

# 海洋环境中卤代有机化合物的厌氧微生物还原脱卤研究进展

谢焯婷<sup>1,2</sup>, 张晓艳<sup>1</sup>, 邓招超<sup>2,3</sup>, 胡松涛<sup>2</sup>, 姜丽佳<sup>2</sup>, 李艳红<sup>1</sup>, 章春芳<sup>\*1,2</sup>

1 桂林理工大学 环境科学与工程学院, 广西 桂林 541006

2 浙江大学 海洋学院, 浙江 舟山 316021

3 浙江大学 舟山海洋研究中心, 浙江 舟山 316021

谢焯婷, 张晓艳, 邓招超, 胡松涛, 姜丽佳, 李艳红, 章春芳. 海洋环境中卤代有机化合物的厌氧微生物还原脱卤研究进展[J]. 微生物学通报, 2025, 52(3): 881-895.

XIE Yeting, ZHANG Xiaoyan, DENG Zhaochao, HU Songtao, JIANG Lijia, LI Yanhong, ZHANG Chunfang. Advances in reductive dehalogenation of halogenated organic compounds by anaerobic microorganisms in the marine environment[J]. Microbiology China, 2025, 52(3): 881-895.

**摘要:** 卤代有机化合物(halogenated organic compounds, HOCs)因其潜在的毒性、环境持久性及生物富集性而备受关注。海洋环境是HOCs重要汇集地, 不仅累积了大量人工合成的HOCs, 还包含多种天然产生的HOCs。微生物驱动的厌氧还原脱卤过程是HOCs污染治理的重要方法, 其中有机卤化物呼吸细菌(organohalide-respiring bacteria, OHRB)在HOCs的生物修复和地球化学循环过程中发挥着核心作用。本文概述了海洋环境中HOCs的来源、分布、微生物厌氧还原脱卤机制, 以及已分离的OHRB和还原脱卤酶的研究进展, 旨在为海洋环境中HOCs的生物修复提供参考, 并为厘清海洋环境中卤素的生物地球化学循环过程提供理论基础。此外, 本文还探讨了海洋和陆地脱卤菌的特性差异及其潜在联系, 以阐明它们在不同生态系统中的环境适应性及其进化起源。

**关键词:** 卤代有机化合物; 海洋环境; 有机卤化物呼吸细菌; 还原脱卤酶

资助项目: 国家自然科学基金(42276150, 41977269)

This work was supported by the National Natural Science Foundation of China (42276150, 41977269).

\*Corresponding author. E-mail: zhangcf@zju.edu.cn

Received: 2024-06-02; Accepted: 2024-09-05; Published online: 2024-09-26

## Advances in reductive dehalogenation of halogenated organic compounds by anaerobic microorganisms in the marine environment

XIE Yeting<sup>1,2</sup>, ZHANG Xiaoyan<sup>1</sup>, DENG Zhaochao<sup>2,3</sup>, HU Songtao<sup>2</sup>, JIANG Lijia<sup>2</sup>, LI Yanhong<sup>1</sup>, ZHANG Chunfang<sup>\*1,2</sup>

1 College of Environmental Science and Engineering, Guilin University of Technology, Guilin 541006, Guangxi, China

2 Ocean College, Zhejiang University, Zhoushan 316021, Zhejiang, China

3 Ocean Research Center of Zhoushan, Zhejiang University, Zhoushan 316021, Zhejiang, China

**Abstract:** Halogenated organic compounds (HOCs) have gained increasing attention due to their potential toxicity, environmental persistence, and bioconcentration. The marine environment is a major source and sink of HOCs, not only accumulating large amounts of anthropogenic HOCs but also containing a wide range of naturally produced HOCs. Microbial reductive dehalogenation is a key strategy for the remediation of HOCs pollution, in which organohalide-respiring bacteria (OHRB) play a pivotal role in the bioremediation and geochemical cycling of HOCs. This article provides an overview of the sources and distribution of HOCs in the marine environment as well as the mechanisms of reductive dehalogenation by anaerobic microorganisms. It systematically reviews the research progress in reductive dehalogenating bacteria that have been isolated from the marine environment and the reductive dehalogenases, aiming to provide a reference for the bioremediation of HOCs in the marine environment and lay a theoretical foundation for clarifying the biogeochemical cycle of halogens in the marine environment. Additionally, this article explores the differences in the properties of marine and terrestrial dehalogenating bacteria and their potential connections, which are important for elucidating their evolution and environmental adaptation in different ecosystems.

**Keywords:** halogenated organic compounds (HOCs); marine environment; organohalide-respiring bacteria; reductive dehalogenase

卤代有机化合物 (halogenated organic compounds, HOCs), 是指含有氟、氯、溴或碘等卤族元素的有机化合物, 因其独特的化学性质而被广泛用于工农业领域中<sup>[1]</sup>。尽管许多 HOCs 的生产和使用已逐渐受到限制, 但由于它们具有环境持久性、难降解性和三致效应等特性, 一旦释放到环境中, 会在多种环境介质 (水体、沉积物和生物体) 中长期累积<sup>[2]</sup>。这不仅对陆地、海洋生态系统造成严重的环境风险, 还会对人类健康构成威胁<sup>[3-5]</sup>。海洋环境是

HOCs 的重要源与汇, 这些化合物在海洋环境中的来源多样, 既源自工农业生产、海上渔业等人类活动产生的 HOCs, 也包括海洋生物和非生物过程合成的天然 HOCs<sup>[6-8]</sup>。然而, 我们对 HOCs 在海洋环境中的来源与分布系统认识存在不足。因此, 有必要整理 HOCs 在海洋环境中的来源与分布特征, 这对于揭示 HOCs 在海洋中的环境行为具有重要意义。

微生物驱动的厌氧还原脱卤是海洋环境中 HOCs 降解和转化的重要过程, 并且微生物对

HOCs 的还原脱卤作用是利用还原脱卤酶 (reductive dehalogenase, RDase) 介导实现的<sup>[9]</sup>。自 20 世纪 80 年代发现海洋沉积物中的微生物能够对溴酚进行厌氧脱溴作用以来, 我们对海洋脱卤菌的认识不断深化<sup>[10]</sup>。现有研究表明, 还原脱卤过程和脱卤微生物在海洋环境中普遍存在<sup>[11-15]</sup>。同时, 在海洋冷泉区域还发现了丰富的脱卤微生物资源和新颖的脱卤酶基因<sup>[16]</sup>。此外, 海洋脱卤菌与陆地脱卤菌之间可能存在代谢机制和生态功能上的相似性<sup>[17]</sup>。然而, 目前大部分已获得脱卤菌及其富集培养物都是来自陆地或淡水环境, 关于海洋环境中厌氧还原脱卤菌的功能特性及其环境适应性等相关研究较少, 并且缺乏系统认识<sup>[18]</sup>。因此, 总结现有的海洋脱卤菌/脱卤培养物的生理特性、代谢途径、生长环境、电子受体以及与其他生物地球化学过程的耦合作用, 这对于挖掘新的海洋脱卤菌、揭示它们在生态系统中的作用, 以及探索其与陆地脱卤菌之间的潜在联系都具有重要意义。

本文综述了海洋环境中 HOCs 的来源、分布及微生物驱动还原脱卤过程的研究进展, 系统总结了海洋脱卤菌/菌群的降解特性, 以及与之相关的脱卤酶和脱卤酶基因的研究现状; 探讨了海洋脱卤菌与陆地脱卤菌在代谢特征和生态功能上的相似性与差异。此外, 本文还提出了一系列针对性的建议, 旨在促进海洋脱卤微生物资源的进一步开发和应用, 为实现海洋环境中 HOCs 的有效管理和生物修复提供科学依据。

## 1 海洋环境中 HOCs 的来源与分布

### 1.1 HOCs 的来源

在海洋中, HOCs 的来源可归纳为两大类:

人为来源和天然来源<sup>[19-20]</sup> (图 1)。人为来源包括工农业生产排放、海上渔业、船舶交通及海上石油开采等活动<sup>[21]</sup>。除了地表径流和直接排放, 某些挥发性/半挥发性 HOCs 还可以经过远距离大气传输到海洋上空, 再通过干沉降(以颗粒态形式)以及水-空气界面交换(以气态形式)的方式进入海洋<sup>[22]</sup>。海洋环境中的部分 HOCs 会在生物体内蓄积, 在食物链中产生生物放大效应, 对海洋生物和人类健康构成潜在风险<sup>[23]</sup>。最终, HOCs 会沉降至海底或经海洋生物蓄积后随其死亡分解重新回到环境中。

除了人类活动产生的 HOCs, 海洋环境本身蕴含着丰富的天然有机卤化物(图 2)。目前, 已发现超过 8 400 种天然有机卤化物, 而海洋环境是天然有机卤化物最大的来源<sup>[24]</sup>。例如, 海洋中的藻类和海绵能产生多种 HOCs, 如溴仿、溴酚等, 可作为化学防御剂对抗捕食者<sup>[25-26]</sup>。此外, 海洋微生物在分解有机物的过程中也可能产生 HOCs, 如弯孢菌(*Curvularia inaequalis*) 在分解木质素时, 可能会通过氧化还原反应产生活性氯, 进而与木质素的芳香环发生反应, 形成 HOCs<sup>[27]</sup>。除了生物卤化过程, 各种非生物过程, 如光化学反应、火山活动等也可以产生 HOCs<sup>[28-29]</sup>。

### 1.2 HOCs 的分布特征

截至目前, HOCs 已在海水、沉积物及海洋生物等多种环境介质中被检测到<sup>[30-32]</sup>, 其分布范围广泛, 包括河口<sup>[33]</sup>、沿海地区<sup>[34]</sup>、深海乃至极地区域<sup>[35]</sup>。例如, 在印度洋表层沉积物中, 有机氯农药(organochlorine pesticides, OCPs)、多氯联苯(polychlorinated biphenyls, PCBs)和多溴联苯醚(polybrominated diphenyl ethers, PBDEs)等 HOCs 被检出, 其中 OCPs 总浓度最高, 为(1 051±305) pg/g, 这可能与东印度洋周围的发展中国家对 OCPs 的广泛生产和使用有关<sup>[36]</sup>; 北冰洋的沉积物中也

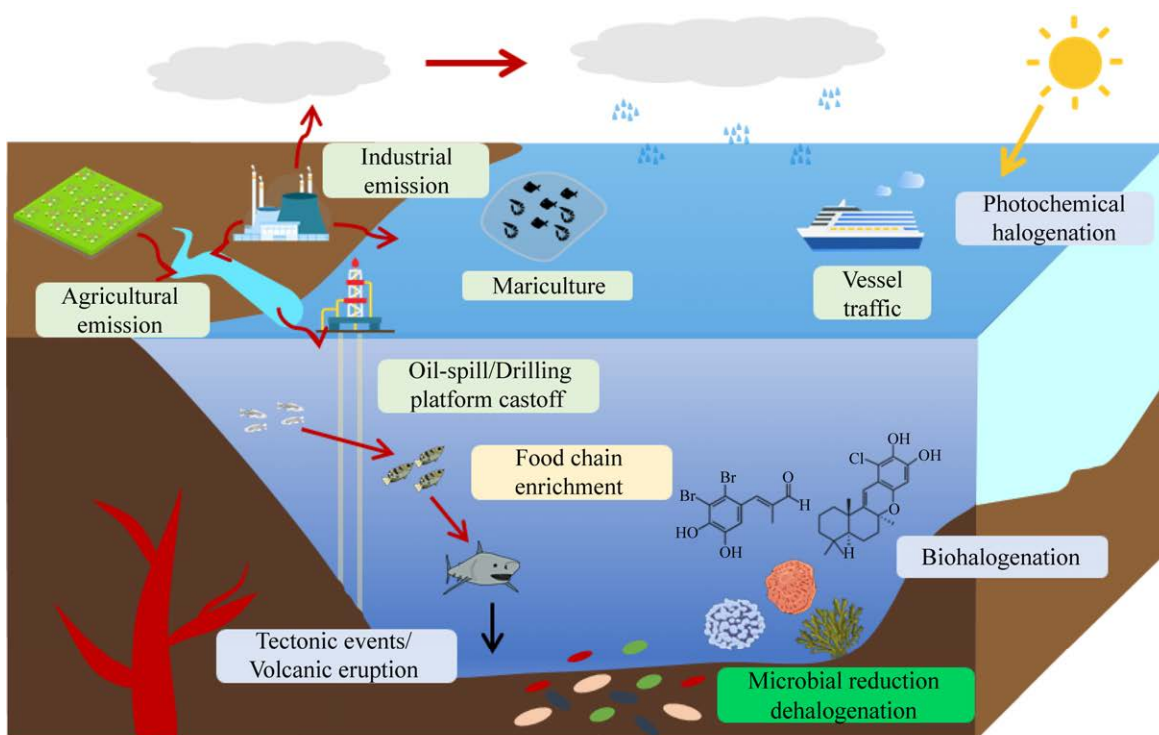


图 1 海洋环境中 HOCs 的来源(改自参考文献 Liu 等<sup>[11]</sup>)

Figure 1 Sources of HOCs in the marine environment (modified from reference by Liu et al<sup>[11]</sup>).

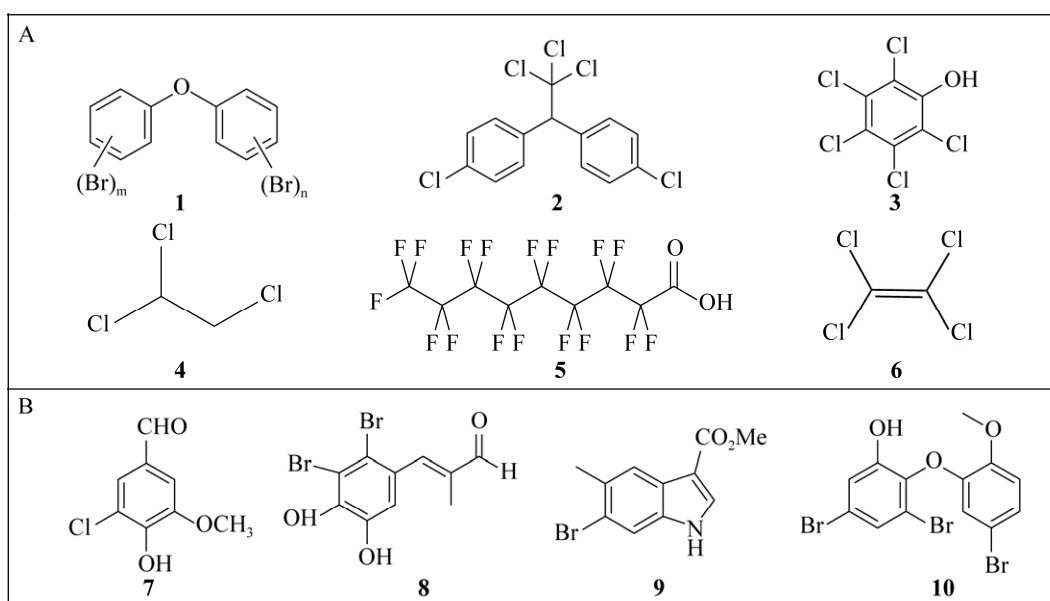


图 2 人为和天然来源的 HOCs A: 1-3 是人工合成的卤代芳香族化合物, 4-6 是人工合成的卤代脂肪族化合物; B: 7-10 是天然合成的卤代芳香族化合物。

Figure 2 HOCs of synthetic and natural origin. A: 1-3 are synthetic halogenated aromatic compounds, 4-6 are synthetic halogenated aliphatic compounds; B: 7-10 are naturally synthesized halogenated aromatic compounds.

发现了全氟和多氟烷基物质(perfluorinated and polyfluoroalkyl substances, PFAS)、OCPs、PCBs等多种 HOCs<sup>[37]</sup>。另外,在海洋最深处,人为来源的 HOCs 同样广泛存在。Cui 等<sup>[38]</sup>发现海洋表层的 HOCs 可以通过食物网抵达西太平洋深海沟; Dasgupta 等<sup>[39]</sup>在马里亚纳海沟的沉积物中也检测到 PCBs、PBDEs,其中,PCBs 的总浓度为 931–4 195 pg/g,甚至高于其他较浅的海域。这些研究表明 HOCs 在海洋环境中分布广泛,进一步凸显了 HOCs 污染问题的复杂性和全球性。

在之前的工作中,我们探讨了典型卤代有机污染物 PCBs 和新型卤代有机污染物多卤代咔唑(polyhalogenated carbazoles, PHCZs)在海洋中的分布特征;通过对杭州湾、南海和南极沉积物中的 PCBs 进行分析,我们发现在人类活动较少的南极洲地区的沉积物中 PCBs 浓度最高,这表明 PCBs 更容易在寒冷的海洋环境中沉淀和积累;高氯代 PCBs 通常具有更高的分子量和较低的挥发性,这导致它们在环境中的迁移能力较弱,倾向于在其来源附近沉积;相比之下,低氯代 PCBs 由于挥发性好,能够在大气中远距离传输,并通过大气沉降进入海洋;因此,南极海洋沉积物中高氯代 PCBs 占优势,这可能与当地的动物尸体分解、南极科考站活动以及日益增加的旅游活动有关;而南海沉积物中低氯代 PCBs 占优势,可能是低氯 PCBs 通过大气沉降进入海洋的结果<sup>[40]</sup>。我们还研究了来自典型港口城市(舟山)不同环境样本的 PHCZs 分布特征,结果揭示了不同介质中 PHCZs 的组成特征、植物中 PHCZs 的独特生物积累途径及海洋沉积物中 PHCZs 的潜在来源<sup>[41]</sup>。此外,我们首次调查了 PHCZs 在西太平洋开阔海域的空间分布特征,发现 PHCZs 广泛存在于相关区域水体和沉积环境中,并且可能通过生物泵在海洋中进行垂直迁移<sup>[42]</sup>。

## 2 海洋环境中的厌氧还原脱卤菌及其降解机制

### 2.1 微生物厌氧还原脱卤机制

微生物在厌氧环境中以氢气或甲酸、乙酸等小分子有机酸作为电子供体,将 HOCs 作为电子受体,通过电子传递进行还原脱卤反应并获得自身生长代谢所需能量的这一过程称为有机卤呼吸(organohalide respiration, OHR),这类微生物被称为有机卤化物呼吸细菌(organohalide-respiring bacteria, OHRB)<sup>[43]</sup>。根据有机卤呼吸是否为 OHRB 唯一的能量代谢方式,可以将已分离的菌株分为兼性和专性 OHRB<sup>[44]</sup>。大多数兼性 OHRB 的电子传递方式为醌依赖型电子传递,而专性 OHRB 的电子传递方式为非醌依赖型电子传递<sup>[14]</sup>(图 3)。例如,在兼性 OHRB 脱亚硫酸杆菌属(*Desulfitobacterium*)中,通过醌库和 RDase 进行电子传递过程;而在专性 OHRB 脱卤拟球菌属(*Dehalococcoides*)主要是依赖于铁硫簇钼酶簇代替醌将电子传递至 RDase<sup>[45–46]</sup>。

### 2.2 还原脱卤酶

还原脱卤酶(reductive dehalogenase, RDase)是一类包含类咕啉辅因子和 Fe-S 簇的结构依赖型酶,在 HOCs 的还原脱卤过程中发挥关键性作用<sup>[47]</sup>。如图 3 所示,大多数 RdhA 蛋白中具有 2 个保守特征,即 N-末端的双精氨酸转移(twin-arginine translocation, TAT)信号基序和 C-末端的 2 个 Fe-S 簇<sup>[48]</sup>。RDase 可以根据它们的结构特征以及其与细胞膜的连接方式被分为以下三类:原型呼吸型 RDase (具有 TAT 信号肽、RdhA 和 RdhB)、跨膜呼吸型 RDase (缺少 TAT 信号肽和 RdhB, RdhA 通过 N-末端的跨膜螺旋结构直接连接至膜)和分解代谢型 RDase (不连接呼吸链,将 HOCs 作为碳源与能源进行还原脱卤)<sup>[16,49]</sup>。Liu 等<sup>[48]</sup>在分离自海洋海绵的嗜海绵脱

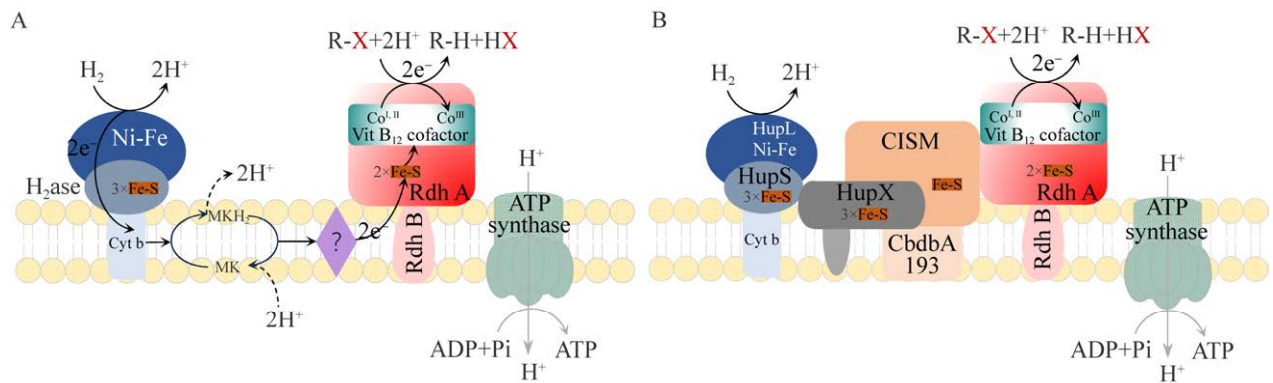


图 3 有机卤化物呼吸细菌电子传递链示意图 A: 醌依赖型电子传递链, H<sub>2</sub>ase: 氢化酶; MK/MKH<sub>2</sub>: 甲基萘醌类; RdhA/B: 还原脱卤酶。B: 非醌依赖型电子传递链, HupL/HupS/HupX: 氢化酶; CISM: 铁硫簇钼酶簇; RdhA/B: 还原脱卤酶。

Figure 3 Diagram of the electron transport chains in organohalide-respiring bacteria (OHRB). A: Quinone-dependent electron transport chain, H<sub>2</sub>ase: Hydrogenase; MK/MKH<sub>2</sub>: Menaquinones; RdhA/B: Reductive dehalogenase. B: Non-quinone-dependent electron transport chain: HupL/HupS/HupX: Hydrogenase; CISM: Complex iron-sulfur molybdoenzyme; RdhA/B: reductive dehalogenases A/B.

硫月牙形菌(*Desulfoluna spongiiphila*)中发现了一种新型呼吸型 RDase, 具有 TAT 信号肽结构, 并且其表现出明显的底物选择性(其可使溴苯酚和碘苯酚脱卤, 但不使氯苯酚脱卤)。Payne 等<sup>[50]</sup>在太平洋硝酸盐还原菌(*Nitratireductor pacificus*) pht-3B 中发现一种分解代谢型 RDase (NpRdhA), 其 N-末端缺少 TAT 结构, 并且其基因簇也缺少 RdhB, 它偏好催化溴代化合物, 例如 3,5-二溴-4-羟基苯甲酸(3,5-dibromo-4-hydroxybenzoic acid)。此外, Han 等<sup>[16]</sup>通过对冷泉沉积物样本的宏基因组分析发现了 RDase 的一个新的分支, 该进化分支在结构上包含 RdhB 和 N-末端的跨膜螺旋结构, 结合了原型呼吸型和跨膜呼吸型 RDase 的结构特征。这些研究表明不同类型的 RDase 具有不同的底物偏好性, 并且海洋环境中可能存在其他新型的 RDase。

由于脱卤菌难以获得足够的生物量、对氧的敏感性及 HOCs 的低水溶性, 直接从脱卤菌中纯化 RDase 较为困难<sup>[51]</sup>。因此, 异源表达成为获得 RDase 并研究其催化机制的重要途径。

然而, 在异源表达过程中需要克服蛋白质折叠、辅因子结合等多种问题<sup>[52]</sup>。尽管已有一些关于 RDase 异源表达的报道, 但针对海洋来源的 RDase 的研究仍相对较少<sup>[53]</sup>。Payne 等<sup>[50]</sup>利用巨大芽孢杆菌(*Bacillus megaterium*)成功表达了来自 *Nitratireductor pacificus* pht-3B 的 NpRdhA, 并揭示了其活性位点和钴胺素辅因子。尽管未能观察到酶与其底物的复合物结构, 但提出的钴-卤素的模型为理解其催化机制提供了一种新思路, 即还原脱卤酶利用钴胺素辅因子攻击底物的卤素原子, 导致碳-卤素键断裂伴随着离去基团的质子化, 实现底物的脱卤。此外, NpRdhA 在有氧条件下的稳定性表明其可能在实际应用中具有更强的环境适应性<sup>[54]</sup>。这些研究为未来 RDase 的结构功能研究、底物特异性分析以及潜在的生物修复应用提供了重要的参考。

编码 RDase 的基因统称为还原脱卤酶同源(reductive dehalogenase homologous, Rdh)基因, 通常包括 2 个亚基, *rdhA* (编码催化活性的基因)、*rdhB* (编码膜锚定蛋白的基因)以及其他辅



助基因<sup>[14]</sup>。目前,已有研究表明 *rdhA* 基因在深海沉积物中普遍存在。Futagami 等<sup>[55]</sup>在太平洋海底沉积物中检测到多种 *rdhA* 基因,特别是在浅层沉积物中发现频率较高,并且这些 *rdhA* 基因序列与已报道的脱卤酶基因序列的相似度普遍较低,介于 33%–64%之间。Kawai 等<sup>[56]</sup>通过对日本下北半岛海域不同深度的沉积物样本进行宏基因组分析,发现了多个新的 *rdhA* 基因簇。此外,Zhang 等<sup>[57]</sup>采用四氯乙烯(perchloroethylene, PCE)作为卤代底物,对奥胡斯湾沉积物进行富集培养,并通过宏基因组分析,成功获得了 37 个宏基因组组装基因组(metagenome-assembled genome, MAG),其中,16 个 MAG 含有 *rdh* 基因,并且这些 MAG 与之前未报道具有脱卤活性的拟杆菌门(*Bacteroidota*)、互养菌门(*Synergistota*)和螺旋体门(*Spirochaetota*)有关;此外,与来自海洋热液口的火山芽孢杆菌(*Vulcanibacillus* sp.)亲缘最近的 MAG 中含有 97 个不同的 *rdh* 基因,这个数量远远超过了已知的 OHRB,如麦卡蒂氏脱卤拟球菌(*Dehalococcoides mccartyi*) CG1 仅含有 36 个 *rdh* 基因。这些发现表明海洋环境中存在新型且丰富的脱卤菌和脱卤酶基因,这对于深入理解海洋环境中的卤素循环具有重要意义。

### 2.3 厌氧还原脱卤菌

自 1986 年 Deweerdt 等<sup>[58]</sup>首次分离得到厌氧脱氯菌蒂氏脱硫念珠菌(*Desulfomonile tiedjei*) DCB-1 以来,多株脱卤菌在不同的环境中被分离纯化,大部分脱卤菌是从地下水、淡水等陆地环境分离出来的,海洋来源的脱卤菌株相对较少<sup>[59]</sup>,这可能与脱卤菌的生长条件苛刻以及海洋微生物厌氧脱卤的研究较少有关<sup>[18]</sup>。目前鉴定了 13 株海洋来源的脱卤菌(表 1),它们分布在变形菌门(*Proteobacteria*)、厚壁菌门(*Bacillota*)和绿屈挠菌门(*Chloroflexota*)。其中,

*Desulfoluna spongiiphila* AA1 是从海洋海绵样本中分离出来的,而其他脱卤菌都来自海洋沉积物。在纲水平上,脱卤拟球菌纲(*Dehalococcoidia*)和  $\delta$  变形菌纲(*Deltaproteobacteria*)被认为是具有巨大 OHR 潜力的 2 个类群<sup>[71-72]</sup>。已鉴定的海洋脱卤菌中,有 7 株属于  $\delta$  变形菌纲,它们都是兼性 OHRB,可利用 HOCs 和硫酸盐等多种电子受体。而麦卡蒂氏脱卤拟球菌(*Dehalococcoides mccartyi*) MB 和 *Dehalobium chlorocoercia* DF-1 属于脱卤拟球菌纲,它们是专性 OHRB,仅利用 HOCs 作为电子受体。Wasmund 等<sup>[73]</sup>的研究发现,在深海环境中脱卤拟球菌纲的多样性随深度显著变化,尤其在深层沉积物中更为丰富;并且可能与硫酸盐还原或产甲烷等其他生物地球化学过程相互作用。

对已鉴定的 13 株海洋来源脱卤菌进行基于 16S rRNA 基因序列的系统发育分析<sup>[13,60-70]</sup>。使用 MEGA 11 软件中的 ClustalW 算法比对多个 16S rRNA 基因序列,选择 maximum likelihood 方法构建系统发育树,并以 general time reversible (1 000 次)进行模型校正。结果如图 4 所示,消化球菌科(*Peptococcaceae*) DCH 与其他非 *Bacillota* 的海洋脱卤菌的进化距离均较远。而来自河口沉积物的菌株 DF-1 与来自海湾沉积物的菌株 MB 的相似性为 100%。

鉴于脱卤菌株的分离难度较大,学者们更多地关注海洋脱卤菌群的代谢潜力<sup>[74-77]</sup>。例如,Zhang 等<sup>[78]</sup>针对奥胡斯湾沉积物中脱卤潜力进行研究,发现这些沉积物中的微生物能够还原脱卤一系列有机卤代污染物,包括 2,6-二溴苯酚(2,6-dibromophenol)、2,4,6-三碘苯酚(2,4,6-triiodophenol)和 PCE 等,并且富集的脱卤微生物不属于已经报道的 OHRB。Wang 等<sup>[79]</sup>研究了不同沉积物中 BDE-153 的脱溴过程,发现与淡水沉积物相比,红树林沉积物中微生物

表 1 海洋环境中已鉴定的脱卤菌

Table 1 Identified dehalogenator in the Marine environment

Species	Source	Electron donor	Functional gene	Electron acceptor	Reference
<i>Dehalobium chlorocoercia</i> DF-1	Estuarine sediment, Port of Charleston, the United States	Acetate, propionate, butyrate, fumaric acid	/	Hexachlorobiphenyl, pentachlorobiphenyl, PCE, TCE, weathered Aroclor1260	[60-61]
<i>Dehalococcoides mccartyi</i> MB	Bay sediment, San Francisco Bay, the United States	Acetate, hydrogen	<i>mbrA</i>	Tetrachloroethene, trichloroethylene	[62]
<i>Desulfovibrio dechloracetivorans</i> SF3	Marine sediment, San Francisco Bay, the United States	Acetate, lactate, propionate, fumaric acid	/	2-chlorophenol, 2,6-dichlorophenol	[63]
<i>Desulfoluna spongiiphila</i> DBB	Marine sediment, Lescala Coast, The Kingdom of Spain	Lactate	<i>rdhA1</i>	1,4-dibromobenzene, 2,6-dibromophenol	[13]
<i>Desulfoluna spongiiphila</i> AA1	Marine sponge, Baneux Riviera, France	Lactate, pyruvate, succinate, benzoate, glucose, citrate	<i>rdhA</i>	2-bromophenol, 2,6-dibromophenol	[64]
<i>Desulfomonile limimaris</i> DCB	Marine Sediment, Florida, the United States	Pyruvate, lactate, formate, butyrate, hydrogen	/	3-chlorobenzoate, 3-bromobenzoate, 2,3-dichlorobenzoate, 2,5-dichlorobenzoate, 3,5-dichlorobenzoate, 2,3,5-trichlorobenzoate	[65]
<i>Desulfovibrio</i> sp. TBP-1	Estuarine sediment, Port of New Jersey, the United States	Lactate, pyruvate, fumaric acid, hydrogen	/	2,4,6-tribromophenol, 2,4-dibromophenol, 4-bromophenol	[66]
<i>Shewanella sediminis</i> HAW-EB3	Marine sediment, Halifax Harbour, Canada	Pyruvate, fumaric acid	<i>pceA</i>	Tetrachloroethene	[67]
<i>Nitratireductor pacificus</i> strain pht-3B	Marine sediment, Western Pacific Ocean	/	NpRdhA	o-Cl/Br phenolic	[68]
<i>Halodesulfovibrio marinisediminis</i>	Marine sediment, Tokyo Bay, Japan	Lactate	<i>rdhA1</i>	2,6-dibromophenol, 2,4,6tribromophenol	[69]
<i>Desulfuromusa kysingii</i>	Marine, sediment, Jutland, Denmark				
<i>Desulfovibrio bizertensis</i>	Marine sediment, Tunisia				
<i>Peptococcaceae</i> DCH	Marine sediment, East China Sea coast	Lactate	<i>rdhA</i>	2,4,6-trichlorophenol	[70]

/: 未鉴定功能基因。

/: No functional gene was identified.



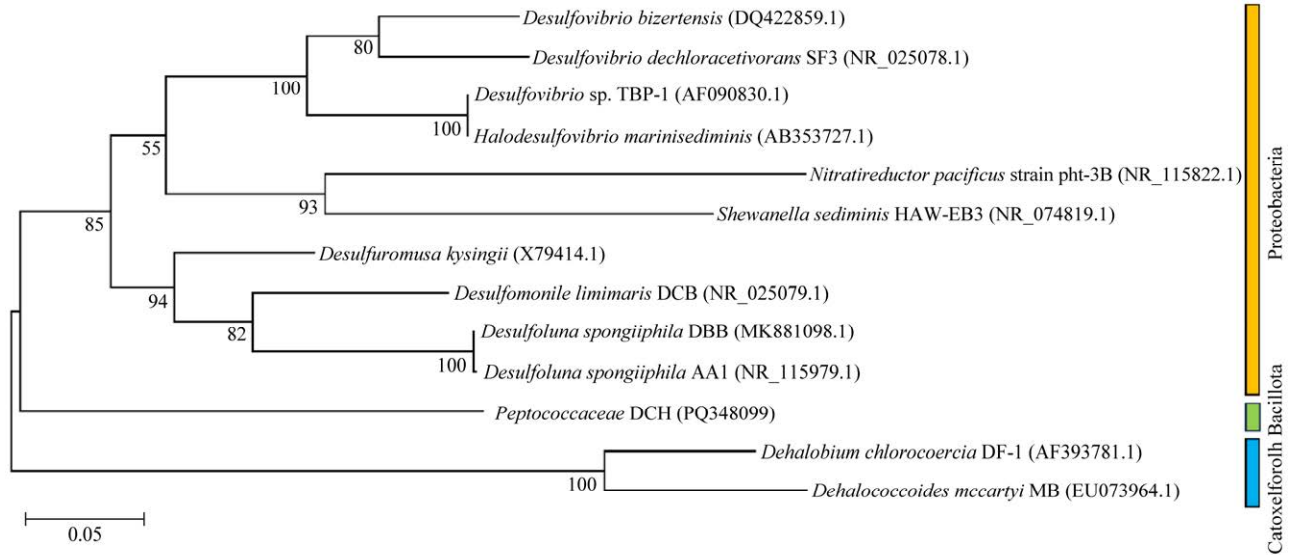


图4 基于海洋来源脱卤菌的16S rRNA基因序列构建的系统发育树 括号中的序号是菌株的GenBank登录号；节点上的数字是bootstrap支持率；标尺刻度0.05是序列差异的分支长度。

Figure 4 Phylogenetic tree based on 16S rRNA gene sequences of marine-derived reductive dehalogenating bacteria. The numbers in parentheses are the GenBank accession numbers of the strains; The numbers on the nodes are percentages supported by bootstrap; Bar=0.05 is nucleotide divergence.

的脱溴能力更强，几乎将 BDE-153 完全脱溴。Pan 等<sup>[80]</sup>的研究进一步揭示了红树林沉积物中 PBDEs 降解潜力的垂直分布特征，表层沉积物中的脱卤微生物对 BDE-47 的去除效果尤为显著，去除率高达 70.3%，脱卤拟球菌属 (*Dehalococcoides*) 是主要功能菌。我们之前研究了近海岸沉积物中微生物群落脱卤潜力，通过采用 PCE 为卤代引导物的富集策略，加速富集纯化脱卤菌，所得的 PCE 富集培养物能广谱性降解多种 HOCs (PCBs、PBDEs、四溴双酚 A、2,4,6-三氯苯酚)，并且我们在富集培养物中首次观察到五溴二苯醚混合物的完全脱溴<sup>[81]</sup>。由此可知，海洋脱卤菌群不仅具有广泛的脱卤底物谱，还具有巨大的脱卤潜力，但仍需进一步对其中的脱卤菌进行分离纯化，以便深入了解海洋脱卤菌的代谢机制及其功能多样性。

海洋脱卤菌的分布与它们对海洋环境条件

的适应性紧密相关。Han 等<sup>[16]</sup>在对 165 个冷泉沉积物宏基因组数据分析时发现，*rdhA* 基因的丰度与沉积物深度呈现负相关，这可能是由于深层沉积物中 HOCs 和营养物质的减少；在不同类型的冷泉沉积物中 *rdhA* 基因的丰度也不同，其中甲烷渗漏区沉积物样本中的 *rdhA* 表现出更高的核苷酸多样性；进一步分析冷泉沉积物的基因组数据发现其含有大量的可移动遗传元件 (mobile genetic element, MGE)，携带与多种代谢通路相关的基因，如遗传信息处理、碳水化合物代谢和能量代谢等，这些 MGE 的存在表明水平基因转移在脱卤菌的进化和环境适应中发挥了重要作用。此外，在来自冷泉脱卤菌的基因组中发现与渗透胁迫保护相关的基因丰度和 *rdhA* 基因丰度呈正相关性，表明它们利用耐盐机制来维持还原脱卤期间的渗透平衡<sup>[82]</sup>。

海洋脱卤菌还具有多样化的代谢途径，包括脂

肪酸的合成与降解、硫酸盐还原、丙酮酸代谢等, 这些途径都赋予了它们适应不同环境中的能力<sup>[49]</sup>。

因此, 深入研究海洋脱卤菌及其 *rdhA* 基因的分布, 对于揭示它们在海洋环境中的进化机制至关重要, 同时也有助于我们更全面地理解脱卤菌在海洋物质循环中的作用。

海洋脱卤菌不仅可以通过还原脱卤作用将 HOCs 转化为毒性较低或无毒的物质, 使得 HOCs 更易被进一步生物降解; 还具有代谢多种有机物质的潜力, 如纤维素、长链脂肪酸等物质, 是海洋营养和碳循环的重要参与者; 一些海洋脱卤菌可以水解环境中的蛋白并加以利用, 这意味着海洋脱卤菌可能发挥着分解者的作用<sup>[74,83-84]</sup>。此外, 海洋中的某些脱卤菌同时也是硫酸盐还原菌, 它们可能在硫酸盐耗尽的深层沉积物中利用 HOCs 作为电子受体进行代谢, 在硫和卤素循环中发挥着关键作用<sup>[73,85]</sup>。这些研究表明海洋脱卤菌对不同环境的适应性可能是由其多样化的代谢途径和水平基因转移等因素驱动的, 之后的研究进一步分析海洋脱卤菌的适应机制, 以揭示海洋脱卤菌的进化历史, 并深入理解其在海洋环境中的生态功能。

在海洋和陆地环境中, 脱卤菌的脱卤途径和代谢能力也各不相同。例如, 从海洋沉积物中分离出的 *Dehalococcoides mccartyi* MB 与从地下水中分离的 *Dehalococcoides mccartyi* 195, 二者的 16S rRNA 基因序列完全相同, 但在脱氯途径上却存在差异<sup>[86]</sup>。具体而言, 菌株 MB 在降解 PCE 的过程中主要生成的是反式-1,2-二氯乙烯(*trans*-1,2-dichloroethene, *trans*-DCE), 菌株 195 则主要产生顺式-1,2-二氯乙烯(*cis*-1,2-dichloroethene, *cis*-DCE)<sup>[62,87]</sup>。此外, 菌株 MB 还能够在 PCE 和 PBDEs 存在的情况下对 PCBs 进行共代谢脱卤, 并且菌株 MB 中鉴

定出了一种新的脱卤酶 MbrA, 它与菌株 195 中常见 RDase 的 PceA 和 TceA 不同<sup>[88]</sup>。这些研究表明不同的环境条件可以使脱卤菌演化出不同的代谢能力和生态功能, 所以需要进一步对脱卤菌的基因组展开研究, 以深入了解脱卤菌的环境适应机制。

研究表明, 海洋脱卤菌和陆地脱卤菌的基因组既存在差异性, 也存在相似性。例如, 海洋脱卤菌基因组中鉴定出了与硫酸盐还原酶和二甲基亚砷还原酶相关的基因, 这表明它们可能参与了硫循环, 而陆地脱卤菌则没有这些基因<sup>[89]</sup>。Sewell 等<sup>[90]</sup>在深海 *Chloroflexota* 基因组研究中发现, 其存在一个基因与陆地脱卤单胞菌(*Dehalogenimonas* spp.)中编码甲酸脱氢酶的基因具有同源性, 这表明深海 *Chloroflexota* 可能具有与陆地脱卤菌相似的代谢途径。Yang 等<sup>[89]</sup>通过系统发育分析将 *Dehalococcoidia* 分为陆地簇、海洋簇 I 和海洋簇 II, 发现海洋簇中的 *Dehalococcoidia* 基因组具有较高比例的水平转移基因; 这可能赋予了海洋脱卤菌新的代谢途径, 从而使得它们能够适应多样化的环境压力和生态位。此外, 我们发现 *Peptococcaceae* DCH 中的 *CprA* 源于陆生的 *Peptococcaceae* 的垂直基因转移, 这可能是由于采样点位于入海口, 有利于该基因的陆海交流<sup>[70]</sup>。

综上所述, 通过富集培养、分离纯化以及基因组分析等方法, 海洋脱卤菌的研究已经取得了一定的进展。这些研究不仅揭示了海洋脱卤菌在 HOCs 的生物修复方面具有巨大的应用潜力, 还表明了它们在生物地球化学过程中发挥重要作用以及展现了它们强大的环境适应性和生态功能。此外, 通过与陆地脱卤菌的比较分析, 我们进一步认识到了两者在基因组层面的异同, 这对于揭示脱卤菌的进化起源和代谢机制具有重要意义。

### 3 总结与展望

海洋环境是 HOCs 重要的汇, 包含了众多人为活动产生的 HOCs 和天然产生的 HOCs, 这些 HOCs 对海洋生态系统的稳定性及人类健康构成了严重威胁。海洋中的还原脱卤过程是决定 HOCs 环境命运的关键环节。尽管已有研究表明海洋环境中存在大量潜在的脱卤菌, 但目前从海洋环境中分离得到的还原脱卤菌数量仍然较少, 并且现有研究大多在大气压条件下进行, 可能无法真实反映海洋环境中脱卤菌代谢活动。

未来研究应着重解决以下几个方面的问题: (1) 利用非靶向技术对海洋环境中 HOCs 进行筛查, 从而系统揭示海洋环境中 HOCs 的污染特征, 包括其种类、浓度和分布模式, 使得我们能够更准确地识别 HOCs 的污染特征和环境风险, 为进一步开发针对性的 HOCs 生物修复策略提供基础。(2) 继续开展海洋脱卤菌的分离纯化。通过原位培养或对未培养的微生物进行基因组测序分析, 优化培养条件, 更有效地富集脱卤菌以研究其代谢特征、脱卤机制及应用潜力。(3) 尝试利用异源表达系统获得有活性的 RDase, 并进一步研究 RDase 的结构与功能特性, 例如酶的底物特异性、催化效率以及对环境因素的响应等, 以深入理解 RDase 的脱卤机制, 为开发高效和特异性的生物修复策略提供理论参考。(4) 考虑到深海环境的独特性, 通过实验室模拟深海环境的条件下(高压、低温等)进行实验, 可以更加直观地了解海洋脱卤菌的环境适应机制, 利用组学技术比较深海与陆地脱卤菌的功能差异与亲缘关系, 以深入理解脱卤菌的演化历史和环境适应性变化。(5) 运用分子生物学技术和组学技术, 系统研究深海脱卤菌的多样性、生态位专化性, 以及它们与其

他微生物的相互作用, 将有助于阐明其在海洋环境中的生态功能, 进而揭示海洋环境中 HOCs 的生物地球化学循环过程。(6) 通过实验室培养和长期监测, 评估深海脱卤菌在海洋生态系统中的功能和作用, 以及其在 HOCs 污染治理中的潜力, 为制定有效的 HOCs 生物修复策略提供科学依据。

### REFERENCES

- [1] 金梨娟, 陈宝梁. 环境中卤代有机污染物的自然来源、背景浓度及形成机理[J]. 化学进展, 2017, 29(9): 1093-1114.  
JIN LJ, CHEN BL. Natural origins, concentration levels, and formation mechanisms of organohalogen in the environment[J]. Progress in Chemistry, 2017, 29(9): 1093-1114 (in Chinese).
- [2] 阮哲璞, 徐希辉, 陈凯, 乔文静, 蒋建东. 微生物降解持久性有机污染物的研究进展与展望[J]. 微生物学报, 2020, 60(12): 2763-2784.  
RUAN ZP, XU XH, CHEN K, QIAO WJ, JIANG JD. Recent advances in microbial catabolism of persistent organic pollutants[J]. Acta Microbiologica Sinica, 2020, 60(12): 2763-2784 (in Chinese).
- [3] BEYER A, BIZIUK M. Environmental fate and global distribution of polychlorinated biphenyls[M]// WHITACRE DM, ed. Reviews of Environmental Contamination and Toxicology. Boston, MA: Springer US, 2009: 137-158.
- [4] QIU YL, STRID A, BIGNERT A, ZHU ZL, ZHAO JF, ATHANASIADOU M, ATHANASSIADIS I, BERGMAN Å. Chlorinated and brominated organic contaminants in fish from Shanghai markets: a case study of human exposure[J]. Chemosphere, 2012, 89(4): 458-466.
- [5] ZHU MH, YUAN YB, YIN H, GUO ZY, WEI XP, QI X, LIU H, DANG Z. Environmental contamination and human exposure of polychlorinated biphenyls (PCBs) in China: a review[J]. Science of the Total Environment, 2022, 805: 150270.
- [6] WANG P, SHANG HT, LI HH, WANG YW, LI YM, ZHANG HD, ZHANG QH, LIANG Y, JIANG GB. PBDEs, PCBs and PCDD/Fs in the sediments from seven major river basins in China: occurrence, congener profile and spatial tendency[J]. Chemosphere, 2016, 144: 13-20.
- [7] TORNERO V, HANKE G. Chemical contaminants entering the marine environment from sea-based sources: a review with a focus on European seas[J]. Marine Pollution Bulletin, 2016, 112(1/2): 17-38.
- [8] AGARWAL V, BLANTON JM, PODELL S, TATON A, SCHORN MA, BUSCH J, LIN ZJ, SCHMIDT EW, JENSEN PR, PAUL VJ, BIGGS JS, GOLDEN JW, ALLEN EE, MOORE BS. Metagenomic discovery of polybrominated diphenyl ether biosynthesis by marine sponges[J]. Nature Chemical Biology, 2017, 13(5): 537-543.

- [9] 王泽懿, 吕梦冉, 于洋, 张悦妍, 温丽莲, 李昂. 地下水脱卤过程中的微生物种间代谢互作: 提高原位氯代烯烃厌氧脱氯效能的有效途径[J]. 微生物学通报, 2023, 50(4): 1576-1590.  
WANG ZY, Lü MR, YU Y, ZHANG YY, WEN LL, LI A. Metabolic interactions among microbial species during groundwater dehalogenation: an effective way to improve in-situ anaerobic dechlorination of chlorinated ethenes[J]. Microbiology China, 2023, 50(4): 1576-1590 (in Chinese).
- [10] KING GM. Dehalogenation in marine sediments containing natural sources of halophenols[J]. Applied and Environmental Microbiology, 1988, 54(12): 3079-3085.
- [11] LIU YH, WANG L, LIU RL, FANG JS. Biogeochemical cycling of halogenated organic compounds in the ocean: Current progress and future directions[J]. Deep Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers, 2024, 205: 104237.
- [12] WANG YF, TAM NFY. Microbial remediation of organic pollutants[M]//World Seas: An Environmental Evaluation. Amsterdam: Elsevier, 2019: 283-303.
- [13] PENG P, GORIS T, LU Y, NIJSSE B, BURRICHTER A, SCHLEHECK D, KOEHORST JJ, LIU J, SIPKEMA D, SINNINGHE DAMSTE JS, STAMS AJM, HÄGGBLUM MM, SMIDT H, ATASHGAHI S. Organohalide-respiring *Desulfohalobium* species isolated from marine environments[J]. The ISME Journal, 2020, 14(3): 815-827.
- [14] WANG SQ, QIU L, LIU XW, XU GF, SIEGERT M, LU QH, JUNEAU P, YU L, LIANG DW, HE ZL, QIU RL. Electron transport chains in organohalide-respiring bacteria and bioremediation implications[J]. Biotechnology Advances, 2018, 36(4): 1194-1206.
- [15] MATTURRO B, FRASCADORE E, ROSSETTI S. High-throughput sequencing revealed novel *Dehalococcoidia* in dechlorinating microbial enrichments from PCB-contaminated marine sediments[J]. FEMS Microbiology Ecology, 2017. DOI: 10.1093/femsec/fix134.
- [16] HAN YC, PENG YY, PENG JX, CAO L, XU YR, YANG Y, WU MH, ZHOU H, ZHANG C, ZHANG DD, WANG MX, GREEN C, DONG, XY. Phylogenetically and structurally diverse reductive dehalogenases link biogeochemical cycles in deep-sea cold seeps[J]. bioRxiv, 2024. DOI: 10.1101/2024.01.23.576788.
- [17] KASTER AK, MAYER-BLACKWELL K, PASARELLI B, SPORMANN AM. Single cell genomic study of *Dehalococcoidetes* species from deep-sea sediments of the Peruvian Margin[J]. The ISME Journal, 2014, 8(9): 1831-1842.
- [18] WANG SQ, CHNG KR, WILM A, ZHAO SY, YANG KL, NAGARAJAN N, HE JZ. Genomic characterization of three unique *Dehalococcoides* that respire on persistent polychlorinated biphenyls[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2014, 111(33): 12103-12108.
- [19] YEO BG, TAKADA H, YAMASHITA R, OKAZAKI Y, UCHIDA K, TOKAI T, TANAKA K, TRENHOLM N. PCBs and PBDEs in microplastic particles and zooplankton in open water in the Pacific Ocean and around the coast of Japan[J]. Marine Pollution Bulletin, 2020, 151: 110806.
- [20] WANG C, LU HY, LAN JZ, ZAMAN KHAU, CAO SG. A review: halogenated compounds from marine fungi[J]. Molecules, 2021, 26(2): 458.
- [21] HUANG JJ, LI RJ, SHI TD, YE JD, ZHANG HB, JIN SC, GAO H, WANG Q, NA GS. Determination of multiple organic flame retardants in maricultural water using high-volume/high-throughput solid-phase extraction followed by liquid/gas chromatography tandem mass spectrometry[J]. Journal of Chromatography A, 2022, 1663: 462766.
- [22] ASTRAHAN P, SILVERMAN J, GERTNER Y, HERUT B. Spatial distribution and sources of organic matter and pollutants in the SE Mediterranean (Levantine basin) deep water sediments[J]. Marine Pollution Bulletin, 2017, 116(1/2): 521-527.
- [23] DRAZEN JC, SUTTON TT. Dining in the deep: the feeding ecology of deep-sea fishes[J]. Annual Review of Marine Science, 2017, 9: 337-366.
- [24] GRIBBLE GW. A survey of recently discovered naturally occurring organohalogen compounds[J]. Journal of Natural Products, 2024, 87(4): 1285-1305.
- [25] KENG FSL, PHANG SM, ABD RAHMAN N, LEEDHAM ELVIDGE EC, MALIN G, STURGES WT. The emission of volatile halocarbons by seaweeds and their response towards environmental changes[J]. Journal of Applied Phycology, 2020, 32(2): 1377-1394.
- [26] LI C, SHI DY. Structural and bioactive studies of halogenated constituents from sponges[J]. Current Medicinal Chemistry, 2020, 27(14): 2335-2360.
- [27] LEY Y, CHENG XY, YING ZY, ZHOU NY, XU Y. Characterization of two marine lignin-degrading consortia and the potential microbial lignin degradation network in nearshore regions[J]. Microbiology Spectrum, 2023, 11(3): e0442422.
- [28] GRIBBLE GW. Naturally occurring organohalogen compounds: a comprehensive review[M]//Progress in the Chemistry of Organic Natural Products. Cham: Springer Nature Switzerland, 2023: 1-546.
- [29] DONG YX, PENG WY, LIU YJ, WANG ZH. Photochemical origin of reactive radicals and halogenated organic substances in natural waters: a review[J]. Journal of Hazardous Materials, 2021, 401: 123884.
- [30] MEGSON D, BROWN T, JONES GR, ROBSON M, JOHNSON GW, TIKTAK GP, SANDAU CD, REINER EJ. Polychlorinated biphenyl (PCB) concentrations and profiles in marine mammals from the North Atlantic Ocean[J]. Chemosphere, 2022, 288: 132639.
- [31] RANJBAR JAFARABADI A, RIYABI BAKHTIARI A, MITRA S, MAISANO M, CAPPELLO T, JADOT C. First polychlorinated biphenyls (PCBs) monitoring in seawater, surface sediments and marine fish communities of the Persian Gulf: distribution, levels, congener profile and health risk assessment[J]. Environmental Pollution, 2019, 253: 78-88.
- [32] UMASANGAJI H, RAMILI Y, NAJAMUDDIN. Status of polychlorinated biphenyl (PCBs) contamination in several marine and freshwater sediments in the world during the last three decades[J]. IOP Conference Series: Earth and Environmental Science, 2020, 584(1): 012012.
- [33] DÍAZ-JARAMILLO M, LAITANO MV, GONZALEZ M, MIGLIORANZA KSB. Spatio-temporal trends and

- body size differences of OCPs and PCBs in *Laeonereis culveri* (*Polychaeta: Nereididae*) from Southwest Atlantic estuaries[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2018, 136: 107-113.
- [34] JIANG S, WAN MM, LIN K, CHEN YS, WANG R, TAN LJ, WANG JT. Spatiotemporal distribution, source analysis and ecological risk assessment of polychlorinated biphenyls (PCBs) in the Bohai Bay, China[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2024, 198: 115780.
- [35] STACK ME, RICHARDOT WH, GARCIA R, NGUYEN T, CHOY CA, JENSEN PR, GUTLEBEN J, DODDER NG, ALUWIHARE LI, HOH E. Identification of DDT+ in deep ocean sediment and biota in the Southern California bight[J]. *Environmental Science & Technology Letters*, 2024, 11(5): 479-484.
- [36] QIU YW, WANG DX, ZHANG G. Assessment of persistent organic pollutants (POPs) in sediments of the Eastern Indian Ocean[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 710: 136335.
- [37] KAHKASHAN S, WANG XH, CHEN JF, BAI YC, YA ML, WU YL, CAI YZ, WANG SQ, SALEEM M, AFTAB J, INAM A. Concentration, distribution and sources of perfluoroalkyl substances and organochlorine pesticides in surface sediments of the Northern Bering Sea, Chukchi Sea and adjacent Arctic Ocean[J]. *Chemosphere*, 2019, 235: 959-968.
- [38] CUI JT, YU ZQ, MI M, HE LS, SHA ZL, YAO P, FANG JS, SUN WD. Occurrence of halogenated organic pollutants in hadal trenches of the Western Pacific Ocean[J]. *Environmental Science & Technology*, 2020, 54(24): 15821-15828.
- [39] DASGUPTA S, PENG X, CHEN S, LI J, DU M, ZHOU YH, ZHONG G, XU H, TA K. Toxic anthropogenic pollutants reach the deepest ocean on Earth[J]. *Geochemical Perspectives Letters*, 2018: 22-26.
- [40] DENG ZC, HAN XB, CHEN CL, WANG H, MA BB, ZHANG DD, ZHANG ZC, ZHANG CF. The distribution characteristics of polychlorinated biphenyls (PCBs) in the surface sediments of Ross Sea and Drake Passage, *Antarctica*: a 192 congeners analysis[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2020, 154: 111043.
- [41] DENG ZC, HU ST, TANG LM, JIANG LB, HE JY, SHEN KY, XU YJ, JIANG RJ, LI TJ, CHEN CL, CHEN BR, ZHOU HH, ZHANG DD, CHEN JW, ZHANG CF. Carbazole and polyhalogenated carbazoles in the marine environment around the Zhoushan Archipelago: distribution characteristics, environmental behavior, and sources[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2023, 442: 129999.
- [42] HU ST, JIANG LJ, JIANG LB, TANG LM, WICKRAMA ARACHCHIGE AUK, YU H, DENG ZC, LI LY, WANG CS, ZHANG DS, CHEN CL, LIN SQ, CHEN X, ZHANG CF. Spatial distribution characteristics of carbazole and polyhalogenated carbazoles in water column and sediments in the open Western Pacific Ocean[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2024, 469: 133956.
- [43] HALLIWELL T, FISHER K, PAYNE KAP, RIGBY SEJ, LEYS D. Heterologous expression of cobalamin dependent class-III enzymes[J]. *Protein Expression and Purification*, 2021, 177: 105743.
- [44] 崔逸儒, 杨毅, 严俊, 李秀颖. 脱卤单胞菌属在厌氧降解有机氯化物及污染场地修复应用中的研究进展[J]. *生物工程学报*, 2021, 37(10): 3565-3577.
- CUI YR, YANG Y, YAN J, LI XY. Advances of using *Dehalogenimonas* in anaerobic degradation of chlorinated compounds and bioremediation of contaminated sites[J]. *Chinese Journal of Biotechnology*, 2021, 37(10): 3565-3577 (in Chinese).
- [45] SCHUBERT T, ADRIAN L, SAWERS RG, DIEKERT G. Organohalide respiratory chains: composition, topology and key enzymes[J]. *FEMS Microbiology Ecology*, 2018. DOI: 10.1093/femsec/fiy035.
- [46] HARTWIG S, DRAGOMIROVA N, KUBLIK A, TÜRKOWSKY D, von BERGEN M, LECHNER U, ADRIAN L, SAWERS RG. A H<sub>2</sub>-oxidizing, 1,2,3-trichlorobenzene-reducing multienzyme complex isolated from the obligately organohalide-respiring bacterium *Dehalococcoides mccartyi* strain CBDB1[J]. *Environmental Microbiology Reports*, 2017, 9(5): 618-625.
- [47] JUGDER BE, ERTAN H, BOHL S, LEE M, MARQUIS CP, MANEFIELD M. Organohalide respiring bacteria and reductive dehalogenases: key tools in organohalide bioremediation[J]. *Frontiers in Microbiology*, 2016, 7: 249.
- [48] LIU J, LOPEZ N, AHN Y, GOLDBERG T, BROMBERG Y, KERKHOFF LJ, HÄGGBLÖM MM. Novel reductive dehalogenases from the marine sponge associated bacterium *Desulfohalobium spongiiphilum*[J]. *Environmental Microbiology Reports*, 2017, 9(5): 537-549.
- [49] FISHER K, HALLIWELL T, PAYNE KAP, RAGALA G, HAY S, RIGBY SEJ, LEYS D. Efficient NADPH-dependent dehalogenation afforded by a self-sufficient reductive dehalogenase[J]. *The Journal of Biological Chemistry*, 2023, 299(9): 105086.
- [50] PAYNE KA, QUEZADA CP, FISHER K, DUNSTAN MS, COLLINS FA, SJUTS H, LEVY C, HAY S, RIGBY SE, LEYS D. Reductive dehalogenase structure suggests a mechanism for B12-dependent dehalogenation[J]. *Nature*, 2015, 517(7535): 513-516.
- [51] BOMMER M, KUNZE C, FESSELER J, SCHUBERT T, DIEKERT G, DOBBEK H. Structural basis for organohalide respiration[J]. *Science*, 2014, 346(6208): 455-458.
- [52] RAHMATULLAH R, MARQUIS CP. Evaluation of alternate hosts for recombinant expression of a reductive dehalogenase[J]. *Enzyme and Microbial Technology*, 2024, 174: 110390.
- [53] PICOTT KJ, FLICK R, EDWARDS EA. Heterologous expression of active *Dehalobacter* respiratory reductive dehalogenases in *Escherichia coli*[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2022, 88(3): e0199321.
- [54] JUGDER BE, ERTAN H, LEE M, MANEFIELD M, MARQUIS CP. Reductive dehalogenases come of age in biological destruction of organohalides[J]. *Trends in Biotechnology*, 2015, 33(10): 595-610.
- [55] FUTAGAMI T, MORONO Y, TERADA T, KAKSONEN AH, INAGAKI F. Dehalogenation activities and distribution of reductive dehalogenase homologous genes in marine subsurface sediments[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2009, 75(21): 6905-6909.

- [56] KAWAI M, FUTAGAMI T, TOYODA A, TAKAKI Y, NISHI S, HORI S, ARAI W, TSUBOUCHI T, MORONO Y, UCHIYAMA I, ITO T, FUJIYAMA A, INAGAKI F, TAKAMI H. High frequency of phylogenetically diverse reductive dehalogenase-homologous genes in deep seafloor sedimentary metagenomes[J]. *Frontiers in Microbiology*, 2014, 5: 80.
- [57] ZHANG C, BOSMA TNP, ATASHGAHI S, SMIDT H. Genome-resolved transcriptomics reveals novel organohalide-respiring bacteria from Aarhus Bay sediments[J]. *bioRxiv*, 2023. DOI: 10.1101/2023.04.17.537210.
- [58] DeWEERD KA, MANDELCO L, TANNER RS, WOESE CR, SUFLITA JM. *Desulfomonile tiedjei* gen. nov. and sp. nov., a novel anaerobic, dehalogenating, sulfate-reducing bacterium[J]. *Archives of Microbiology*, 1990, 154(1): 23-30.
- [59] 王晶晶, 李秀颖, 宋玉芳, 严俊, 杨毅. 环境因子对厌氧微生物脱卤的影响研究进展[J]. *微生物学通报*, 2022, 49(10): 4357-4381.
- WANG JJ, LI XY, SONG YF, YAN J, YANG Y. Effects of environmental factors on anaerobic microbial dehalogenation: a review[J]. *Microbiology China*, 2022, 49(10): 4357-4381 (in Chinese).
- [60] MAY HD, MILLER GS, KJELLERUP BV, SOWERS KR. Dehalorespiration with polychlorinated biphenyls by an anaerobic ultramicrobacterium[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2008, 74(7): 2089-2094.
- [61] WU Q, SOWERS KR, MAY HD. Establishment of a polychlorinated biphenyl-dechlorinating microbial consortium, specific for doubly flanked chlorines, in a defined, sediment-free medium[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2000, 66(1): 49-53.
- [62] CHENG D, HE JZ. Isolation and characterization of “*Dehalococcoides*” sp. strain MB, which dechlorinates tetrachloroethene to *trans*-1,2-dichloroethene[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2009, 75(18): 5910-5918.
- [63] SUN B, COLE JR, SANFORD RA, TIEDJE JM. Isolation and characterization of *Desulfovibrio dechloracetivorans* sp. nov., a marine dechlorinating bacterium growing by coupling the oxidation of acetate to the reductive dechlorination of 2-chlorophenol[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2000, 66(6): 2408-2413.
- [64] AHN YB, KERKHOF LJ, HÄGGBLUM MM. *Desulfoluna spongiiphila* sp. nov., a dehalogenating bacterium in the *Desulfobacteraceae* from the marine sponge *Aplysina aerophoba*[J]. *International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology*, 2009, 59(Pt 9): 2133-2139.
- [65] SUN B, COLE JR, TIEDJE JM. *Desulfomonile limimaris* sp. nov., an anaerobic dehalogenating bacterium from marine sediments[J]. *International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology*, 2001, 51(Pt 2): 365-371.
- [66] BOYLE AW, PHELPS CD, YOUNG LY. Isolation from estuarine sediments of a *Desulfovibrio* strain which can grow on lactate coupled to the reductive dehalogenation of 2,4,6-tribromophenol[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 1999, 65(3): 1133-1140.
- [67] LOHNER ST, SPORMANN AM. Identification of a reductive tetrachloroethene dehalogenase in *Shewanella sediminis*[J]. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London Series B, Biological Sciences*, 2013, 368(1616): 20120326.
- [68] LAI QL, LI GZ, SHAO ZZ. Genome sequence of *Nitratireductor pacificus* type strain pht-3B[J]. *Journal of Bacteriology*, 2012, 194(24): 6958.
- [69] LIU J, HÄGGBLUM MM. Genome-guided identification of organohalide-respiring *Deltaproteobacteria* from the marine environment[J]. *mBio*, 2018, 9(6): e02471-18.
- [70] DENG ZC, CHEN HX, WANG J, ZHANG N, HAN ZQ, XIE YT, ZHANG XY, FANG XD, YU H, ZHANG DD, YUE Z, ZHANG CF. Marine dehalogenator and its chaperones: microbial duties and responses in 2,4,6-trichlorophenol dechlorination[J]. *Environmental Science & Technology*, 2023, 57(30): 11300-11312.
- [71] SANFORD RA, CHOWDHARY J, LÖFFLER FE. Organohalide-respiring *deltaproteobacteria*[M]// *Organohalide-Respiring Bacteria*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2016: 235-258.
- [72] YANG Y, SANFORD R, YAN J, CHEN G, CÁPIRO NL, LI XY, LÖFFLER FE. Roles of organohalide-respiring *Dehalococcoidia* in carbon cycling[J]. *mSystems*, 2020, 5(3): e00757-19.
- [73] WASMUND K, ALGORA C, MÜLLER J, KRÜGER M, LLOYD KG, REINHARDT R, ADRIAN L. Development and application of primers for the class *Dehalococcoidia* (phylum *Chloroflexi*) enables deep insights into diversity and stratification of subgroups in the marine subsurface[J]. *Environmental Microbiology*, 2015, 17(10): 3540-3556.
- [74] CHEN C, XU GF, ROGERS MJ, HE JZ. Metabolic synergy of *Dehalococcoides* populations leading to reductive dechlorination of polychlorinated biphenyls[J]. *Environmental Science & Technology*, 2024, 58(5): 2384-2392.
- [75] LEE M, LIANG G, HOLLAND SI, O'FARRELL C, OSBORNE K, MANEFIELD MJ. *Dehalobium* species implicated in 2,3,7,8-tetrachlorodibenzo-p-dioxin dechlorination in the contaminated sediments of Sydney Harbour Estuary[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2022, 179: 113690.
- [76] MATTURRO B, PRESTA E, ROSSETTI S. Reductive dechlorination of tetrachloroethene in marine sediments: Biodiversity and dehalorespiring capabilities of the indigenous microbes[J]. *Science of the Total Environment*, 2016, 545: 445-452.
- [77] MATTURRO B, Di LENOLA M, UBALDI C, ROSSETTI S. First evidence on the occurrence and dynamics of *Dehalococcoides mccartyi* PCB-dechlorinase genes in marine sediment during Aroclor1254 reductive dechlorination[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2016, 112(1/2): 189-194.
- [78] ZHANG C, ATASHGAHI S, BOSMA TNP, PENG P, SMIDT H. Organohalide respiration potential in marine sediments from Aarhus Bay[J]. *FEMS Microbiology Ecology*, 2022, 98(8): fiac073.
- [79] WANG YF, ZHU HW, WANG Y, ZHANG XL, TAM NFY. Diversity and dynamics of microbial community structure in different mangrove, marine and freshwater sediments during anaerobic debromination of PBDEs[J]. *Frontiers in Microbiology*, 2018, 9: 952.

- [80] PAN Y, CHEN J, ZHOU HC, FARZANA S, TAM N FY. Vertical distribution of dehalogenating bacteria in mangrove sediment and their potential to remove polybrominated diphenyl ether contamination[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2017, 124(2): 1055-1062.
- [81] XU GF, ZHANG N, ZHAO XJ, CHEN C, ZHANG CF, HE JZ. Offshore marine sediment microbiota respire structurally distinct organohalide pollutants[J]. *Environmental Science & Technology*, 2022, 56(5): 3065-3075.
- [82] XU GF, ZHAO XJ, ZHAO SY, ROGERS MJ, HE JZ. Salinity determines performance, functional populations, and microbial ecology in consortia attenuating organohalide pollutants[J]. *The ISME Journal*, 2023, 17(5): 660-670.
- [83] LI WL, DONG XY, LU R, ZHOU YL, ZHENG PF, FENG D, WANG Y. Microbial ecology of sulfur cycling near the sulfate-methane transition of deep-sea cold seep sediments[J]. *Environmental Microbiology*, 2021, 23(11): 6844-6858.
- [84] ZHENG RK, CAI RN, LIU R, LIU G, SUN CM. *Maribellus comscasis* sp. nov., a novel deep-sea Bacteroidetes bacterium, possessing a prominent capability of degrading cellulose[J]. *Environmental Microbiology*, 2021, 23(8): 4561-4575.
- [85] DONG XY, GREENING C, BRÜLS T, CONRAD R, GUO K, BLASKOWSKI S, KASCHANI F, KAISER M, ABU LABAN N, MECKENSTOCK RU. Fermentative Spirochaetes mediate necromass recycling in anoxic hydrocarbon-contaminated habitats[J]. *The ISME Journal*, 2018, 12(8): 2039-2050.
- [86] LOW A, SHEN ZY, CHENG D, ROGERS MJ, LEE PKH, HE JZ. A comparative genomics and reductive dehalogenase gene transcription study of two chloroethene-respiring bacteria, *Dehalococcoides mccartyi* strains MB and 11a[J]. *Scientific Reports*, 2015, 5: 15204.
- [87] SAIYARI DM, CHUANG HP, SENORO DB, LIN TF, WHANG LM, CHIU YT, CHEN YH. A review in the current developments of genus *Dehalococcoides*, its consortia and kinetics for bioremediation options of contaminated groundwater[J]. *Sustainable Environment Research*, 2018, 28(4): 149-157.
- [88] CHOW WL, CHENG D, WANG SQ, HE JZ. Identification and transcriptional analysis of *trans*-DCE-producing reductive dehalogenases in *Dehalococcoides* species[J]. *The ISME Journal*, 2010, 4(8): 1020-1030.
- [89] YANG Y, ZHANG YZ, CÁPIRO NL, YAN J. Genomic characteristics distinguish geographically distributed *Dehalococcoidia*[J]. *Frontiers in Microbiology*, 2020, 11: 546063.
- [90] SEWELL HL, KASTER AK, SPORMANN AM. Homoacetogenesis in deep-sea *Chloroflexi*, as inferred by single-cell genomics, provides a link to reductive dehalogenation in terrestrial *Dehalococcoidetes*[J]. *mBio*, 2017, 8(6): e02022-17.