacteria*^[35] 和 *Mesorhizobium*,和具有一定降解有机物能力的德沃斯氏菌属和 *norank_o_Gaiellales*^[36] 与环境因子呈现显著正相关性。模块 2 占总连接度的 18.97%,包括 2 个环境因子 SO_4^{2-} 和 COD 均为枢纽,二者主要来自煤层以及井下设备使用的乳化液、润滑油,人类排泄物等。硫氧化菌属(*Thioclava*)与 SO_4^{2-} 呈现显著的正相关,该菌属不仅能促进煤层伴生矿物黄铁矿的氧化生成 SO_4^{2-} ,

而且具有石油烃等煤释放的有机物降解能力。同时,水单胞菌属(*Aquimonas*)和 *norank_f_Devesiaceae* 与 SO_4^{2-} 和 COD 均呈显著正相关,土微菌属也与 COD 呈显著正相关,以上 3 种菌属都可以降解 PAH 等煤释放的有机物。大多数煤矿区矿井水和沉积物的特征污染物包括 SO_4^{2-} 和 PAH,因此模块 2 中响应的微生物菌群对于采用微生物技术进行煤矿区地下水污染防治极其重要。

模块 3 占总连接度的 18.97%,包括 2 个环境因子 ORP(枢纽)和 Sr, ORP 指示水样的氧化还原状态, Sr 主要来自岩层的溶滤释放。好氧能降解有机物的生丝单胞菌属和具有一定反硝化作用的 *norank_o_Micavibrionales*^[37] 与 ORP 和 Sr 均呈显著正相关。Sr 与所关联的微生物均呈正相关,说明低浓度的 Sr 可能会促进微生物的生长和繁殖。石油烃和 PAH 高效降解菌迪茨氏菌属(*Dietzia*)与 ORP 呈显著负相关。模块 4 占总连接度的 18.97%,包括 2 个环境因子 pH 和 Mn 均为枢纽,其中 pH 与微生物丰度呈显著负相关而 Mn 则呈显著正相关。可以氧化 $S_2O_3^{2-}$ 和单质硫的 *Sulfuritalea*^[38]、在采空区中丰度最高能还原硫酸盐的热脱硫弧菌(*norank_c_Thermodesulfobionia*)、可氧化锰的 *norank_f_Hyphomicrobiaceae*、



(每个节点的大小与其连接度成正比;两个节点间连接线的粗细代表 Spearman 相关系数绝对值的大小。连接显示 $|r|>0.5$ 和显著 ($p<0.05$) 的 Spearman 相关性)

图9 丰度前100的属物种与环境因子之间的相关关系网络图

Fig.9 Network of correlation between bacterial genera (top 100 most abundant species) and environmental variables

可氧化降解有机物进行反硝化作用的 *Amphiplicatus*^[39] 和 *norank_o_Candidatus_Wolfebacteria* 同时与 pH 呈负相关与 Mn 呈现正相关。模块 5 占总连接度的 12.07%, 包括 2 个环境因子 H_2SiO_3 (枢纽) 和 Fe^{3+} 。属于硫氧化菌的 *Sulfuricurvum*^[40] 和能够生物合成内膜包被的纳米磁铁矿或者硫化铁的新型结构颗粒的磁性弧菌属 (*Magnetovibrio*) 同时与 H_2SiO_3 呈显著负相关与 Fe^{3+} 呈显著正相关。而能降解水中有有机物且具有较好硝化能力的黄杆菌属 (*Flavobacterium*)^[41] 则与 H_2SiO_3 呈显著正相关与 Fe^{3+} 呈显著负相关。模块 6 占总连接度的 3.45%, 只包括 1 种环境因子 NO_2^- 和物种 *Fusibacter*。*Fusibacter* 为耐盐的还原性细菌, 可以还原铁、硫和砷等, 在 TDS 最高且有结晶盐析出的岩巷壁淋水 (M17) 中最高。综

上所述, 采煤活动扰动了煤层的赋存环境, 产生新的水-煤(岩)作用, 影响了水化学特征和微生物群落; 同时, 水化学特征在一定程度上影响了微生物群落的分布, 微生物群落对环境变化做出响应形成了相对独立的响应类群的同时也驱动了水化学组分的变化。

2.4 矿井水形成典型环境过程中微生物群落演变机制

2.4.1 地下水含水层微生物群落垂直分布特征

直罗组底部含水层混约 10% 延安组水 (M7)、直罗组中部地下水 (M4) 和白垩系志丹群裂隙水 (M23) 是该矿井主要的直接和间接充水水源, 其垂向分布如图 10 所示, 其中 M7 是 3 煤开采的主要充水水源, M4 是 2 煤开采的主要充水水源。这些含水层的水

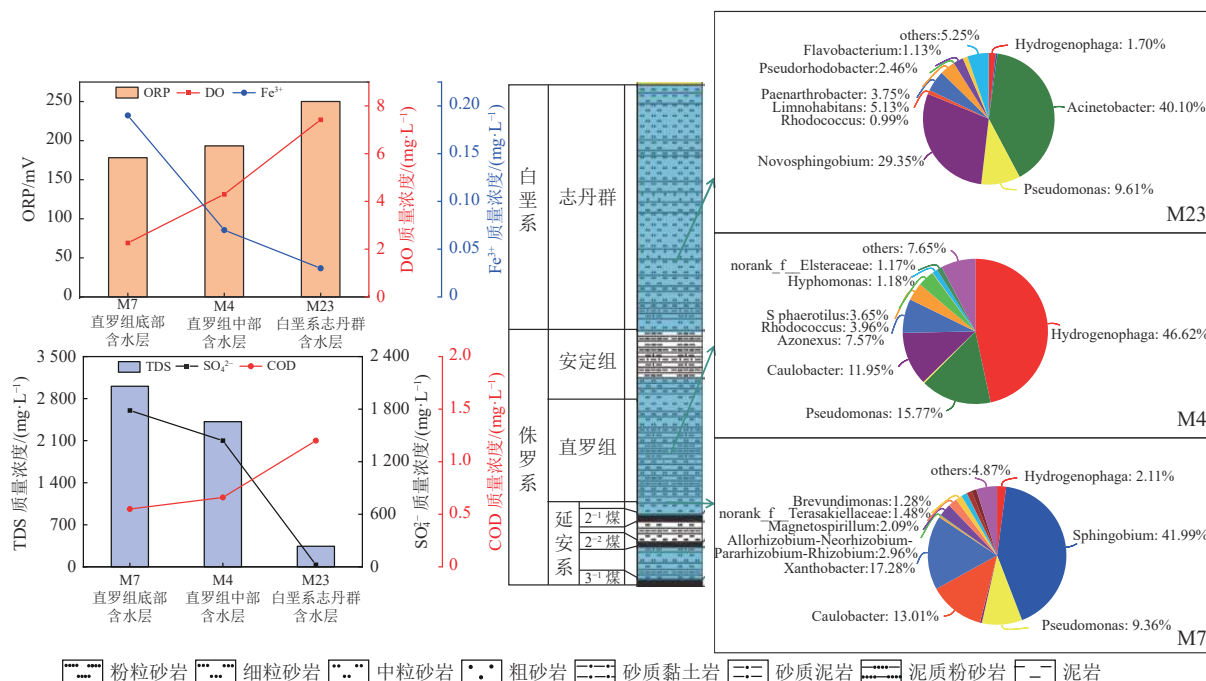


图 10 地下水含水层水化学组成及微生物群落的垂直分布特征

Fig.10 Vertical distribution characteristics of microbial community and hydrochemical composition in groundwater aquifers

化学组成和微生物群落存在明显的垂向差异。如图 10 所示,随着含水层埋深变浅,地下水中的 DO (2.3 ~ 7.4 mg/L) 和 ORP 均逐渐升高 (178.2 ~ 250.1 mV), 而 Fe^{3+} 逐渐降低; 同时 TDS (3 006 ~ 342 mg/L) 和 SO_4^{2-} (1 785 ~ 23 mg/L) 均逐渐降低, 而 COD 逐渐升高。这是因为地下水埋深越浅, 与地表水力联系和物质交换越充分且更偏向氧化环境。微生物群落分布与水化学特征相一致。两组较深层地下水检出的优势菌属均为具有一定降解 PAH 和石油烃等有机物能力的细菌, 其中直罗组底部含水层混 ~ 10% 延安组水 (M7) 为噬氢菌属, 直罗组中部地下水 (M4) 为鞘氨醇单胞菌。然而, 最浅层的白垩系志丹群裂隙水 (M23) 的优势菌属为不动杆菌属, 这是一种常见的致病菌、有很好的生物絮凝作用和代谢多样性且可以降解有机物, 好氧的可以氧化降解有机物的新鞘氨醇杆菌属是 M23 的第二优势菌属 (丰度 29.3%), 此外在地表水中常见的栖湖菌 (*Limnohabitans*)、假红杆菌 (*Pseudorhodobacter*) 和黄杆菌属的丰度也在 M23 中最高。值得关注的是兼性厌氧的能够生物合成内膜包被的纳米磁铁矿的磁螺菌属 (*Magnetospirillum*) 和具有耐盐性且可还原金属离子的潮汐别样希瓦氏菌 (*Alishewanella*) 在 M23 中没有检出, 而在 M7 中丰度最高, 其分布特征与 Fe^{3+} 一致。Azonexus、球衣菌属 (*Sphaerotilus*) 和 *norank_f_Elsteraceae* 均只在 M4 中检出。因此, 在识别出地下水含水层的特征微生物物种后, 可利用充水水源微

生物群落的分布差异进行矿井突(涌)水水源判别。

2.4.2 采煤工作面从开采到关闭全过程中微生物群落变化特征

采煤活动主要在工作面进行, 煤炭开采过程中充水水源从顶底板流入工作面, 与被破碎的煤、煤矸石和少量岩石介质产生新的水-煤(岩)反应; 采煤结束后工作面被挡墙封闭变成采空区, 此时采空区内保持一定的水位产生积水, 又会产生长期的动态变化的水-煤(岩)反应, 这是矿井水水质形成与演化的关键过程。因此, 选取 3 煤的直接充水水源 (M7)、3102 正在开采工作面 (M3)、3 煤停采半年 (M16)、3 煤停采 1 年 (M1)、3 煤停采 2 年 (M12) 和 3 煤停采 3 年 (M8) 作为该过程的代表来研究采煤工作面从开采到关闭全过程中微生物群落变化特征。需要说明的是, 由于无法对同一个工作面进行持续数年的监测, 我们采取了以空间代替时间的实验设计, 这可能会影响结果分析的准确性, 但趋势是相似的。如图 11 所示, 煤层充水水源进入工作面后 pH 和 ORP 略有升高, Fe^{3+} 略有下降, 最值得关注的是 SO_4^{2-} 和 TDS 均大幅升高, 分别升高了 49% 和 55%。矿井水中除了悬浮物明显升高, 特征污染物主要是 SO_4^{2-} 。并且, 相比于充水水源, 具有氧化硫化物能力的硫氧化菌属在 3102 正在开采工作面 (M3) 的丰度明显增加 (图 12)。这均验证了开采扰动后, 煤中伴生的黄铁矿等硫化物与氧气和水充分反应, 在化学氧化和硫氧化菌属等硫氧化菌的微生物催化氧化作用下生成

大量 SO_4^{2-} 、 H^+ 和铁氢氧化物。结合 M3 中 Ca^{2+} 和 Mg^{2+} 也升高, 其 pH 升高与方解石和白云石的溶解有关。同时, 能降解 PAH 等有机物的新鞘氨醇杆菌属 (43.8%)、土微菌属 (6.8%)、德沃斯氏菌属 (2.6%) 和戈登氏菌属 (*Gordonia*) (1.7%) 有明显升高, 这与煤中

大量有机物和机械油等的释放有关, 虽然这些有机物溶解度很低, 但是其赋存在煤块表面或者以油滴形式存在, 都会刺激相关微生物的代谢活动。除此之外, 煤矿工作人员的活动也引入了一些致病菌, 如立克次氏体属。

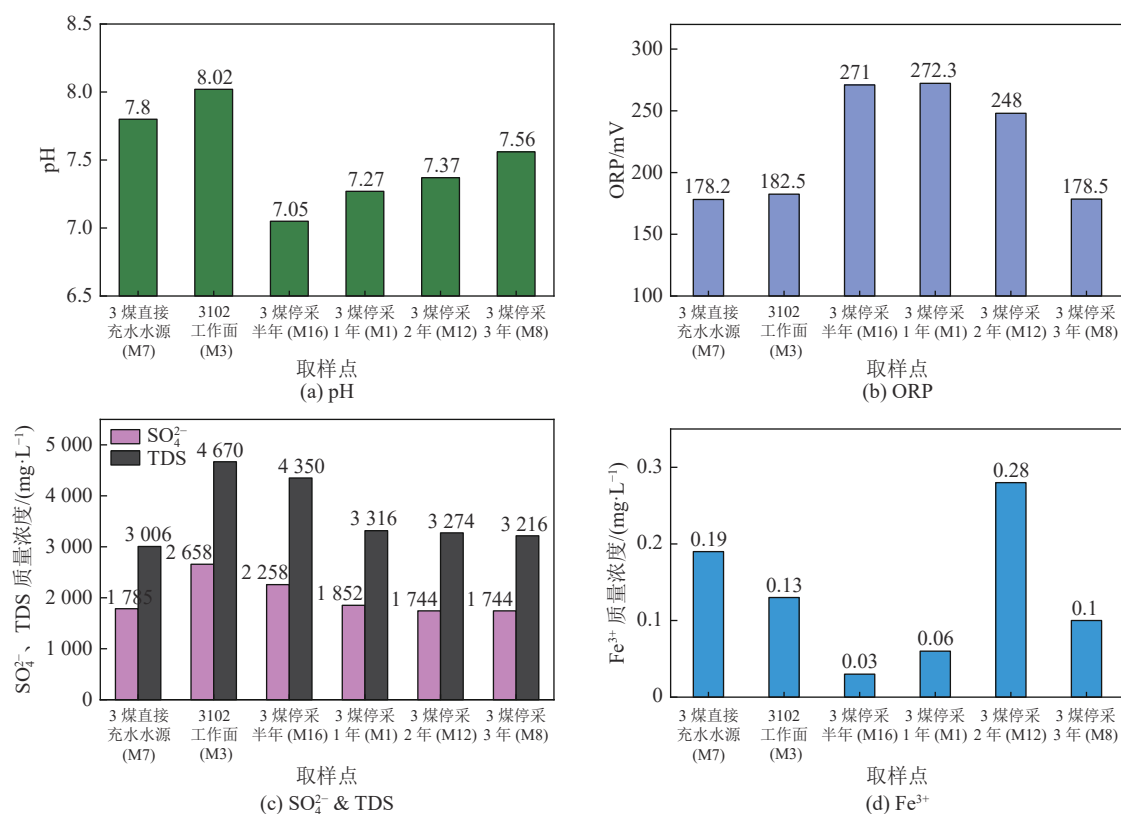


图 11 采煤工作面从开采到关闭全过程中特征水化学指标变化特征

Fig.11 Characteristics of hydrochemical composition changes in coal pannel from mining to closure

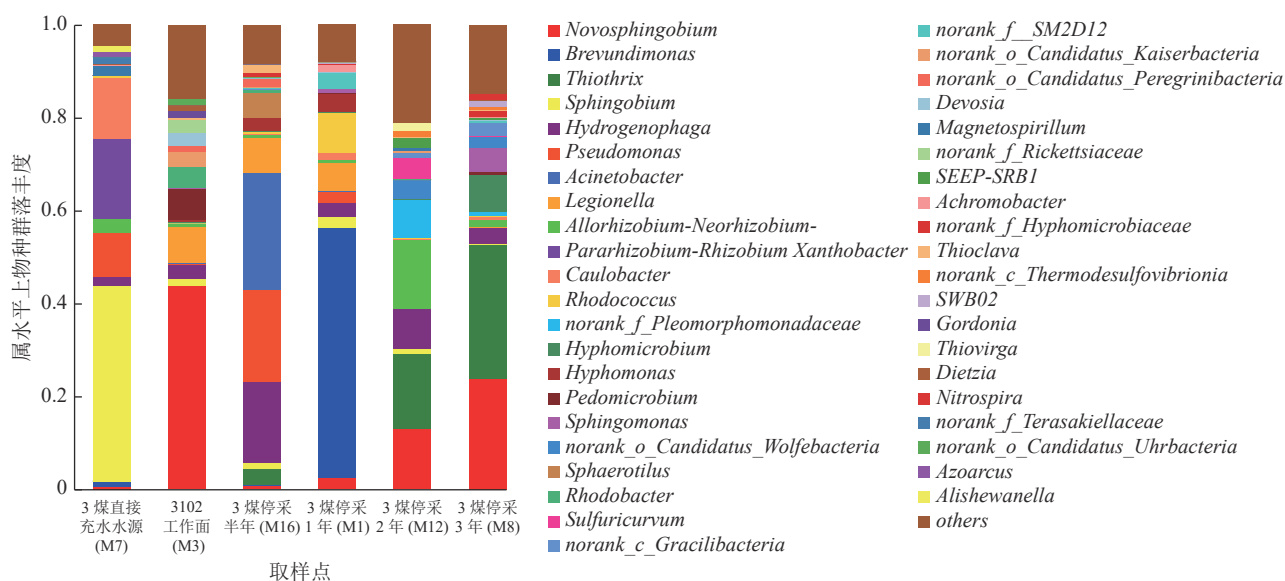
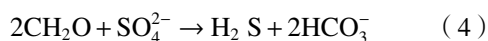


图 12 采煤工作面从开采到关闭全过程中微生物群落变化特征

Fig.12 Characteristics of microbial community changes in coal pannel from mining to closure

如图 11 所示,工作面停采关闭后,随着停采时间的延长 pH 先降低后升高,ORP 先增加后降低,Fe³⁺有检出且停采 2 年后的 M12 还检出了还原态的 Fe²⁺,更值得关注的是 SO₄²⁻ 和 TDS 均大幅降低,停采半年、1 年、2 年和 3 年后,SO₄²⁻ 分别降低了 15%、30%、34% 和 34%。同时,图 12 表明随着停采时间的延长热脱硫弧菌丰度增加(停采 2 年的最高其次是停采 3 年的),此菌属于厌氧的硫酸盐还原菌,能还原 SO₄²⁻ 产生 H₂S(式(4))。此结果与研究团队在山东新巨龙煤矿的研究一致:采空区封闭 12 年后 SO₄²⁻ 降低了 42%^[23]。随着采空时间的延长,采空区蓄水后趋于厌氧还原环境,因此有利于硫酸盐还原菌的生长和繁殖,并且煤中释放的小分子有机物还可为硫酸盐还原菌提供源源不断的碳源,从而提高采空区的自净能力。考虑到停采前半年 SO₄²⁻ 降低最快,推测是由于垮落的岩石介质等对 SO₄²⁻ 的物理或化学吸附、沉淀作用占主导^[2,42]。停采 2 年和 3 年 SO₄²⁻ 降低程度反而相当,这可能是 2 个采空区的封闭条件和物源特征不同导致硫酸盐还原菌代谢活动不同。除此之外,与正在开采的工作面一致,采空区也检出了具有 PAH 和石油烃等有机物降解菌(新鞘氨醇杆菌属和短波单胞菌属等)以及硫氧化菌(发硫菌属和硫氧化菌属等)。为了验证以上野外调研的结论,研究团队还进行了为期 1 年的采空区水质演化的室内模拟批试验和三维箱式试验,结果表明 SO₄²⁻ 浓度先升高(0~30 d);30 d 后 SO₄²⁻ 浓度持续降低,截止到反应 365d 降低了 15%。此时微生物测序结果也表明硫酸盐还原菌丰度较高,还原 SO₄²⁻ 生成具有臭鸡蛋气味的 H₂S。同时通过对比不同封闭条件下 SO₄²⁻ 浓度的变化趋势可得,封闭条件越好,越有利于硫酸盐还原菌对 SO₄²⁻ 的还原降解。此部分内容正在整理和撰写中,具体分析见后续发表的文章。综上所述,采空区具有一定的自净能力,工作面停采积水一段时间后不仅能降低悬浮物而且还能通过物理、化学和硫酸盐还原菌的作用降低特征污染物 SO₄²⁻,同时还有一定的 PAH 等有机物自然衰减潜力。在实际工程中,根据 SO₄²⁻ 生成和降解机制,可通过通氮气保持工作面的厌氧条件,一方面可以从源头上减少低价硫化物的氧化,另一方面能促进硫酸盐还原菌的 SO₄²⁻ 还原活动,从而实现矿井水的污染防控。



3 结 论

1)在研究区,矿井水的水化学组分基本继承了

其直接充水水源的主要成分,均为 SO₄Na 型,TDS 较高(2~9 g/L)且特征水化学组分表现出明显的区域差异性。矿井水中的特征污染物为 SO₄²⁻,在煤巷和地表水池中浓度最高;pH 值均为中性偏碱,在采空区中最低。6 组水样微生物群落平均多样性排序为:水仓>地表水>煤巷>采空区>岩巷~地下水,水仓水中的微生物丰富度和多样性最高,而地下水中的均最低。

2)不同功能区的微生物群落组成差异明显:属水平上检出的优势菌属包括具有氧化硫化物功能的发硫菌属和硫氧化菌属,具有 PAH 等有机物降解能力的新鞘氨醇杆菌属和短波单胞菌属等,以及有致病性的军团菌属在煤巷和采空区中分布较高;好氧的 *Uliginosibacterium* 和具有极强吸附力和有机物降解能力的不动杆菌属在岩巷中丰度最高;与氮循环有关的噬氢菌属和红细菌属在水仓和地表水中分布较高。3 个地下水样品微生物组成差异明显,尤其是磁螺菌属和耐盐的潮汐别样希瓦氏菌在 M23 中没有检出,而在 M7 中丰度最高。因此,可利用充水水源的微生物群落分布差异进行矿井突(涌)水水源判别。

3)RDA 和共现性网络分析表明,微生物群落与水化学过程响应灵敏且关系密切。井工煤矿微生物群落分布不仅与 C、N、Ca、Mg 等营养元素相关,还与 Fe、COD 和 SO₄²⁻ 等氧化还原敏感物质密切相关。采煤活动扰动了煤层的赋存环境,产生新的水-煤(岩)作用,影响了水化学特征和微生物群落;并且,水化学特征在一定程度上影响了微生物群落的分布,微生物群落对环境变化做出响应形成了相对独立的响应类群的同时也驱动了水化学组分的变化。

4)煤巷和采空区是地下水污染防治的关键区域。开采扰动后,煤中伴生的黄铁矿等硫化物与氧气和水充分反应,在化学氧化和硫氧化菌的微生物催化氧化作用下生成大量 SO₄²⁻。然而,当工作面停采半年到 3 年后,在沉淀、物理和化学吸附作用(前期占主导),以及硫酸盐还原菌的还原作用下(后期占主导),特征污染物 SO₄²⁻ 降低了 15%~34%,并且采空区还有一定的 PAH 等有机物自然衰减潜力。因此,根据 SO₄²⁻ 生成和降解机制,一方面可通过通氮气保持工作面的厌氧条件,从源头上减少 SO₄²⁻ 的生成;另一方面可以筛选、培养硫酸盐还原菌和有机物降解菌,制作成生物材料投加到井下进行原位地下水污染修复。

参考文献(References):

[1] 何绪文,杨 静,邵立南,等.我国矿井水资源化利用存在的问题

- 与解决对策[J]. *煤炭学报*, 2008, 33(1): 63–66.
- HE Xuwen, YANG Jing, SHAO Linan, *et al.* Problem and counter measure of mine water resource regeneration in China[J]. *Journal of China Coal Society*, 2008, 33(1): 63–66.
- [2] 顾大钊, 李 庭, 李井峰, 等. 我国煤矿矿井水处理技术现状与展望[J]. *煤炭科学技术*, 2021, 49(1): 11–18.
- GU Dazhao, LI Ting, LI Jingfeng, *et al.* Current status and prospects of coal mine water treatment technology in China[J]. *Coal Science and Technology*, 2021, 49(1): 11–18.
- [3] 孙亚军, 张 莉, 徐智敏, 等. 煤矿区矿井水水质形成与演化的多场作用机制及研究进展[J]. *煤炭学报*, 2022, 47(1): 423–437.
- SUN Yajun, ZHANG Li, XU Zhimin, *et al.* Multi field action mechanism and research progress of coal mine water quality formation and evolution[J]. *Journal of China Coal Society*, 2022, 47(1): 423–437.
- [4] 杨 建, 王强民, 刘 基, 等. 煤矿井下不同区域矿井水中有有机污染特征[J]. *煤炭学报*, 2018, 43(S2): 546–552.
- YANG Jian, WANG Qiangmin, LIU Ji, *et al.* Fluorescence characteristics of dissolved organic matter in underground different position of coal mine[J]. *Journal of China Coal Society*, 2018, 43(S2): 546–552.
- [5] 孙文洁, 任顺利, 武 强, 等. 新常态下我国煤矿废弃矿井水污染防治与资源化综合利用[J]. *煤炭学报*, 2022, 47(6): 2161–2169.
- SUN Wenjie, REN Shunli, WU Qiang, *et al.* Water pollution's prevention and comprehensive utilization of abandoned coal mines in China under the new normal life[J]. *Journal of China Coal Society*, 2022, 47(6): 2161–2169.
- [6] 王昱同, 王 皓, 王甜甜, 等. 蒙陕接壤浅埋煤层区矿井水水化学特征及资源化利用研究[J]. *煤炭科学技术*, 2022, 50(S2): 423–432.
- WANG Yutong, WANG Hao, WANG Tiantian, *et al.* Study on mine water hydrochemical characteristics and resource utilization in shallow buried coal seams in Shanxi and inner Mongolia contiguous area[J]. *Coal Science and Technology*, 2022, 50(S2): 423–432.
- [7] MEHEUST R, CASTELLE CJ, CARNEVALI PBM, *et al.* Groundwater *Elusimicrobia* are metabolically diverse compared to gut microbiome *Elusimicrobia* and some have a novel nitrogenase paralog[J]. *Isme Journal*, 2020, 14: 2907–2922.
- [8] 李文博, 冯启言, 高 波, 等. 徐州权台煤矿井下 700m 水平微生物群落分布特征[J]. *生态学杂志*, 2021, 40(2): 442–452.
- LI Wenbo, FENG Qiyang, GAO Bo, *et al.* Distribution characteristics of microbial communities at a depth of 700 m level of Quantai coal mine in Xuzhou[J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2021, 40(2): 442–452.
- [9] 张怀胜, 王梦园, 蔡五田, 等. 深层含氟地下水微生物群落组成及环境响应特征[J]. *地球科学*, 2021, 46(10): 1–12.
- ZHANG Huaisheng, WANG Mengyuan, CAI Wutian, *et al.* Characteristics of microbial community composition and environmental response in deep fluorinated groundwater[J]. *Earth Science*, 2021, 46(10): 1–12.
- [10] BRANTNER JS, SENKO JM. Response of soil-associated microbial communities to intrusion of coal mine-derived acid mine drainage[J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, 48: 8556–8563.
- [11] DE QUADROS PD, ZHALNINA K, DAVIS-RICHARDSON AG, *et al.* Coal mining practices reduce the microbial biomass, richness and diversity of soil[J]. *Applied Soil Ecology*, 2016, 98: 195–203.
- [12] BAO Y, GUO C, WANG H, *et al.* Fe- and S-metabolizing microbial communities dominate an AMD-contaminated river ecosystem and play important roles in Fe and S cycling[J]. *Geomicrobiology Journal*, 2017, 34: 695–705.
- [13] JIN L, GERSON JR, ROCCA JD, *et al.* Alkaline mine drainage drives stream sediment microbial community structure and function[J]. *Science of the Total Environment*, 2022, 805: 1–10.
- [14] ZHANG X, TANG S, WANG M, *et al.* Acid mine drainage affects the diversity and metal resistance gene profile of sediment bacterial community along a river[J]. *Chemosphere*, 2019, 217: 790–799.
- [15] BEN MAAMAR S, AQUILINA L, QUAISER A, *et al.* Groundwater isolation governs chemistry and microbial community structure along hydrologic flow paths[J]. *Frontiers in Microbiology*, 2015, 6: 1–13.
- [16] RAUDSEPP MJ, GAGEN EJ, EVANS P, *et al.* The influence of hydrogeological disturbance and mining on coal seam microbial communities[J]. *Geobiology*, 2016, 14: 163–175.
- [17] 陈家玉, 桂和荣, 郭 艳, 等. 淮北煤田深层地下水微生物群落特征及其水源示踪意义[J]. *煤炭学报*, 2022, 47(12): 1–11.
- CHEN Jiayu, GUI Herong, GUO Yan, *et al.* Microbial community characteristics of deep groundwater in Huaibei coalfield and its significance in water source tracing[J]. *Journal of China Coal Society*, 2022, 47(12): 1–11.
- [18] ONIFADE M, LAWAL AI, ABDULSALAM J, *et al.* Development of multiple soft computing models for estimating organic and inorganic constituents in coal[J]. *International Journal of Mining Science and Technology*, 2021, 31: 483–494.
- [19] 高 波. 关闭煤矿多环芳烃的赋存特征及生物降解机理研究[D]. 徐州: 中国矿业大学, 2019: 89.
- GAO Bo. Study on occurrence and biodegradation mechanism of pahs in closed coal mine[D]. Xuzhou: China University of Mining and Technology, 2019: 89.
- [20] 张燕婷. 专性混合菌群降解闭矿地下水中多环芳烃的实验研究[D]. 徐州: 中国矿业大学, 2019: 12–16.
- ZHANG Yanting. Experimental study on the degradation of polycyclic Aromatic Hydrocarbons in groundwater by Obligate Mixed Bacteria[D]. Xuzhou: China University of Mining and Technology, 2019: 12–16.
- [21] GAO P, SUN XX, XIAO EZ, *et al.* Characterization of iron-metabolizing communities in soils contaminated by acid mine drainage from an abandoned coal mine in Southwest China[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2019, 26(10): 9585–9598.
- [22] WANG Y, WANG C, CHEN YL, *et al.* Microbiome analysis reveals microecological balance in the emerging rice–crayfish integrated breeding mode[J]. *Frontiers in Microbiology*, 2021, 12:

- 1-13.
- [23] ZHANG L, XU ZM, SUN YJ, *et al.* Coal mining activities driving the changes in microbial community and hydrochemical characteristics of underground mine water[J]. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2022, 19(20): 1-22.
- [24] AN X, BAKER P, LI H, *et al.* The patterns of bacterial community and relationships between sulfate-reducing bacteria and hydrochemistry in sulfate-polluted groundwater of Baogang rare earth tailings[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, 23: 21766-21779.
- [25] 邢浩, 杜古尔·卫卫, 薛娜娜, 等. 哈密露天煤矿不同环境介质微生物群落特征分析[J]. *微生物学通报*, 2022, 49(11): 4525-4537.
- XING Hao, Duguer Weiwei, XUE Na'na, *et al.* Microbial community characteristics of different environmental media in Hami open-pit coal mine[J]. *Microbiology. China*, 2022, 49(11): 4525-4537.
- [26] AN D, CAFFREY SM, SOH J, *et al.* Metagenomics of hydrocarbon resource environments indicates aerobic taxa and genes to be unexpectedly common[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47: 10708-10717.
- [27] XU X J, WU Y N, XIAO Q Y, *et al.* Simultaneous removal of NO_x and SO₂ from flue gas in an integrated FGD-CABR system by sulfur cycling-mediated Fe(II) EDTA regeneration[J]. *Environmental Research*, 2022, 205: 1-8.
- [28] 王霖, 种云霄, 余光伟, 等. 黑臭底泥硝酸钙原位氧化的温度影响及微生物群落结构全过程分析[J]. *农业环境科学学报*, 2015, 34: 1187-1195.
- WANG Lin, ZHONG Yunxiao, YU Guangwei, *et al.* Temperature Effect on and Microbial Community Structure Dynamics During In-situ Oxidation of Black and Odorous Sediment by Calcium Nitrate[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2015, 34: 1187-1195.
- [29] GUO B, YU N, WEISSBRODT DG, *et al.* Effects of micro-aeration on microbial niches and antimicrobial resistances in blackwater anaerobic digesters[J]. *Water Research*, 2021, 196: 1-11.
- [30] 谢嘉倩, 辛晓东, 洪俊明, 等. 闽南地区低温下复合填料强化生物滤柱除臭及微生物分析[J]. *环境工程学报*, 2022, 16(4): 1123-1132.
- XIE Jiaqian, XIN Xiaodong, HONG Junming, *et al.* Efficiency and microbial analysis of deodorization process of biofilter enhanced by composite filler under low temperature in Southern Fujian[J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2022, 16(4): 1123-1132.
- [31] RUPRECHT JE, BIRRER SC, DAFFORN KA, *et al.* Wastewater effluents cause microbial community shifts and change trophic status[J]. *Water Research*, 2021, 200: 1-11.
- [32] MA R, DUAN C, LIU Y, *et al.* Pre-aeration promotes nutrient removal in a pilot-scale duckweed-based pond by influencing the duckweed growth and bacterial community[J]. *Journal of Water Process Engineering*, 2023, 53: 1-10.
- [33] SONG L, NIU X, TIAN Y, *et al.* Assessment of PAH degradation potential of native species from a coking plant through identifying of the beneficial bacterial community within the rhizosphere soil[J]. *Chemosphere*, 2021, 264: 1-9.
- [34] ZHU X, LEE LW, SONG G, *et al.* Deciphering mono/multi-valent draw solute-induced microbial ecology and membrane fouling in anaerobic osmotic membrane bioreactor[J]. *Water Research*, 2022, 209: 1-14.
- [35] WANG M, ZHANG W, ZHAO J, *et al.* Distinct structural strategies with similar functional responses of abundant and rare subcommunities regarding heavy metal pollution in the Beiyun river basin[J]. *Chemosphere*, 2022, 309: 1-12.
- [36] LIN W, FAN F, XU G, *et al.* Microbial community assembly responses to polycyclic aromatic hydrocarbon contamination across water and sediment habitats in the Pearl River Estuary[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2023, 457: 1-10.
- [37] 江肖良. 双层填料 SBBR 深度处理二级出水净化机制研究[D]. 武汉: 武汉理工大学, 2020: 70.
- JIANG Xiaoliang. Study on purification mechanism of secondary effluent advanced treatment by double-layer-packed SBBR[D]. Wuhan: Wuhan University of Technology, 2020: 70.
- [38] 陈俊松, 杨渐, 蒋宏忱. 湖泊硫循环微生物研究进展[J]. *微生物学报*, 2020, 60(6): 1177-1191.
- CHEN Junsong, YANG Jian, JIANG Hongchen. Research progress on microbes involved in lacustrine sulfur cycling[J]. *Acta Microbiologica Sinica*, 2020, 60(6): 1177-1191.
- [39] XU M, GAO P, CHEN HQ, *et al.* Spatiotemporal distribution of microorganisms in a full-scale anaerobic baffled reactor-anoxic/oxic treatment plant for printing and dyeing wastewater[J]. *Journal of Water Process Engineering*, 2022, 49: 1-10.
- [40] SHUANG B, MEILIN Y, ZHENG C, *et al.* Distribution of functional microorganisms and its significance for iron, sulphur, and nitrogen cycles in reservoir sediments[J]. *Acta Geochimica*, 2021, 40: 961-972.
- [41] 甘美君, 曾庆鹏, 王海蓉, 等. 脱氮菌 *Flavobacterium* sp. FL211T 的筛选与硝化特性研究[J]. *环境保护与循环经济*, 2017, 37(11): 16-21.
- GAN Meijun, ZENG Qingpeng, WANG Hairong, *et al.* Screening and nitrification characteristics of denitrification bacterium *Flavobacterium* sp. FL211T[J]. *Environmental Protection and Circular Economy*, 2017, 37(11): 16-21.
- [42] 房满义, 李雪妍, 张根, 等. 煤矿地下水库水岩作用机理研究: 以大柳塔煤矿为例[J]. *煤炭科学技术*, 2022, 50(11): 236-242.
- FANG Manyi, LI Xueyan, ZHANG Gen, *et al.* Research on water-rock interaction mechanism in coal mine underground reservoir-taking Daliuta Coal Mine as an example[J]. *Coal Science and Technology*, 2022, 50(11): 236-242.