

低品位ウラン鉱石のバクテリア・リーチング*

欧 津 李維卿 鐘慧芳 馬徳欽

坂巻幸雄**訳監修

要 旨

鉱山の酸性鉱水中から、酸化鉄硫桿菌 (*Thiobacillus ferrooxidans*) に属する第一鉄酸化菌“O-D”菌株を分離した。細菌の生物(学的)酸化作用によって、ある種の黄鉄鉱を含む低品位ウラン鉱石中のウランを浸出することができる(主要構成鉱物は黒色ウラン鉱・燐灰ウラン石及び閃ウラン鉱)。品位0.017%、粒度3.0 mm以下の含ウラン鉱石に対して、pH 1.5で細菌と $Fe_2(SO_4)_3$ 溶液を用いて、カラム・リーチングあるいはヒープ・リーチングを行ったところ、40日を経過した後の浸出率は50%以上に達した。もし1.0 mm以下の粒度の鉱石を使えば、浸出率が60%以上にすることもできる。これは2% H_2SO_4 溶液によるリーチングと比較すると、ほぼ同じ時間で同じ採取率に達する。ただしバクテリア法では酸の消費率はわずか0.08%であるから、硫酸の消費量は90%以上節約できる。

浸出液中にウランとモリブデンイオンが一定濃度存在すると、バクテリアの生長及び第一鉄の酸化を抑制するが、菌種を選別することによってウラン1,000 mg/l, モリブデン 200 mg/l の濃度に耐える菌株を得ることができた。

現在知られているように、バクテリア・リーチングによって鉱石中の有用金属を浸出することは、主として酸性の鉱水中に広く分布する硫化桿菌属 (*Thiobacillus*) のバクテリア、とくにその中の第一鉄酸化バクテリアの作用を利用したものであり、鉱石中の金属は硫酸塩の形で溶出してくる。このような湿式採鉱法の新技術は、ある程度の低品位鉱の処理に使えば一定の発展性がある。十数年来、バクテリア法を使って低品位鉱からウランを浸出することは、すでに世界多くの国で研究がすすめられてきている⁽¹⁻¹¹⁾、また採掘跡残鉱のインプレース・リー

チングとヒープ・リーチングにも応用されている⁽¹²⁻¹⁴⁾。

中国のウラン資源を充分利用するためには、貧鉱・露頭の鉱石・選鉱後の尾鉱・採鉱後の残鉱など低品位ウラン鉱石の経済的利用方法を開発する必要がある。筆者らは華南の某ウラン鉱床の黄鉄鉱を含む低品位ウラン鉱石を対象として、バクテリア・リーチングの研究を行った。数種類の浸出方法で試験した結果、バクテリアの鉱石に対する浸出効果はきわめて顕著であり、低品位ウラン鉱石の処理に際し、一定の利点があることが証明された。

材料と方法

(一) 鉱石の性質

鉱石は華南の某ウラン鉱山の選鉱場から排出された尾鉱である。その鉱床は熱水交代鉱床で、鉱石は石英・硬質頁岩などから成っている。その母岩は、炭質頁岩・珪質頁岩などである。鉱石は非常に堅く、組織も緻密である。鉱石はまた強い黄鉄鉱化を受け、局部的にはカオリン化されている。ウラン鉱物は主として二次ウラン鉱物で、多くは皮膜状や貝殻状の集合体である。初成ウラン鉱物は多くの場合黄鉄鉱と共生している。ウランを含む主な鉱物は黒色ウラン鉱¹⁾、鉄ウラン雲母²⁾、燐ウラニル石、瀝青ウラン鉱³⁾などである。主な脈石は石英⁴⁾ (85%以上)で、次いで黄鉄鉱、燐灰石、白鉄鉱、褐鉄鉱⁵⁾

訳監修者注

- 1) 原文「鈾黒」。黒色ウラン鉱は単体としての鉱物名ではない。黒色非晶質の酸化ウランまたは黒色の有機物と共沈したウランを総称的に指しているフィールドネームと考えられる。本論文は、産状からみて恐らく前者。
- 2) 原文「鉄鈾雲母」。字義通りにとれば燐鉄ウラン石 ("bassetite, $Fe[UO_2(PO_4)_2 \cdot 10 \sim 12H_2O]$ ないし砒鉄ウラン石 (kahlerite, $Fe[UO_2]AsO_4 \cdot 12H_2O$) あるいは、それらのメタ・フェーズ ($\sim 8H_2O$) であるが、いずれも稀産であり、主要鉱物として産するという原記載は理解しがたい。要旨では該当するところが鈾鈣雲母 (autunite, $Ca[UO_4]PO_4 \cdot 12 \sim 10H_2O$) となっているので、このほうが正しいかとも思われる。上記同様、このメタ・フェーズ ($\sim 8H_2O$) も存在するかもしれない。
- 3) 原文「瀝青鈾鉱」。字源は pitchblende (瀝青ウラン鉱) で、一般には閃ウラン鉱 (uraninite, UO_2) の組成をもち、低結晶度でコロフォーム組織の発達したものを指す変種名として用いられている。現在の中国で、この両者間の厳密な区別は恐らくしていないと思われる。
- 4) 原文「二酸化珪」。産状からみて、恐らく石英。
- 5) 原文も同様。わが国でも慣用されているが、正しくは野外名。

* 貧鈾鉱石細菌浸出的研究。微生物学報 Acta Microbiologica Sinica, 第17巻 (1), p. 11-20, 1977.

** 鉱床部

燐モリブデン石⁶⁾と有機物などである。

原鉱の粒度は-150 mm であった。試料として3トンを取り、粉碎・縮分して平均品位を0.017%とした。主な化学成分と含有量は下表のとおりである。

鉱石の主要成分

成分	U	Fe	CaO	MgO	Al	Mo	SO ₄ ²⁻	PO ₄ ³⁻	SiO ₂
含有量 (%)	0.017	1.87	1.11	0.56	1.46	0.032	4.32	0.25	75

(一) 鉱石浸出用のバクテリアの分離

鉱山の酸性鉱水 (pH 2.5) をとって、L (Leathen) 培養基*⁽¹⁵⁾中へ接種し (FeSO₄ の用量を変えて)、第一鉄バクテリアの生長を認めたら数回の移転培養を経て、寒天L培養基にのせ平板分離を行う。一つのコロニーを選別して3回平板分離をくり返し、第一鉄の酸化能力の良い酸化鉄硫桿菌 (*Thiobacillus ferrooxidans*) すなわち O-D バクテリアを得る (第1図)。

このバクテリアは第一鉄と硫黄とをエネルギーとして生長する自養菌で、チオ硫酸塩に対し一定の酸化能力を持つ。その特性は第1表のとおりである。

O-Dバクテリアは、Cu²⁺、Zn²⁺、Ni²⁺、Co²⁺など金属イオンに対し、かなり高い耐性があり、pH 1.5の培養基上で正常に生長できる。

(二) 浅層静置浸出

100 ml の三角フラスコ中に、粒度40メッシュの鉱石20 gを入れて、L培養基を添加し、10%の菌液を接種する。固体と液体の比を1:1とし、28°C恒温箱中に静置し、毎日適当に振動させ固体と液体とが均等に接触するようにする。同時に硫酸を使ってpHを調節し、2.0前後に保持する。

(三) カラム・リーチング試験装置

試験には二種類のカラムを用いた。一種は粒度-30 mmの鉱石を用い、その250kgを、内径40 cmの鉄板製の筒に使用高160 cmになるように充填した。鉄板筒の内側にはアスファルトを薄く塗装して、酸による腐蝕を防いだ。筒の底部には丸い鉄の盆を置き、鉄盆と鉱石との接触面には細かい砂を敷きつめた。第2図のように、上部液槽のガラスびんに入れたバクテリアとFe₂(SO₄)₃を含む浸鉱剤は、多くの支管をもつガラス分配器を通じ、濾紙層に到達し、そこから鉱石と細砂層の中をむら

6) 原文「磷鉬石」、恐らく野外名。

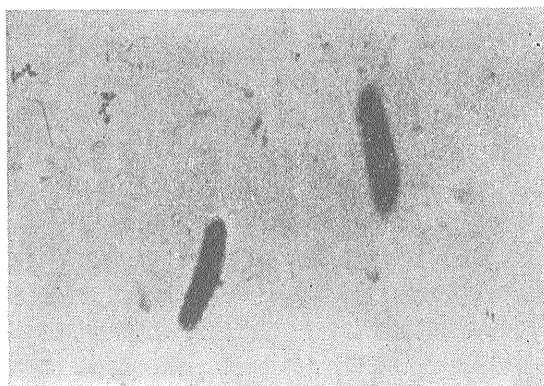
* Leathen 培養基 (略称L培養基) の組成: (NH₄)₂SO₄=0.15g, K₂HPO₄=0.05g, MgSO₄·7H₂O=0.5g, Ca(NO₃)₂=0.01g, KCl=0.05g, FeSO₄·7H₂O=30~50g, 水道水 1000 ml.

10% H₂SO₄ を用いて pH 1.5~2.5 に調整した。純菌株を分離する時には、FeSO₄ は無菌過濃して使い、その他の成分は高圧殺菌して使用時に混合した。バクテリア・リーチングに用いた時には培養基は殺菌しなかった。

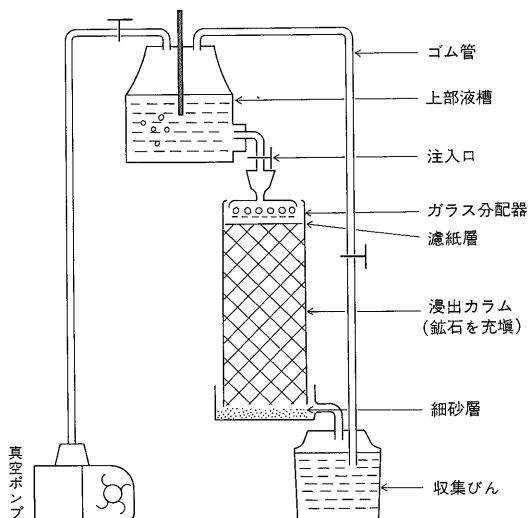
第1表 O-Dバクテリアの特性

大きさ	0.5×1.0-2.0μ
運動性	運動
グラム染色性	陰性
最適生長温度	28°C
最適生長 pH	2.0-3.5
酸素需要	好気性
アンモニア態窒素利用	+
硝酸態窒素利用	±
硫黄酸化	+
チオ硫酸塩酸化	+
硫酸第一鉄酸化	+

なく浸透して収集びんに流下する。浸鉱剤の流速は、液圧が一定になるようにバルブで調節する。収集びん中には常に圧縮空気を通気し、バクテリアの生長を促進する。上部液槽の浸鉱剤が全部浸透し終わった時には、酸を



第1図 O-Dバクテリアの電子顕微鏡写真10,000×



第2図 カラム装置図

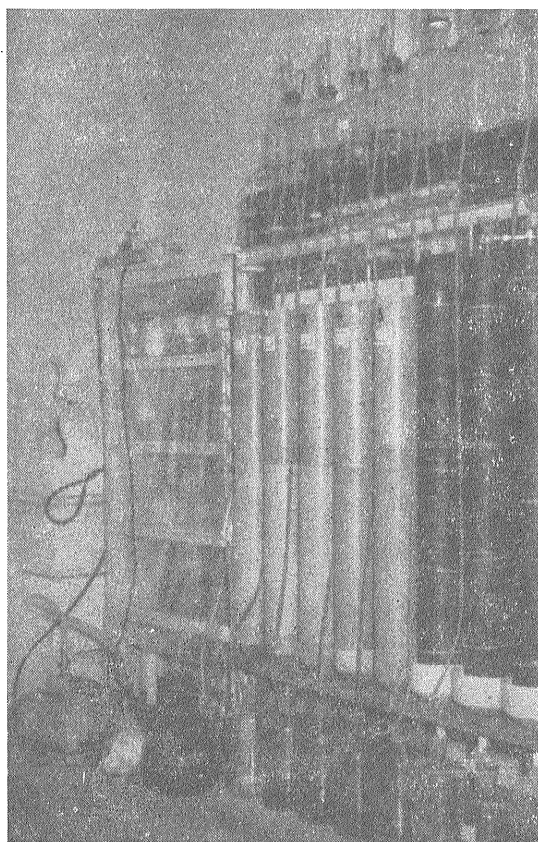
加えて pH を 1.5 まで下げ、真空ポンプとゴムホースで上部液槽に再び汲み上げ、第 2 回目の循環浸出を行う。

もう一種のカラムは、粒度 -10 mm の鉱石を用い、高さ 100 cm、内径 10 cm の硬質プラスチックの筒を使って、鉱石 10-40kg を充填する。または含油性フェルトの巻筒 (第 3 図) を代用する。

(戊) カラム・リーチングの方法

1. バクテリア- $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ 浸鉱剤の準備: 大きな陶製容器の中に L-培養基 ($\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 50 g/l を含む、pH 1.5) 50 l を調製し、O-D 10% 菌液を接種して 4 日間通気培養する。 FeSO_4 が完全に酸化して $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ となった時に使用できる。

2. 浸出: 第 2 図の方法により、繰返し浸透浸出を行う。1 サイクルは約 6 日かかる。それぞれのカラムは浸出の前に、pH 1.5 の硫酸溶液で洗浄し、アルカリ性鉱物を中和しておく。流出液の pH が 2.0-1.5 に下がりきるのを待って、浸出を開始する。第 1 サイクルには、上記の浸鉱剤を用いて浸出し、その後各サイクルの浸鉱剤



第 3 図 カラム装置 (硬質プラスチックパイプ及び含油性フェルトの巻筒)

は、L-培養基中に 5% の菌液を加えて作る。 FeSO_4 は添加しない。毎日浸透 12 時間、休止 12 時間、液量は毎時 20 l/m² とする。浸出液は毎日採取して、液中の U、 Fe^{2+} 、 Fe^{3+} を分析し、また pH の変化も測定し、浸出液の pH を 1.5 に調節する。浸出液のウラン濃度がもはや上昇しなくなった時には、新しい浸出液と取り替えて次のサイクルの浸出を始める。

各カラムの浸出が終了時には、pH 2.0 の酸性水を用いて再洗浄し、流出液のウラン濃度が約 5 mg/l となった時に止める。残渣は縮分して試料とし、残留金属成分を分析する。各サイクルの浸出過程の間、温度は 25-35°C に調節し、浸出液中に常に通気してバクテリアの生長を促進する。

(己) ヒープ・リーチング

使用鉱石は鉱山の尾鉱で、50 mm 以下に粉碎したものを 3,000kg 用いた。平均ウラン品位は 0.0177% で、おもな粒度組成は第 2 表の通りである。

浸出は大きなコンクリート製の水槽内で実施した。鉱石の層厚は 1.85m で、浸出条件は下記の通りである。

浸 鉱 剤—水道水、 H_2SO_4 を用いて pH 1.5 に調節し、1 サイクル毎に 5% の O-D 菌液を接種する。

固体・液体比—1 サイクル毎に鉱石量の 2.5% の浸鉱剤を用い、全体の用量は 34.5% とする。

噴射速度—毎時約 40 l/m²

浸出温度—25°-37°C

浸出時間—毎日 12 時間、総計 42 日

浸鉱剤は小型ステンレス鋼製ポンプによりゴムホースから吸い上げ、いくつかのプラスチック製シャワーノズルを通じて鉱石の上に噴射する。浸出してきた溶液は一つのプラスチック製水槽で受け、そこからまた循環的に吸い上げ、噴射をくり返しひとつの反覆循環噴射系統 (第 4 図) をつくる。

浸出を完了するには約 13 サイクルかかる。1 サイクルにつき 2-4 日、浸鉱剤用量 80 l、毎日のシャワー噴射は 12 時間、休み 12 時間である。1 サイクル終るとに新しい浸鉱剤 80 l を取り替える。そのほかの過程はカラム・リーチングと同じである。その流程図を第 4 図に示す。

第 2 表 ヒープ・リーチング鉱石の粒度組成

粒度 (mm)	-50+30	-30	混 合
割合 (%)	55.4	44.6	100
品位 (%)	0.0156	0.0204	0.0177

実験結果

(一) 異なる菌株・接種量が浸出効果に及ぼす影響

まず鉱水中から二、三の第一鉄酸化細菌の菌株を分離した。それらの第一鉄に対する酸化能力を比較して、その中から比較的強力な菌株として O-D と 9号菌株 (この菌は銅官山の酸性鉱水から分離した) の二つを

選出し、それぞれの浸出能力を比較した。

浸出方法は浅層静置浸出法を用い、浸出培養基 $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ の濃度は 50 g/l とした。その結果は第3表の通りである。

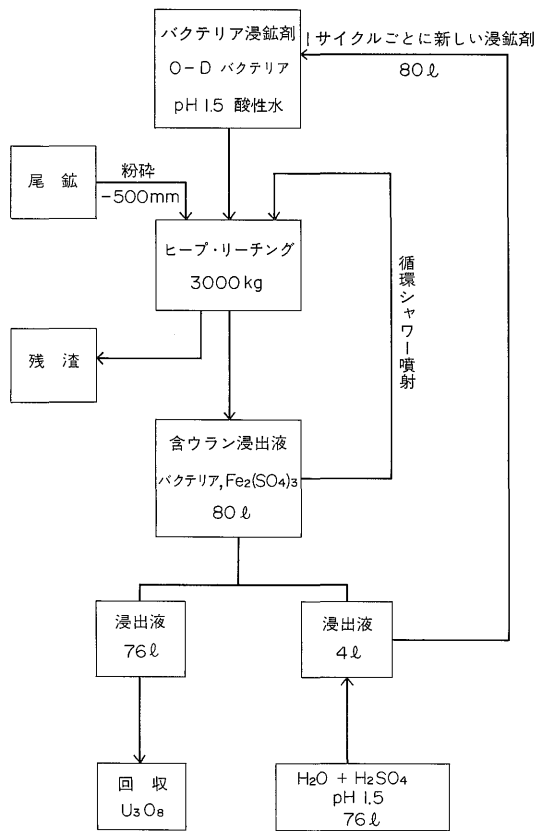
第3表の結果からは、O-D 菌株はこの鉱石に対し比較的よい浸出作用があり、接種量が10%の時、無菌時の浸出率にくらべて9%も高いのがよみとれる。そのほか、接種量の大小により、浸出率にも影響があらわれている。接種量10%と接種量1%とをくらべれば、浸出率は前者が8.5%も高くなる。もし接種量を増せば初期の浸出率は高くなるが、後期の浸出率は変わらない。浸出能力を比較すると、O-D 菌株が9号菌株より浸出効果はやや良い。接種量を変えると浸出液中の Fe^{3+} の濃度が変わり、その結果浸出率にも影響があらわれる。この点の研究はさらに今後実験を進める必要がある。

(二) バクテリア・リーチングと純酸リーチングとの比較

この実験はカラムにより、O-D 菌株を用いて行った。実際の生産現場の条件に合わせたので、バクテリア・リーチングの効果は $2\% \text{H}_2\text{SO}_4$ と比較しており、同じ酸度の (無菌の) 浸出剤と比較したものではない。浸出は7サイクルに分けて、1サイクルは6日前後、総計42日とした。固体・液体比は $1:0.1$ 、浸出条件と結果は第4表の通りである。

1. 浸出率：同一条件下で40日の全浸出率はほとんど同じである。粒度 -30 mm の鉱石が50%以上に達している。粒度 -10 mm の鉱石は65%前後に達する。ただし、浸出初期 (30日以内) には、バクテリア・リーチングの方が速度はやや速い (第5図)。

酸度が異なれば低品位ウラン鉱石の浸出効果も異なってくる。最適の浸出効果を得るために用いる最低の酸度として、2%の硫酸濃度を選定、利用している。バクテリア法による浸出効果は2%硫酸を用いた結果と似てい



第4図 バクテリア・ヒープ・リーチングの流程図

第3表 異なる菌株・接種量による浸出効果の比較

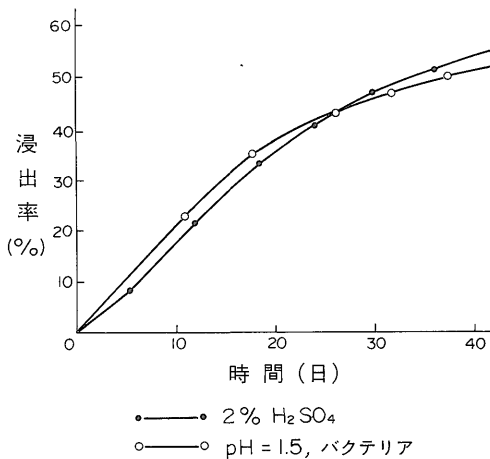
(原鉱品位 0.014%)

浸出日数	浸 出 菌 株									
	O - D								No. 9	
	接種1% ($\text{Fe}^{3+}0.01\%$ を含む)		接種10% ($\text{Fe}^{3+}0.1\%$ を含む)		接種50% ($\text{Fe}^{3+}0.5\%$ を含む)		接種10% (5%ホルマリンで滅菌)		接種10% ($\text{Fe}^{3+}0.1\%$ を含む)	
	残渣品位 (%)	浸出率 (%)	残渣品位 (%)	浸出率 (%)	残渣品位 (%)	浸出率 (%)	残渣品位 (%)	浸出率 (%)	残渣品位 (%)	浸出率 (%)
14	0.0046	67	—	—	0.0039	71	0.0071	49	0.0056	59
26	0.0055	61	0.0049	65	0.0038	71.5	0.0056	60	0.0052	63
42	0.0049	65	0.0037	73.5	0.0037	73.5	0.0050	64.5	0.0040	70.5

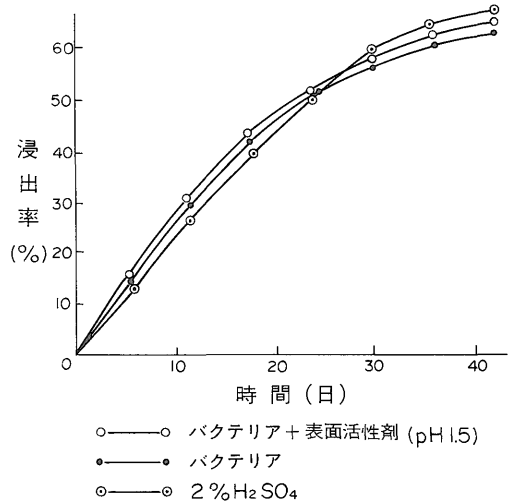
第4表 各カラムの浸出条件と結果

カラム号	鉱石の粒度 (mm)	浸出条件					浸出率 (%)	
		浸出剤	カラム内径 (mm)	鉱層の厚さ (m)	鉱石重量 (kg)	浸透速度 $l/m^2 \cdot h$	残渣	液
1	-30	pH 1.5 培養基, バクテリア	40	1.50	250	10	53.5	51.5
2	-30	2% H_2SO_4	40	1.40	250	10	56.5	52.7
3	-10	pH 1.5 培養基, バクテリア	20	0.95	40	10	66.5	64.3
4	-10	2% H_2SO_4	20	0.92	40	10	65.9	67.3
5	-10	pH 1.5 培養基, バクテリア, 表面活性剤*	20	0.93	40	10	67.1	65.3

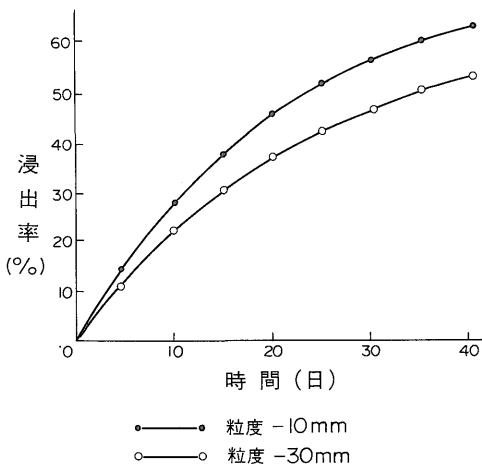
* ポリオキシエチレン蓖麻子油



第5図 バクテリアと稀酸によるカラム・リーチング. -30 mm の鉱石で比較



第7図 異なる浸出剤の浸出率に対する影響



第6図 鉱石の粒度の浸出率に対する影響

る。これには明らかにバクテリア・リーチングの効果が表われている。

2. 粒度の大小と浸出の影響：第4表と第6図を見ると、粒度の大小が浸出速度に及ぼす影響は非常に大き

い。バクテリア又は稀酸による浸出はどちらでも粒度を小さくすれば、浸出速度は早くなる。

3. 表面活性剤と浸出率の影響：浸出剤中に、0.005% (容量比) のポリオキシエチレン蓖麻子油を添加して一諸に浸出すれば、バクテリア液が存在している状況下にあつては、鉱石のリーチングに対し一定の促進作用があることが観察された。それは浸出液の浸透性を高めることと関係があると考えられる。

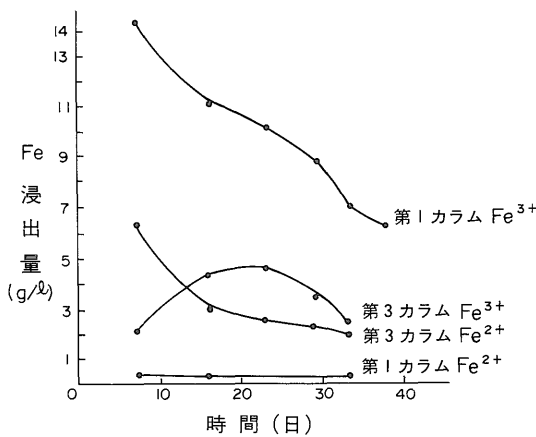
4. 浸出過程中的細菌の生長状況：細菌の生長は、浸出液中の鉄の変化で示される。第8図を見ると、粒度-30 mm の鉱石は、各サイクルの浸出液に通気しないでも、ただ次々と循環させるだけで、全サイクルが終結した時には、 Fe^{2+} が全部酸化されて Fe^{3+} になった。これはくりかえし循環浸透によって細菌の生長は非常に活発になることを表す。粒度-10 mm の鉱石は、浸出液中に常に通気しても、各サイクルの循環浸出が終った時の Fe^{2+} はなお多い。とくに第1サイクルでは Fe^{3+}/Fe^{2+} の比率は0.136にすぎず、溶液の酸化還元電位がかなり低いことを示す。なお、浸出粒度が比較的細かい鉱石の時

には、バクテリアの生長はやや劣る。

5. 酸消費量の比較：粒度-30 mm の鉱石でリーチングを行った場合で計算すると、2%の H_2SO_4 を使う時、鉱石1kg当りの硫酸需要量は0.0117kgである。しかしバクテリア法の硫酸需要量は0.0026kgに過ぎず、硫酸使用量は80%以上を節約できる。

(二) 栄養条件がバクテリア・リーチングに与える影響
この実験は、カラム・リーチングで行った。粒度-10 mm の鉱石10kgを使って、多サイクル循環浸出を行った。浸出日数は総計41日、温度25-28°C、実験条件と結果は、第5表の通りである。

1. 浸出率：第5表の結果から見ると、pH 1.5の硫酸酸性水あるいは鉱水を用いて、各サイクルの浸出時に、



第8図 バクテリア・リーチング中の鉄の周期変化
図中各点の数値は各サイクルごとに測定した平均値を示す。

新鮮な5%菌液を接種すれば、ほかの栄養源はなにも添加する必要はなく、すべて著しい浸出効果があり、かつその浸出率は、L培養基を用いた場合と2% H_2SO_4 を用いた場合とでは浸出率はほとんど同じである。浸出剤中に $(NH_4)_2SO_4$ 、 K_2HPO_4 などのような単味の栄養源を添加しても、効果は添加しないものと区別ができるほどの差はない。酸性鉱水を単独で浸出しても効果は悪くないが、それは酸性鉱水自体が一定量のバクテリアを含んでいるためであって、循環浸出中に鉱石中の鉄を酸化させながら、生長増殖を続けて金属を加速的に溶かし出す。ただ表面活性剤を添加してバクテリアを接種しない場合には、浸出率は高くないが、それは表面活性剤自体には、あまり大きな浸出作用がないことで説明される。

細菌を用いた浸出剤はすべて、細菌を含まない浸出剤にくらべて浸出速度が速い。

2. 浸出中の鉄の変化：バクテリア・リーチング実施中に、その中から代表的なカラムを1本(第7カラム)をとりだして、浸出時の鉄の変化を分析してみた。この実験に用いた浸出剤は、バクテリア接種の時に鉄が付随して入ったほかには第一鉄は添加していないし、各サイクル(6日)ごとにすべて浸出剤は新しいものに取り替えた。したがって溶液中の鉄イオンは、すべてバクテリアが鉱石の中から溶解してきたものである。

第6表で見るように、浸出の第1、第2サイクル溶液中のおもなイオンは Fe^{2+} であってバクテリアの生長がよくない。第3サイクル以降は溶液中のおもなイオン種は Fe^{3+} でありバクテリアの生長もよくなる。この実験でわかるように、バクテリアによる鉱石中からの鉄の溶出量

第5表 カラムごとの浸出条件と浸出率

カラム号	浸出条件					浸出率(%)	
	浸出剤組成①	カラム内径(mm)	鉱層の厚さ(m)	浸透速度 $l/m^2 \cdot h$	各サイクルの固液比	残渣	液計
1	鉱水	10	0.90	20	1:0.2	58.8	65.0
2	鉱水, バクテリア	10	0.90	20	1:0.2	61.5	72.5
3	水道水, $HgCl_2$ ②	10	0.90	20	1:0.2	47.0	47.7
4	水道水, バクテリア, N源③	10	0.90	20	1:0.2	60.0	67.4
5	水道水, バクテリア	10	0.90	20	1:0.2	60.0	60.9
6	水道水, バクテリア, P源④	10	0.90	20	1:0.2	60.6	60.7
7	水道水, バクテリア, N, P源	10	0.90	20	1:0.2	60.6	67.5
8	水道水, 表面活性剤⑤	10	0.90	20	1:0.2	51.7	51.0

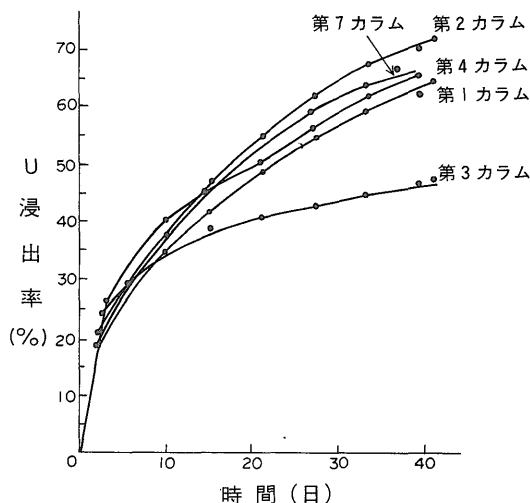
注 ① 各浸出剤はすべて H_2SO_4 を使って調節を行い、浸出液中のpH = 1.5を保持する。

② $HgCl_2$ 0.2% を添加して滅菌する。

③ $(NH_4)_2SO_4$ 1g/l をN源として添加する。

④ K_2HPO_4 0.1g/l をP源として添加する。

⑤ ポリオキシエチレン菌養麻子油 0.005% を添加する。



第9図 数種の浸鉱剤の浸出効果の比較

第6表 バクテリアによる鉱石中の鉄の浸出

浸出サイクル	1	2	3	4	5	6	7
Fe ²⁺ (g/l)	4.2	1.96	0.4	0.4	0	0	0
Fe ³⁺ (g/l)	1.68	1.96	6.0	6.0	12.6	8.0	3.5
Fe ³⁺ /Fe ²⁺	0.4	1.00	6.0	6.0	12.6	8.0	3.5

をより多くするには、浸出時に所要の Fe₂(SO₄)₃ 溶剤を足してやればよく、FeSO₄ の追加はいらない。

3. 浸出液の主成分の分析：第8カラムを対照例として、浸出液中に含まれた主要イオンを分析した結果は第7表の通りである。

浸出液中には一定量の NH₄⁻、磷酸塩及び鉄イオンが含まれていて、その量はバクテリアが生長する際の需要を十分満たすことができる。そのほか、バクテリアが必要とする無機塩 (Ca, Mg, K など) は、鉱石の中にも含まれているから、あえて添加する必要はない。栄養源を加えなくてもバクテリアの生長がスムーズなのは上記の結果とよく一致している。

(四) 浸出液中でバクテリア生長に影響をあたえる金属イオン

前述の実験で指摘した通り、粒度-10 mm の鉱石を用いて浸出する時、最初の数サイクルではバクテリアの生長が抑制される現象があり、浸出液中の Fe³⁺/Fe²⁺ の比も < 1 となっていた。浸出液を用いてバクテリアを直接培養すると、バクテリアの生長は不可能になるから、浸出液を10倍に稀釈してはじめてその抑制作用は消失する。

浸出液の組成分析から、鉱石から浸出過程に大量の

第7表 浸出液および鉱水の組成分析 (g/l)

成分名	U	Fe	NH ₄ ⁺	NO ₃ ⁻	PO ₄ ⁻	Mo
鉱水	0.04	0.720	0.360	微量	0.078	0.022
浸出液	0.110	2.94	0.432	0.095	0.510	0.072

第8表 O-D菌株のモリブデンに対する感受性と適応力

Mo ³⁺ 濃度 (mg/l)	酸化培養基中の全第一鉄消費日数			
	始め	第1回継代	第2回継代	第3回継代
0	4	4	4	4
10	4	4	4	4
15	4	4	4	4
20	6	4	4	4
30	10	4	4	4
40	11	7	4	4
50	11	7	4	4
80	11	7	4	4
100	11	7	4	4
150	生長せず	7	4	4
200	生長せず	生長せず	7	6

1. 試験方法：100 ml 三角フラスコ中にL培養基と Mo イオンを添加し、菌5%を接種、総体積を20mlとし、28°Cの恒温で培養する。
2. 培養基中の Fe³⁺ 濃度は0.6%。
3. Mo イオン (Mo³⁺) は [(NH₄)₂Mo₇O₁₄] の形で添加。
4. 継代培養には、毎回その前の回に生長したもののうち最高濃度のバクテリアを次の試験の接種株として使う。

ウランとモリブデンが溶解してくることがわかる。すでに多くの文献でも、モリブデンイオンがバクテリアに対し毒性があることがのべられている。実験を通じて、モリブデン濃度が 2 mg/l、ウラン濃度が 35 mg/l にもなると、バクテリアに対し著しい抑制作用があらわれ、第一鉄の酸化を低下させることが証明された。また低濃度のウラン、モリブデン培養基上で生長しているバクテリアを段々と高濃度の培養基上へ植えついでゆくにつれて、バクテリアは抵抗性を獲得する。このようにして耐モリブデン 200 mg/l、耐ウラン 1,000 mg/l という変異菌株を育出した。

(五) ヒープ・リーチング

粒度-50 mm の鉱石 3,000kg を用いて、44日間浸出し浸出率 (液体) は 41.6% であった。異なる粒度の残渣-溶液浸出率は第10表の通りである。

浸出率および各サイクル中の鉄の変化は第10・11図で表す。

浸出の第1サイクル中、溶液中のウラン濃度は最高 500 mg/l に達した。その後の各サイクルでは、ウラン濃度は直線的に下降した。末期にはわずか 40 mg/l とな

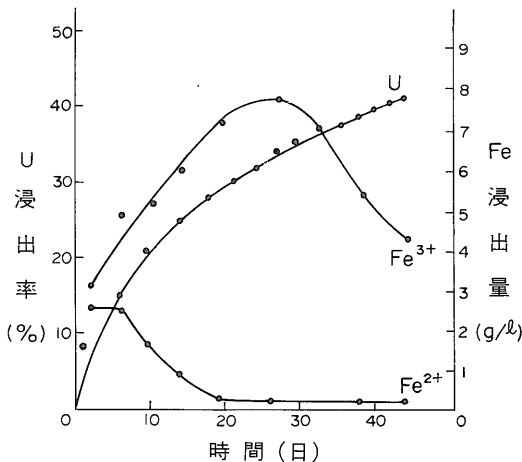
第9表 ウランに対する O-D 菌株の感受性と適応力

ウラン濃度 (mg/l)	酸化培養基中の第一鉄消費日数				
	始め	第1回代	第2回代	第3回代	第4回代
0	4	4	4	4	4
100	4	4	4	4	4
200	4	4	4	4	4
300	4	4	4	4	4
400	7	4	4	4	4
500	7	4	4	4	4
600	7	4	4	4	4
700	生長せず	10	7	7	4
800	生長せず	10	10	7	7
900	生長せず	生長せず	10	8	7
1,000	生長せず	生長せず	生長せず	10	10

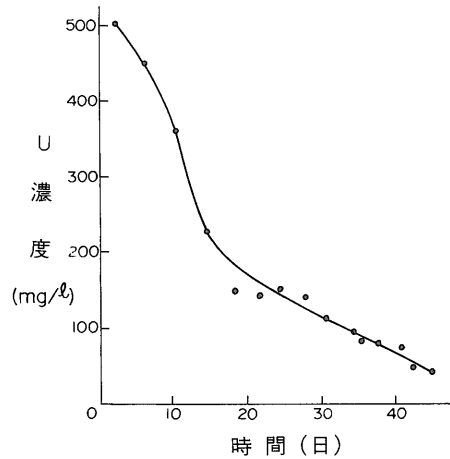
試験方法：第8表と同じ。

第10表 異なる粒度の鉱石の残渣と溶液浸出率

粒 度	混合鉱	+3.0-5.0mm	-3.0mm
原鉱品位 (%)	0.0177	0.0156	0.0204
残渣品位 (%)	0.0102	0.0122	0.0095
浸出率 (%)	42.3	21.8	53.5



第10図 粒度 -5.0 mm の鉱石によるヒープ・リーチング中のウランの浸出率及び鉄の各サイクルごとの浸出量の変化



第11図 粒度 -5.0 mm の鉱石による浸出中のウラン濃度の各サイクルごとの変化
浸出液の量：鉱石 1,000kg ごとに浸出液約 0.3 m³ を産出する。平均ウラン濃度は 240 mg/l

り、かつ浸出速度もますます遅くなった。

ヒープ・リーチング用鉱石の粒度が大きく品位も低いため、浸出率も比較的低い。ただし第10表からよみとれるように、異なる粒度について浸出率を別々に計算した結果では、粒度-3.0 mm の鉱石の浸出率は50%以上に達しているから、ヒープ・リーチングとカラム・リーチングの結果はよく似ていることがわかる。

ヒープ・リーチングで消耗する硫酸（細菌培養用及び鉄屑から硫酸第一鉄の製造、浸出液の pH 調節等に使用するものを含む）は2.43kg、消費率は鉱石重量の0.081%であった。

ヒープ・リーチングの鉱石粒度が大きく、鉱石の山の内の通気は良く、また使用される O-D 菌株は選別育成されたもので、高濃度のモリブデン・ウラニルイオンに耐えられることなどのために、浸出第1サイクルから、バクテリアの生長が非常に速く、浸出液中の Fe³⁺/Fe²⁺ 比は>1であった。第5・6サイクル（20-30日内）に至ると、バクテリアが大量に繁殖し、浸出液中の Fe³⁺ 含有量は 7g/l に達し、Fe²⁺ は消失した。また、浸出液の組成（第11表）を見ると、バクテリアの生長に必要な無機塩が多く含まれている。このために大粒度鉱石の浸出にであっても、何も栄養源を添加する必要がなかった。

第11表 浸出液の組成分析（平均試料）

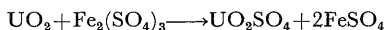
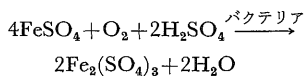
成分	SO ₄ ²⁻	PO ₄ ³⁻	NH ₄ ⁺	NO ₃ ⁻	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Fe ²⁺	Fe ³⁺	Mo
含量 (%)	18.7	0.39	微量	0.023	2.0	1.48	0.051	5.27	0.192

討 論

鉄を含む硫化鉱物のリーチングにあたって、重要な作用をしている酸化鉄桿菌は、3種類のものですでに報告されている。すなわち、酸化鉄硫桿菌 (*T. ferrooxidans*)、酸化鉄硫桿菌 (*F. ferrooxidans*)、及び酸化硫鉄桿菌 (*F. Sulfooxidans*) である。これらの桿菌の第一鉄、元素硫黄、及びチオ硫酸塩に対する酸化力はそれぞれ同じではないが、すべてが酸化力をもっている。すでに証明されているように、元素硫黄とチオ硫酸塩を利用したエネルギー源で、炭酸ガスを同化することもできる。研究者によっては上記の分類に対し異なる意見があり、最近十数年このかた、多くの研究者は上記3種類の桿菌を1種に合併することを提唱しており、それを酸化鉄硫桿菌 (*Sul-ferrooxidans*) と名付けている。

この酸化鉄硫桿菌を同定する過程で、その特徴が培養条件に伴って変化することが観察された。その桿菌はエネルギー源を含む培養基上で多代にわたって継代培養した後には、硫酸化の能力が高くなり、第一鉄酸化の能力は低下した。それにより、バクテリアの元素硫黄と硫化物を酸化する能力は、それらの原始環境の栄養条件及びバクテリア分離後人為的に与えた栄養条件に密接な関係のあることがわかる。故に本実験で分離したバクテリアは酸化鉄硫桿菌 (*T. ferrooxidans*) という名称をつけることが適切である。

酸化鉄硫桿菌をもって硫化鉱石中の金属を浸出する原理については、直接作用と間接作用の2種類の見解がある。ウラン鉱のリーチングに対しては、現在の実験結果から見て、すべて間接作用に属しているものと認められる。すなわちバクテリアは黄鉄鉱 (または FeSO_4) を酸化して硫酸第二鉄を生ずる。 Fe^{3+} は四価のウランを酸化させて六価のウランを作り、この六価のウランは低酸度下においても溶解する。



筆者らの実験の結果の示すところでは、硫酸第二鉄の作用は重要である。酸性で硫酸第二鉄を単独に使用して攪拌浸出しても、ウランの浸出率は同様に高い。

筆者らの実験観察によれば、第3サイクルの浸出を終えた後では、毎サイクルごとの最初の循環浸出は、使用する浸出剤中に少量の Fe^{3+} (5%菌種の接種に由来したもの) しかないにもかかわらず、浸出液は全部 Fe^{3+} で Fe^{2+} が全くなく、かつ、循環回数が増加するのにつれて、鉱石中から溶出する Fe^{3+} はさらに多くなる。このよ

うなことは、浸出液中に存在している大量の第二鉄及び金属は明らかに鉱石表面にバクテリアが附着し、硫化鉱物との作用を起した結果生じたものである。したがって、バクテリアによる間接作用のほかに、はたして直接作用があるかどうかは、さらに進んだ考察を待つ必要がある。

リーチング中は、粒度の小さい (-10 mm) の鉱石より、粒度の大きな鉱石 (-30 mm) がバクテリアの生長繁殖に対する効果はさらに良く、 $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ の形成も一そう多い。その原因は、粒度の大きな鉱石のほうが間の空隙が大きく、通気が良く、浸出剤が循環浸出する中で大量の空気を運びこむことができるからである。そのほかにも、バクテリアにとって有毒な金属イオン (モリブデンなど) の浸出液中の濃度が低く、そのためにバクテリアに対し、よい生長条件を提供している。細粒の鉱石は、カラム内に通気条件に差があるので、最初数サイクルの浸出液中のモリブデンイオンの濃度も高く、バクテリアの生長には不利である。それゆえ、細粒度鉱石のヒープ・リーチングには、バクテリアの継代培養が必要で、そうすればバクテリアがある程度のウラニル・モリブデンイオン濃度に耐えられるようになる。本試験では、O-D 菌株の耐ウラン濃度を 1,000 mg/l、耐モリブデン濃度を 200 mg/l に高め、これによってバクテリアはリーチングに際して正常に生長できた。

文 献

- 1) 菱 栄慶 (1976) 銅・ウラン鉱石のバクテリア・リーチング。微生物学通報, 3 (1), 18-20.
- 2) TOMIZUKA, N. and TAKAHARA, Y. (1972) Proc. IV IFS: Ferment. Technol. Today, 513.
- 3) FISHER, J. R. (1966) Can. Min. Met. Bull., 59 (649), 538.
- 4) HARRISON, V. F. et al. (1966) Can. Min. J., 87(5), 64.
- 5) Gow, W. A. et al. (1971) The Recovery of Uranium (Proc. Symp.), 195.
- 6) WHITE, P. A. F. and SMITH, S. E. (1969) J. Brit. Nucl. Energy Soc., 8(2), 93.
- 7) 栗原一男 (1970) 原子力工業, 16(12), 23.
- 8) KUZNETSOVA, E. T. and KULIGINA, I. P. (1972) Atomn. Energ., 32(2), 153.
- 9) BARBICH, F. F. and KRANICHANICH, B. B. (1972) Mikrobiologiya, 41, 346.
- 10) MOURET, M. (1968) Rev. l'Ind. Min., 50(5),

- 397.
- 11) BJÖRLING, T. (1974) *Nucl. Sci. Abstr.*, 29(5), 9907.
- 12) MACGREGOR, R. A. (1966) *CIM Trans.*, 69, 162.
- 13) MacGREGOR, R. A. (1969) *Nuclear Applications*, 6(1), 68.
- 14) MAGET, P. *et al.* (1972) *Industrie Minérale*, 54(5), 229-246.
- 15) LGATHEM, W. W. *et al.* (1956) *J. Bacteriol.*, 72, 700.
- 16) HUTCHINSON, M. *et al.* (1969) *J. Gen Microbiol.*, 47, 397.