

嗜酸性铁/硫杆菌浸出砂岩型铀矿协同作用研究

刘晨阳^{1,2}, 刘亚洁^{1,2,3}, 王学刚^{1,2,3}, 周仲魁^{1,2,3}, 王 健^{1,2,3}

(1. 东华理工大学 核资源与环境国家重点实验室, 江西 南昌 330013;

2. 东华理工大学 水资源与环境工程学院, 江西 南昌 330013;

3. 地下水污染成因与修复江西省重点实验室, 江西 南昌 330013)

摘要:研究了以铀矿山原位分离的土著嗜酸氧化亚铁硫杆菌(*Acidithiobacillus ferrooxidans*, L24f)、嗜酸氧化硫硫杆菌(*Acidithiobacillus thiooxidans*, L24s)浸出砂岩型铀矿中的铀。通过摇瓶浸出试验考察了不同接种配比对铀浸出效果的影响,并结合理化参数监测、SEM-EDS、XRD 表征技术揭示了二者的协同浸出机制,以确定协同浸出的有效性以及最适配比。结果表明:L24f 与 L24s 菌株具有显著的协同浸铀效应,二者接种体积比 1:1 为最优配比,在该条件下浸出砂岩型铀矿中的铀,最终浸出率达 86.5%,较单一 L24f 纯菌体系提升 7.5 个百分点;混合菌体系可通过代谢功能互补维持体系低 pH 环境,有效抑制黄钾铁矾钝化层形成,显著提升铀浸出率。

关键词:铀;砂岩型铀矿;协同浸出;生物浸出;混合菌;嗜酸氧化亚铁硫杆菌;嗜酸氧化硫硫杆菌

中图分类号:TL212 **文献标识码:**A **文章编号:**1009-2617(2026)03-0331-10

DOI:10.13355/j.cnki.sfyj.2026.03.008

生物浸出技术是利用微生物的代谢活动促进矿物溶解的技术,不仅适用于低品位、难处理铀矿的开发^[1-3],在铀-多金属矿的协同开发中也具有独特优势^[4]。不同菌种对矿物的氧化分解能力存在差异,因此在矿物浸出中各具优势特性。将这些具有不同优势特性的菌种混合之后用于浸矿,能够提高金属浸出率^[5-6]。

目前,国内外围绕微生物协同浸矿已开展的研究表明,基于混合菌各菌种之间的功能互补作用,混合菌的浸矿效果较单一纯菌体系有显著提升^[7-11]。嗜酸氧化亚铁硫杆菌(*Acidithiobacillus ferrooxidans*, 简称 *A. f*)因能将 Fe^{2+} 氧化成 Fe^{3+} ,而 Fe^{3+} 作为强氧化剂可有效溶解铀矿物(如 UO_2),因此 *A. f* 菌被广泛应用于铀矿生物浸出过程;但 *A. f* 菌在氧化矿石中的 FeS_2 时会生成单质硫,而单质硫和次生产物黄钾铁矾等会包裹在矿石表面而形成钝化层,从而阻碍金属的进一步浸出^[12-13]。而嗜酸氧化硫硫杆菌(*Acidithiobacillus*

thiooxidans, 简称 *A. t*)能以还原态硫为能源,将该还原态硫氧化产酸,从而维持体系酸性环境,促进矿物及钝化层的溶解^[14]。目前,混合菌体系在浸出一些金属矿时已表现出显著的协同增效潜力^[14-15]。而一些混合菌在浸出多种铀矿中的协同增效潜力也已得到验证,如在堆浸结垢铀矿的处理中,混合菌体系可破坏矿物表面钝化层,使软结垢矿石和硬结垢矿石的铀浸出率分别提升至 85.37% 和 83.21%^[16];针对含 3.1% 黄铁矿的低品位铀矿,两种菌种混合浸出的铀回收率达 85.1%,较传统酸浸提升 27%,且黄铁矿溶解率高达 98.0%^[17];在碳硅泥岩型铀矿浸出中,控制适宜的 Fe/S 比,*A. f* 与 *A. t* 混合菌体系对铀的浸出率可达 90% 以上,显著优于单一菌种^[18]。

现有研究大多聚焦于含原生硫化矿物、硫铁含量较高的铀矿,而针对低硫低铁、无硫化矿物的砂岩型铀矿,嗜酸硫杆菌的协同浸出效应规律及内在作用机制尚未得到系统解析,适配该类矿石

收稿日期:2026-03-12;修订日期:2026-04-09

基金项目:铀资源探采与核遥感全国重点实验室(东华理工大学)自主部署项目(2024QZ-TD-22);江西省重点研发计划项目(20232BBG70007);中国铀业有限公司—东华理工大学核资源与环境国家重点实验室联合创新基金项目(2023NRE-LH-19);国防基础科研项目(JCKY2019401D003)。

第一作者简介:刘晨阳(2001—),男,硕士研究生,主要研究方向为生物冶金。

通信作者简介:刘亚洁(1967—),女,博士,教授,主要研究方向为环境生物技术、生物冶金。E-mail:lyj008@126.com。

的高效混合菌体系仍较为匮乏。因此,以从铀矿山原位环境分离纯化的两株土著菌 *A. ferrooxidans* L24f 与 *A. thiooxidans* L24s 为对象,通过设置空白对照组、纯菌组与不同接种比混合菌组的平行摇瓶试验,系统考察了两菌株协同作用对低硫低铁砂岩型铀矿浸出效果的影响;结合浸出体系理化参数动态监测、矿渣 SEM-EDS 与 XRD 微观表征,明确了两菌株的协同浸出效应,揭示了混合菌体系通过 Fe/S 代谢互补调控体系 pH 稳态与氧化还原平衡、抑制黄钾铁矾钝化层形成的内在协同机制,明确了低硫低铁砂岩型铀矿中嗜酸硫杆菌的协同浸出规律,以期为我国低品位砂岩型铀矿生物浸出高效菌体系的构建与工程应用提供理论依据和技术支撑。

1 材料与方法

1.1 材料

1) 菌种及培养基。试验菌种为实验室从江西省修水某铀矿场酸性废水中分离的 *A. f* 菌: H1cYL24X-f(后简称为 L24f)与 *A. t* 菌: H1cYL24X-s(后简为 L24s)。L24f 在 25 g/L $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 的 9K 培养基中培养, L24s 则在添加了 2 g/L 单质硫的 Waksman 培养基中培养。9K 液体培养基成分为: $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 3 g/L、KCl 0.1 g/L、 K_2HPO_4 0.5 g/L、 $\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 0.5 g/L、 $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ 0.01 g/L,用稀硫酸调节 pH 至 2.0; Waksman 液体培养基成分: $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 0.2 g/L、 K_2HPO_4 3 g/L、 $\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 0.5 g/L、CaCl₂ 0.126 g/L,用稀硫酸调节 pH 至 4.0。

2) 矿样。试验用砂岩型铀矿石样品取自新疆某铀矿床。将矿石样品经堆锥四分法筛分粒径小于 1 mm,将铀矿石置于通风干燥条件下,自然晾晒至恒重后研磨至-200 目,外送进行化学成分分析(XRF)和物相分析(XRD),结果见表 1 和图 1。可以看出,矿石中的碳酸盐类矿物含量较低,含有 K_2O 、CaO、 Na_2O 等耗酸氧化物,总铀品位占 0.020 6%,且铁、硫含量较少,不利于生物浸出。

表 1 砂岩型铀矿石样品的主要化学组成

Table 1 Main chemical components of sandstone-type uranium ore sample

uranium ore sample						%
BaO	CaO	K ₂ O	MgO	MnO	Na ₂ O	U ^①
0.06	0.16	2.71	0.16	<0.01	0.13	206.5
SiO ₂	S	TiO ₂	Fe	P ₂ O ₅	Al ₂ O ₃	LOI ^②
85.47	0.32	0.14	0.46	0.01	6.76	3.03

注:①代表单位为 μg/g;②代表样品在 1 000 ℃下的烧失量。

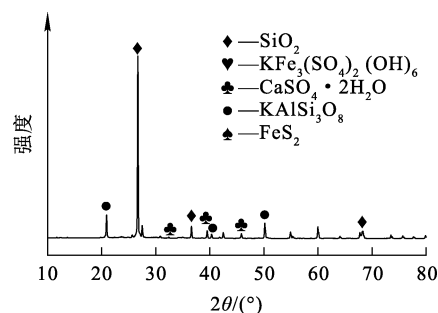


图 1 砂岩型铀矿石的 XRD 图谱

Fig. 1 XRD pattern of sandstone-type uranium ore

1.2 试验方法

含铀浸出液体积为 200 mL,试验总接种量为 20%(体积比),所有浸出试验均在 500 mL 锥形瓶中进行。浸出体系共分 6 个试验组。其中单一菌组 A1、A2 分别接种 20% 的 L24f、L24s 菌液;混合菌组 A3($V(\text{L24f}) : V(\text{L24s}) = 1 : 1$)、A4($V(\text{L24f}) : V(\text{L24s}) = 2 : 1$)、A5($V(\text{L24f}) : V(\text{L24s}) = 1 : 2$)总接种量均为 20%,按比例调整两株菌的接种体积;空白对照组 A0 接种等量无菌 9K 基础培养基,保证各组体系总体积一致。每组设置 3 个平行样。试验所用菌液均为培养至对数中期的新鲜菌液:L24f 接种于 9K 液体培养基中,在 30 ℃、150 r/min 条件下振荡培养 24 h; L24s 接种于 Waksman 液体培养基中,在 30 ℃、150 r/min 条件下振荡培养 3 d。经血球计数板测定,两株菌液的活菌浓度均统一调至 1.0×10^7 cells/mL;接种前,菌液在 8 000 r/min 条件下离心 5 min,弃上清液,用 pH=2.0 的无菌去离子水溶液洗涤菌体 2 次,去除残留培养基中的 Fe^{2+} 、单质硫及代谢产物,重悬后备用,避免初始基质对浸出体系造成干扰。试验开始前,配制 9K 基础培养基,用稀硫酸调节 pH 至 2.0,于 121 ℃下高压蒸汽灭菌 20 min;铀矿石样品分装后单独灭菌,于 121 ℃下高压蒸汽灭菌 20 min,灭菌完成后于无菌环境下冷却至室温备用。冷却后按 1:10(质量体积比)加入灭菌后的 9K 基础培养基中,混合均匀后向体系中添加过滤灭菌的 $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 母液,使体系中 Fe^{2+} 最终质量浓度为 5 g/L;添加灭菌的单质硫粉,使体系中单质硫最终质量浓度为 2.0 g/L;再按上述组别接种对应比例的无菌 9K 培养基/菌液,补足浸出液体积至 200 mL。将所有锥形瓶用无菌透气封口膜

封口后置于恒温振荡培养箱中,设置培养温度 30 ℃、转速 110 r/min,连续摇瓶浸出 9 d。浸出过程中,每 24 h 无菌取样 5 mL,用于监测溶液 pH、Eh,以及 Fe^{2+} 、总 Fe、铀浓度。浸出试验结束后,收集各组矿渣,用去离子水反复冲洗至中性,常温下干燥至恒重,用扫描电子显微镜-能谱分析(SEM-EDS)观察矿渣表面微观形貌与元素组成,用 X 射线衍射(XRD)分析矿渣物相组成。

1.3 分析方法

采用实验室奥豪斯 pH 计(OhausST 3100,常州)测定 pH 和 Eh,采用乙二胺四乙酸二钠(EDTA)滴定法^[19]测定浸出液中铁离子浓度,采用 ICP-OES(Thermo Fisher Xseries,美国)测定铀浓度。

2 试验结果与讨论

2.1 单一/混合菌对铀矿浸出参数的影响

2.1.1 体系 pH 的变化特征

浸出体系 pH 是影响铀赋存形态、铁离子溶解沉淀行为及微生物生长代谢的关键因素^[17-18]。不同组别的体系 pH 随时间的变化曲线如图 2 所示。可以看出:浸出前 24 h 内,各组别 pH 均呈上升趋势,这主要是因为矿石中的 K_2O 、 CaO 等碱性氧化物与体系中的硫酸发生中和反应,酸被持续消耗^[20],而此时菌株尚未进入对数生长期,生物产酸量仍远远低于矿石耗酸量;浸出 24 h 后,无菌空白组 A0 的 pH 持续上升,直至升至 2.04 后趋于稳定,无生物产酸过程,仅存在矿石碱性氧化物的持续耗酸,而 5 个接菌组 pH 均呈先升后降趋势,各组别最终体系 pH 大小排序为 $\text{A0} > \text{A1} > \text{A3} > \text{A4} > \text{A5} > \text{A2}$ 。体系 pH 的动态变化本质上是 L24f 与 L24s 的 Fe/S 代谢平衡的直接体现:L24f 氧化 Fe^{2+} 的过程为耗酸反应(式(1)),会导致体系 pH 升高;而 L24s 通过氧化单质硫产酸(式(2)),可抵消 Fe^{2+} 氧化的耗酸效应,是体系 pH 调控的核心。二者不同接种配比直接决定了体系的 Fe/S 代谢强度,进而影响体系 pH。有研究表明,微生物合成黄钾铁矾的最佳 pH 范围在 2.0~5.0 之间^[21],而 $\text{pH} < 1.5$ 时,黄钾铁矾的生成会被抑制^[22],而试验结果表明,单一 L24f 纯菌组 A1 无持续氧化硫产酸过程, Fe^{2+} 氧化的耗酸量大于 Fe^{3+} 水解的产酸量,最终 pH 升至 2.00,恰好处于黄钾铁矾生成的 pH 范围;

而添加 L24s 的组别,随 L24s 接种体积增大,体系最终 pH 逐渐降低,其中体积比 1:1 混合组 A3 最终 pH 稳定在 1.78。现有研究证实 A. f 菌的生长代谢最适宜 pH 范围在 1.8~2.0 之间^[20],1.78 与该类菌株生长代谢最适宜 pH 范围接近,且并未处于黄钾铁矾大量生成的 pH 区间(2.0~5.0),有效抑制了矿物表面致密钝化层的形成,为维持浸出反应持续进行创造了有利条件。

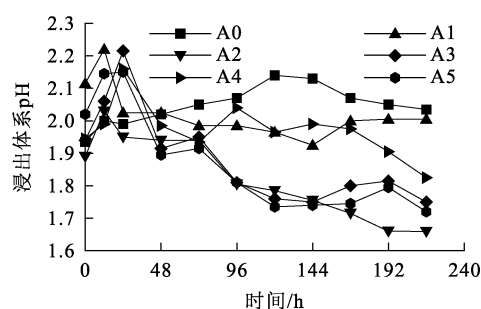
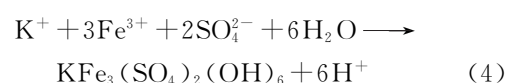
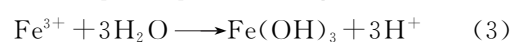
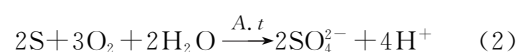
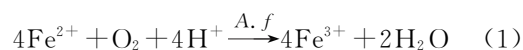


图 2 不同组别的体系 pH 随时间的变化曲线

Fig. 2 Variation curves over time for system pH of different experimental groups

2.1.2 氧化还原电位(Eh)的变化特征

浸出体系 Eh 主要由溶液中 $[\text{Fe}^{3+}]/[\text{Fe}^{2+}]$ 比值决定,是反映浸出体系氧化能力的核心指标^[23],不同组别的 Eh 随时间的变化曲线如图 3 所示。可以看出:无菌空白组 A0 与 L24s 单一菌组 A2 的 Eh 仅呈平缓上升趋势,试验终点 Eh 均低于 450 mV,原因是这 2 个体系无氧化 Fe^{2+} 的功能菌,不能持续生成 Fe^{3+} ,体系氧化能力极弱,无法实现 U(IV)的氧化溶出;而 A3~A5 组中因含有可将 Fe^{2+} 氧化为 Fe^{3+} 的 L24f 功能菌,能实现 Fe^{3+} 的循环再生(L24f 将 Fe^{2+} 氧化为 Fe^{3+} , Fe^{3+} 作为强氧化剂将矿石中难溶的 U(IV)氧化为可溶的 U(VI),自身被还原为 Fe^{2+} ,再次被 L24f 氧化),这是铀持续溶出的核心动力^[24],因此这 3 个体系的氧化能力较强,能实现 U(IV)的氧化溶出。与 A4、A5 组相比,A3 组通过两菌株的协同作用,能将体系 pH 稳定在 L24f 的最适生长

范围,使该菌株始终保持高 Fe^{2+} 氧化活性,保障了 Fe^{2+} 循环的稳定,为 $\text{U}(\text{IV})$ 的氧化溶出提供了充足的氧化剂。由图 3 还可看出,浸出后期,各组别 Eh 趋于平稳或轻微下降,这与(式(3))中 Fe^{3+} 水解沉淀造成的氧化剂不可逆损耗、菌株进入生长衰退期有关^[25-26],这也进一步验证了 Fe^{3+} 循环效率对体系氧化能力的决定性作用。

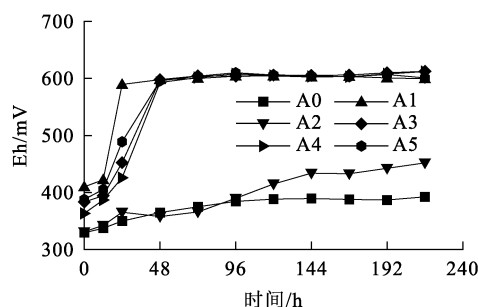
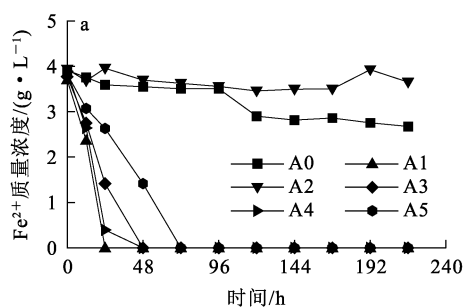


图 3 浸出体系 Eh 随时间的变化曲线

Fig. 3 Variation curves over time for Eh values of different experimental groups

2.1.3 铁离子质量浓度的变化特征

不同组别的 Fe^{2+} 、总 Fe 质量浓度随时间的变化曲线如图 4 所示。由图 4(a) 看出:空白组 A0 与单一 L24s 菌组 A2 的 Fe^{2+} 质量浓度仅出现略微下降,这是因为体系缺少具备氧化 Fe^{2+} 的功



能菌,仅有少量 Fe^{2+} 的自然氧化,无法建立 Fe^{3+} 循环;而所有含 L24f 的组别 A1、A3~A5,其中 Fe^{2+} 质量浓度均呈现下降趋势,这是由于 L24f 通过将 Fe^{2+} 氧化为 Fe^{3+} 所致。由图 4(b) 看出:所有含 L24f 的组别,体系的总 Fe 质量浓度整体呈下降趋势,这主要是因为体系中 Fe^{3+} 与溶液中的阳离子、硫酸根结合生成黄钾铁矾沉淀(式(4)),导致溶液中可溶性 Fe^{3+} 质量浓度降低、总 Fe 含量损失^[27-29],但不排除黏土矿物表面对铁元素的吸附^[30]、微生物胞外聚合物(EPS)与 Fe^{3+} 的结合^[31],以及 Fe^{3+} 形成无定形次生铁矿^[32]等因素的影响,进一步加剧了溶液中总 Fe 的损失;试验终点含 L24f 各组别的总 Fe 损失量排序为 $\text{A1} > \text{A4} > \text{A3} > \text{A5}$,这与体系最终 pH 水平相对应,即 A1 组 pH 最高,总 Fe 损失最严重;而随着 L24s 占比提升,体系 pH 降低,总 Fe 损失量逐渐减少。

Fe^{3+} 沉淀生成黄钾铁矾的过程是造成浸出效率下降的主要原因:一方面, Fe^{3+} 的不可逆损耗直接影响了铀氧化溶出的 Fe^{3+} 循环,造成后期氧化剂不足;另一方面,生成的黄钾铁矾会在矿物表面形成致密的钝化层,不仅阻断细菌与矿物表面的直接接触,还阻碍 H^+ 、 Fe^{3+} 与 UO_2^{2+} 传质过程,使浸出反应无法持续向矿物内部推进^[33-34],这也是 A1 组浸出效果显著低于 A3~A5 组的核心原因。

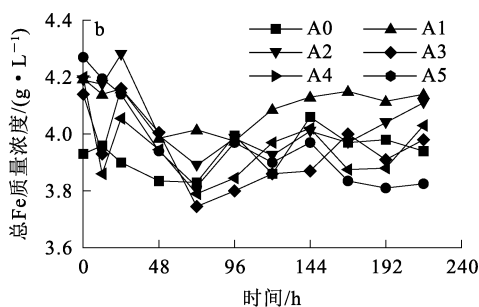


图 4 不同组别的 Fe^{2+} (a) 和总 Fe (b) 质量浓度随时间的变化曲线

Fig. 4 Variation curves over time for mass concentrations of Fe^{2+} (a) and total Fe (b)

2.1.4 铀离子质量浓度的变化特征

不同组别铀质量浓度随时间的变化曲线如图 5 所示,试验终点各组别铀浸出率见表 2。由表 2 看出:空白组 A0 与 L24s 单一菌组 A2 的铀浸出效果较差,试验终点铀浸出率仅为 30.1% 和 50.8%。因试验用矿石中铀品位较低,导致 XRD 分析未检出铀矿物特征峰,结合砂岩型铀矿铀赋存形态的系

统研究成果,推测矿石中的铀主要以还原态 $\text{U}(\text{IV})$ 形式赋存,核心赋存矿物为晶质铀矿(uraninite, UO_2)和铀石(coffinite, $\text{USiO}_4 \cdot n\text{H}_2\text{O}$)^[2,35],二者均为酸性难溶矿物,在无外源氧化剂条件下,仅靠 H^+ 的酸溶作用难以实现有效溶解,其浸出的前提是 $\text{U}(\text{IV})$ 被氧化为易溶于酸性溶液的 $\text{U}(\text{VI})$,而 Fe^{3+} 是砂岩型铀矿浸出体系中 $\text{U}(\text{IV})$

氧化最核心的电子受体与氧化剂^[36]。A0 组与 A2 组均无氧化 Fe^{2+} 的功能菌,因此无法持续生成 Fe^{3+} ,不能完成 U(IV) 到 U(VI) 的氧化转化,仅能溶出少量易溶的吸附态 U(VI) ,无法实现铀的高效浸出,这与已有研究结论完全一致^[37-38]。

由表 2 还可看出:L24f 单一菌组 A1 的试验终点铀浸出率为 79.0%,除 A5 组外,其他 2 个混合菌组 A3、A4 的试验终点铀浸出率均高于单一菌组 A1、A2,说明两种菌株对铀具有明显的协同浸出效应;其中混合组 A3 的铀浸出效果最优,终点铀浸出率达 86.5%,较 A1 组提升 7.5 个百分点;混合组 A4 的终点铀浸出率为 83.2%,混合组 A5 的仅为 65.7%。3 组铀浸出率的差异在本质上是不同接种配比下 Fe/S 代谢平衡与体系稳定性的直接体现;A4 组 L24f 占比过高,Fe 氧化代谢强度远大于 S 氧化代谢强度,体系耗酸速率大于产酸速率,最终 pH 偏高,黄钾铁矾大量生成, Fe^{3+} 循环受阻,矿物表面钝化严重,阻碍了铀的持续溶解;A5 组 L24s 占比过高,抑制了 L24f 的活性, Fe^{2+} 氧化速率较低, Fe^{3+} 循环效率不足,铀氧化浸出缺少充足的氧化剂,使浸出效率受限;而混合组 A3 实现了 Fe 氧化代谢与 S 氧化代谢的平衡,体系 pH、Eh 在浸出 48 h 后即进入稳定区间,无大幅波动,既保障了 Fe^{3+} 循环,又有效抑制了黄钾铁矾钝化层的生成,为铀矿物的持续浸出创造了稳定的体系环境。此外,结果还表明,L24f 是主要浸铀细菌,而 L24s 的核心作用是产酸调节体系 pH,二者适宜的 Fe/S 代谢是协同浸铀的关键,过量的单一菌株均会打破体系平衡,对浸出反应产生抑制作用,这与现有研究^[13,24,39] 结论一致。

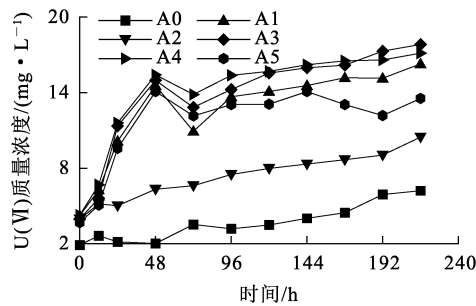


图 5 不同组别的铀质量浓度随时间变化曲线
Fig. 5 Variation curves over time for uranium mass concentrations of different groups

表 2 浸出终点各组 pH 与铀浸出率
Table 2 pH and uranium leaching rate of different groups at end of leaching

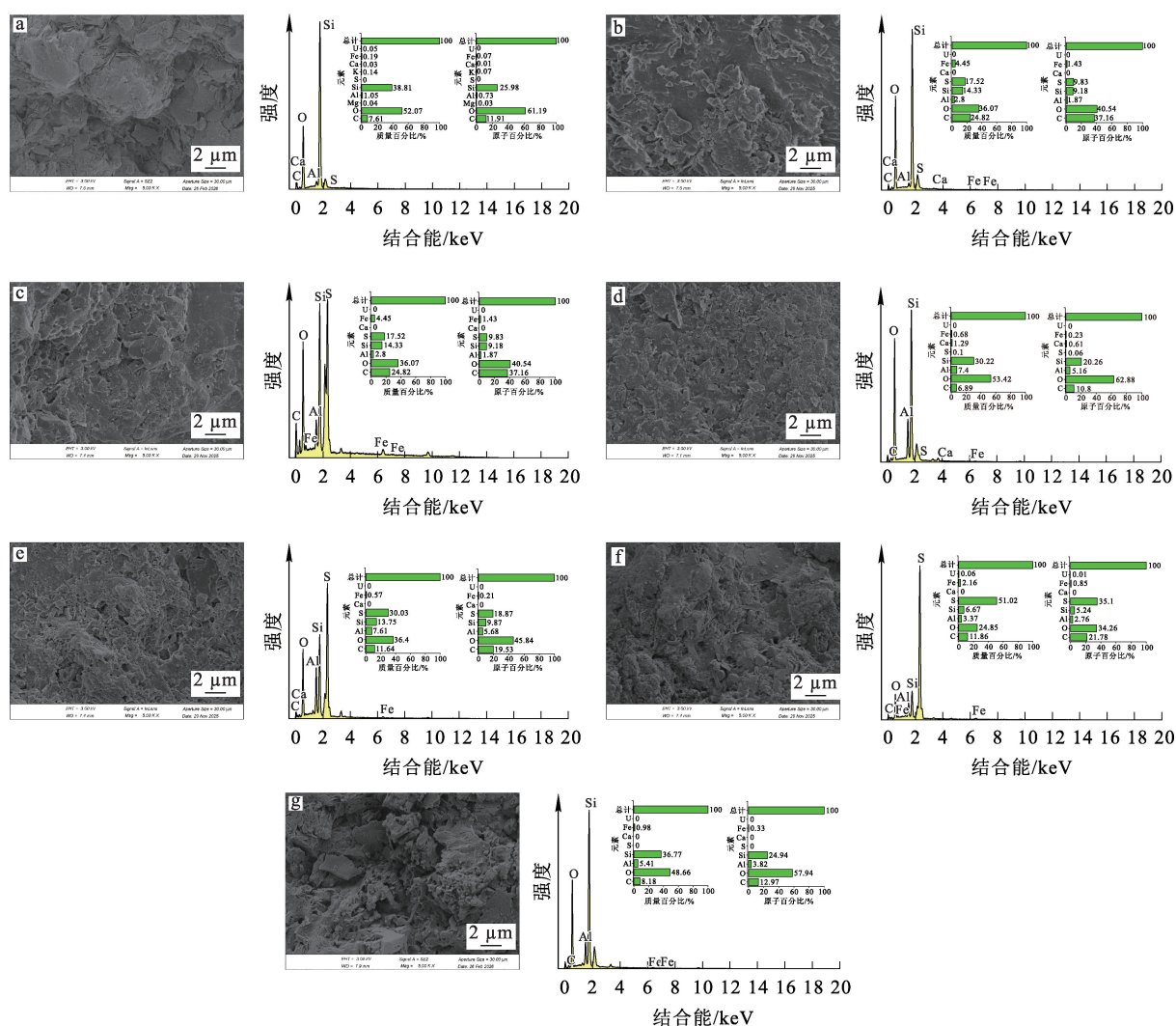
组别	终点 pH	铀浸出率/%
A0	2.04	30.1
A1	2.00	79.0
A2	1.66	50.8
A3	1.78	86.5
A4	1.92	83.2
A5	1.72	65.7

2.2 浸出渣的表征

2.2.1 SEM 微观形貌

浸出前、后矿样的 SEM 形貌与 EDS 能谱分析结果如图 6 所示。原矿样(图 6(a))表面光滑平整,无明显孔隙与溶蚀裂缝,矿物颗粒边界清晰,EDS 能谱显示 Fe 元素质量百分比仅为 0.19%,与原矿化学成分分析结果一致。空白组 A0(图 6(b))矿石表面仍保持相对平整,仅局部出现少量松散细颗粒,无显著溶蚀特征,证实单纯化学作用对矿石的破坏作用极弱,与铀浸出率结果完全吻合^[40-41]。L24f 单一菌组 A1(图 6(c))矿石表面出现溶蚀坑,且表面附着大量含 Fe、S 元素的絮状沉淀,EDS 能谱显示 Fe、S 元素质量百分比分别达 4.45%、17.52%,证实矿物表面形成了大量黄钾铁矾类次生沉淀,沉淀覆盖在矿物表面,阻碍了细菌与铀矿的直接接触,这是 A1 组浸出效果受限的主要原因^[42]。L24s 单一菌组 A2(图 6(d))矿石表面仅颗粒边缘出现轻微刻蚀,无明显溶蚀特征,证实 H^+ 仅能溶解易溶组分,而 Fe^{3+} 的氧化作用才是破坏矿物形貌、释放难溶金属的关键^[43-44]。混合菌组 A3(图 6(e))矿石表面分布大量溶蚀坑,而这是细菌代谢活动与 Fe^{3+} 氧化协同作用的结果^[45],细菌通过吸附于矿物表面分泌代谢产物,加速局部矿物溶解并形成特征性溶蚀结构^[46]。

结合 EDS 能谱数据与铀浸出结果可知:A1 组矿物表面附着大量高 Fe、S 含量的沉淀,形成了致密的钝化层,完全覆盖了矿物表面,即便体系前期具备一定的氧化能力,后期也会因反应受阻,导致浸出反应减缓;A3 组仅存在少量的含铁沉淀,无连续钝化层形成,矿物表面大量溶蚀坑保障了细菌与矿物的接触、 H^+ 与 Fe^{3+} 的向内扩散和 UO_2^{2+} 的向外溶出,进而提高铀浸出率;而 A4、A5 组均存在不同程度的沉淀覆盖,导致铀浸出率低于 A3 组。



a—原矿;b—A0 组;c—A1 组;d—A2 组;e—A3 组;f—A4 组;g—A5 组

图 6 浸出前、后矿样的 SEM、EDS 能谱

Fig. 6 SEM and EDS spectra of ore samples before and after leaching

2.2.2 XRD 物相分析

不同组别浸出渣的 XRD 图谱如图 7 所示。原矿的主要物相为石英、钾长石,空白组 A0 浸出渣中仅新增少量石膏($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$)特征峰,无其他新生物相,与 SEM 结果一致;L24f 单一菌组 A1 浸出渣中出现了明显的黄钾铁矾($\text{KFe}_3(\text{SO}_4)_2(\text{OH})_6$)特征峰,且峰强度较高,证实该体系生成了大量黄钾铁矾沉淀;L24s 单一菌组 A2 浸出渣中未检测到黄钾铁矾特征峰;3 个混合菌组的浸出渣中均检测到黄钾铁矾特征峰,但峰强度显著低于 A1 组,且随着 L24s 接种配比的增加,黄钾铁矾特征峰强度逐渐减弱,与体系 pH 变化规律、EDS 元素分析结果完全吻合。值得注

意的是,试验用原矿石中 K_2O 质量分数高达 2.71%,其主要赋存于钾长石中,在酸性浸出条件下,钾长石会溶解释放 K^+ ,而 K^+ 是黄钾铁矾($\text{KFe}_3(\text{SO}_4)_2(\text{OH})_6$)必需组成成分,这可为黄钾铁矾的生成提供充足的钾源,促进其生成量提升,这也是本研究体系中黄钾铁矾易生成的原因。

由图 7 看出:接种配比为 1:1 的混合菌组 A3 的钾长石特征峰强度降低最为明显,表明该组矿石的矿物溶蚀程度最深,这与铀浸出率结果吻合。前人研究结果表明,黄钾铁矾在 $\text{pH} = 1.60 \sim 3.44$ 时易生成,但 $\text{pH} < 2.0$ 时呈分散态分布,不易聚集形成连续覆盖层;而 $\text{pH} > 2.0$ 时易团聚形成致密沉淀层,从而在矿物表面形成钝化

层^[47]。本研究中,A1 组体系最终 pH 升至 2.00,为黄钾铁矾的产生提供了有利条件,生成的致密沉淀层完全阻断了浸出反应的传质通道^[22];而 A3 组体系最终 pH 稳定在 1.78,黄钾铁矾仅以

分散态存在,无法形成连续钝化层,同时低 pH 环境进一步强化了 Fe^{3+} 对铀矿物的氧化溶出作用,最终实现了铀的高效浸出。

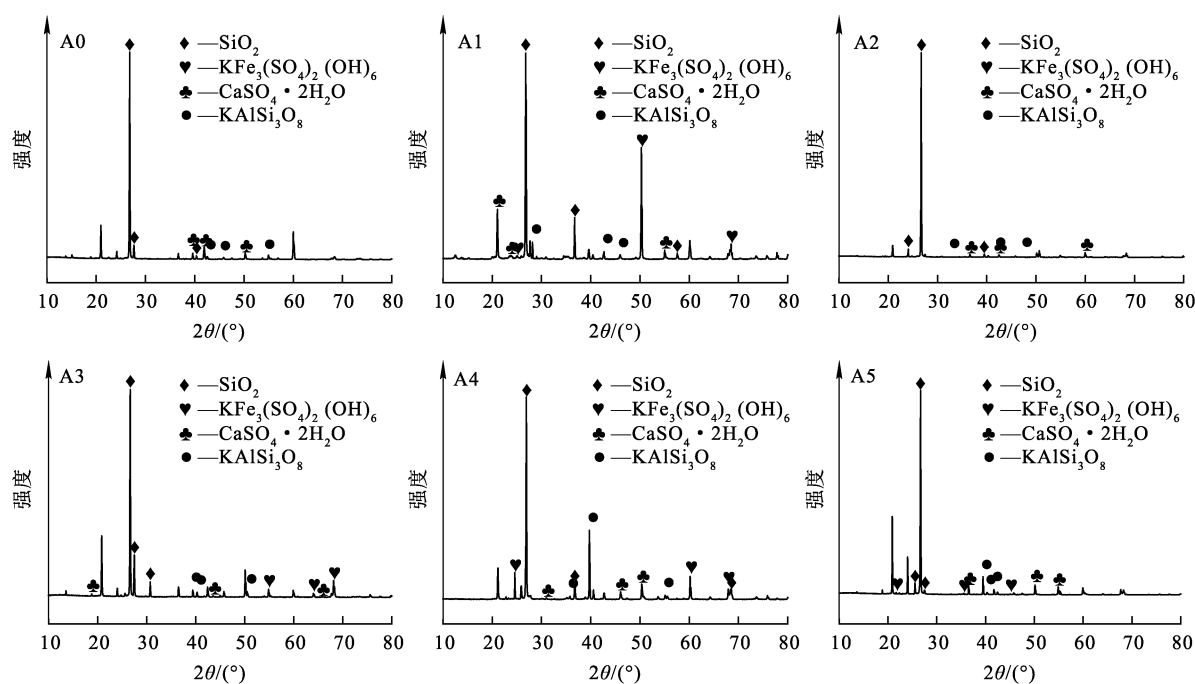


图 7 不同组别浸出渣的 XRD 图谱

Fig. 7 XRD patterns of leaching residues of different groups

3 结论

以铀矿山原位分离的土著菌株 L24f 与 L24s 为对象,研究了不同接种配比的混合菌体系对低品位砂岩型铀矿的浸出效果,结合理化参数监测与微观表征,揭示了两种菌株对铀的协同浸出机制,主要结论如下:

1) 土著菌株 L24f 与 L24s 在低品位砂岩型铀矿浸出中具有明显的协同作用,混合菌体系的铀浸出效果优于单一菌体系;二者接种体积比 1:1 为最优配比,该条件下砂岩型铀矿最终铀浸出率达 86.5%,较单一 L24f 菌体系提升 7.5 个百分点。

2) 两种菌株的协同浸铀核心机制是 Fe/S 代谢功能的互补: L24f 通过氧化 Fe^{2+} 持续再生 Fe^{3+} ,构建铀氧化浸出的循环体系,为 U(IV) 氧化提供持续氧化剂; L24s 通过氧化单质硫产酸调节体系 pH,将其稳定在 1.8 左右,既保障了 L24f 的代谢活性,又抑制了矿物表面钝化层的形成,保障了浸出体系的传质效率与 Fe^{3+} 循环的稳定。

3) 针对硫、铁含量极低的砂岩型铀矿, L24f 与 L24s 的混合菌体系仍具有协同浸出作用。

该研究可为我国低品位砂岩型铀矿地浸采铀的生物菌剂开发与工艺优化提供技术参考,具有良好的工程推广应用前景。

参考文献:

- [1] DASH J, OJHA R, PRADHAN D. Progress in bioleaching and its mechanism: a short review[J]. Discover Environment, 2025, 3(1): 238.
- [2] LI G, YAO J. A review of in situ leaching (ISL) for uranium mining[J]. Mining, 2024, 4(1): 120-148.
- [3] 苏学斌, 原渊, 贾秀敏, 等. 我国铀水冶技术现状与展望[J]. 核化学与放射化学, 2025, 47(4): 313-326.
- [4] SU Xuebin, YUAN Yuan, JIA Xiumin, et al. Review and prospect of uranium hydrometallurgy in China[J]. Journal of Nuclear and Radiochemistry, 2025, 47(4): 313-326.
- [5] 夏庆银, 刘龙成, 牛玉清, 等. 相山铀矿及其伴生稀土资源生物浸出研究[J]. 湿法冶金, 2024, 43(3): 230-235.
- [6] XIA Qingyin, LIU Longcheng, NIU Yuqing, et al. Bioleaching of a uranium ore from xiangshan deposit and its associ-

- ated rare earth resources[J]. Hydrometallurgy of China, 2024, 43(3): 230-235.
- [5] ZHOU S, LIAO X, LI S, et al. A designed moderately thermophilic consortia with a better performance for leaching high grade fine lead-zinc sulfide ore[J]. Journal of Environmental Management, 2022, 303. DOI: 10. 1016/j. jenvman. 2021. 114192.
- [6] 尹升华, 王雷鸣, 吴爱祥, 等. 我国铜矿微生物浸出技术的研究进展[J]. 工程科学学报, 2019, 41(2): 143-158.
YIN Shenghua, WANG Leiming, WU Aixiang, et al. Progress of research in copper bioleaching technology in China [J]. Chinese Journal of Engineering, 2019, 41(2): 143-158.
- [7] FALCO L. A comparison of bioleaching of covellite using pure cultures of *Acidithiobacillus ferrooxidans* and *Acidithiobacillus thiooxidans* or a mixed culture of *Leptospirillum ferrooxidans* and *Acidithiobacillus thiooxidans* [J]. Hydrometallurgy, 2003, 71(1/2): 31-36.
- [8] GIAVENO A, DONATI E. Bioleaching of heazlewoodite by *Thiobacillus* spp[J]. Process Biochemistry, 2001, 36(10): 955-962.
- [9] GAO Y, TONG X, FU H, et al. Advances in mechanisms and influencing factors of chalcopyrite bioleaching: a review [J]. China Metallurgy, 2025, 35(12): 32-44.
- [10] 夏庆银, 刘龙成, 牛玉清. 铀元素微生物地球化学循环研究进展[J]. 湿法冶金, 2024, 43(5): 483-488.
XIA Qingyin, LIU Longcheng, NIU Yuqing. Research advances in microbial biogeochemical cycling of uranium [J]. Hydrometallurgy of China, 2024, 43(5): 483-488.
- [11] WUFUER R, WAHEED A, PEI L, et al. Microbial interactions with uranium: mechanisms, ecosystem impacts, and bioremediation strategies[J]. Environmental Technology and Innovation, 2025, 40. DOI: 10. 1016/j. eti. 2025. 104510.
- [12] TONIETTI L, ESPOSITO M, CASCONI M, et al. Unveiling the bioleaching versatility of *Acidithiobacillus ferrooxidans* [J]. Microorganisms, 2024, 12(12). DOI: 10. 3390/microorganisms12122407.
- [13] 袁志华, 盛严武, 孙占学, 等. 铀生物浸出中 *Acidithiobacillus ferrooxidans* 与 *Acidiphilium multivorum* 菌协同效应研究[J]. 有色金属(冶炼部分), 2025(6): 140-145.
YUAN Zhihua, SHENG Yanwu, SUN Zhanxue, et al. Self-organization evolution of bioleaching process of acidithiobacillus ferrooxidans and acidiphilium multivorum[J]. Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy), 2025(6): 140-145.
- [14] XIAO L, LI S, LIU X, et al. Linked variations of bioleaching performance, extracellular polymeric substances (EPS) and passivation layer in the uranium bacterial-leaching system[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2024, 334(1): 637-651.
- [15] 袁志华, 孙占学, 刘金辉, 等. 铀矿开采及生态修复技术研究进展[J]. 有色金属工程, 2022, 12(11): 146-154.
YUAN Zhihua, SUN Zhanxue, LIU Jinhui, et al. Research progress of uranium mining and ecological restoration technology[J]. Nonferrous Metals Engineering, 2022, 12(11): 146-154.
- [16] ZHOU Z, YANG Z, SUN Z, et al. Optimization of bioleaching high-fluorine and low-sulfur uranium ore by response surface method[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2019, 322(2): 781-790.
- [17] UMANSKII A B, KLYUSHNIKOV A M. Bioleaching of low grade uranium ore containing pyrite using *A. ferrooxidans* and *A. thiooxidans* [J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2013, 295(1): 151-156.
- [18] SUN J, MA J, FANG, LI Q, et al. Role of Fe/S ratios in the enhancement of uranium bioleaching from a complex uranium ore by *Acidithiobacillus ferrooxidans* and *Acidithiobacillus thiooxidans* consortium[J]. Journal of Central South University, 2022, 29(12): 3858-3869.
- [19] 王勇, 张远琴, 但娟, 等. EDTA 络合滴定法测量高炉渣中铁(Ⅲ)和铁(Ⅱ)[J]. 冶金分析, 2017, 37(8): 49-53.
WANG Yong, ZHANG Yuanqin, DAN Juan, et al. Determination of ferric iron and ferrous iron in blast furnace slag by EDTA complexometric titration [J]. Metallurgical Analysis, 2017, 37(8): 49-53.
- [20] 胡霞, 杨爱江, 王丽, 等. 嗜酸性氧化亚铁硫杆菌对钼镍尾矿中金属浸出行为影响的研究[J]. 有色金属工程, 2022, 12(8): 70-76.
HU Xia, YANG Aijiang, WANG Li, et al. Study on leaching behavior of *Acidithiobacillus ferrooxidans* on metals in molybdenum-nickel tailings [J]. Nonferrous Metals Engineering, 2022, 12(8): 70-76.
- [21] 王大鹏, 渠光华, 孙伟. 氧化亚铁硫杆菌浸出某低品位磷矿的试验研究[J]. 矿产保护与利用, 2023, 43(2): 131-137.
WANG Dapeng, QU Guanghua, SUN wei. Experimental study on leaching of a low-grade phosphate ore with *Thiobacillus Ferrooxidans* [J]. Conservation and Utilization of Mineral Resources, 2023, 43(2): 131-137.
- [22] 曹丽娜, 陈炳辉, 苟习颖, 等. 不同条件下形成的黄钾铁矾微形貌对比研究[J]. 高校地质学报, 2019, 25(3): 333-340.
CAO Lina, CHEN Binghui, GOU Xiyang, et al. A comparative study on microtopography of jarosite formed in different conditions[J]. Geological Journal of China Universities, 2019, 25(3): 333-340.
- [23] 葛玉波, 周仲魁, 方晓骐, 等. 不同类型黄铁矿对微生物浸铀行为的影响[J]. 有色金属(冶炼部分), 2021(1): 48-55.
GE Yubo, ZHOU Zhongkui, FANG Xiaoli, et al. Effects of different types of pyrite on uranium bioleaching behavior[J]. Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy), 2021(1): 48-55.
- [24] LI Q, LIU X, MA J, et al. Bidirectional effects of sulfur-ox-

- idizer *Acidithiobacillus thiooxidans* in uranium bioleaching systems with or without sulfur by mixed acidophilic bacteria[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2023, 332(6): 1787-1794.
- [25] DENG Y, HOU W, WEI X, et al. Mechanism analysis on synergistic leaching of uranium from pyrite oxidized by *Acidithiobacillus ferrovorans*[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2021, 330(3): 951-961.
- [26] 周义朋, 沈照理, 何江涛, 等. 某砂岩型铀矿床矿石微生物浸出试验[J]. 有色金属(冶炼部分), 2014(10): 54-56.
- ZHOU Yipeng, SHEN Zhaoli, HE Jiangtao, et al. Bioleaching of uranium ore from sand-type uranium deposit [J]. Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy), 2014 (10): 54-56.
- [27] YANG B, LIN M, FANG J, et al. Combined effects of jarosite and visible light on chalcopyrite dissolution mediated by *Acidithiobacillus ferrooxidans* [J]. Science of the Total Environment, 2020, 698. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2019.134175.
- [28] HUANG J, LI X, YANG J, et al. Study on the oxidation inhibition of pyrite by 2-Mercaptobenzimidazole in the presence of *Acidithiobacillus ferrooxidans* [J]. Minerals, 2025, 15(5): 487.
- [29] 童格, 顾帼华, 王艳红, 等. 闪锌矿微生物浸出过程溶解动力学研究进展[J]. 有色金属工程, 2022, 12(6): 75-82.
- TONG Ge, GU Guohua, WANG Yanhong, et al. Research progress on dissolution kinetics in sphalerite bioleaching process [J]. Nonferrous Metals Engineering, 2022, 12(6): 75-82.
- [30] GROENINGEN N V, THOMASARRIGO L K, BYRNE J M, et al. Interactions of ferrous iron with clay mineral surfaces during sorption and subsequent oxidation [J]. Environmental Science: Processes & Impacts, 2020, 22(6): 1355-1367.
- [31] 王利, 温建康, 刘美林. 胞外聚合物对金属硫化物的生物作用[J]. 金属矿山, 2008(11): 38-42.
- WANG Li, WEN Jiankang, LIU Meilin. Biological effect of EPS on metal sulfides [J]. Metal Mine, 2008(11): 38-42.
- [32] MOURA H M, UNTERLASS M M. Biogenic metal oxides [J]. Biomimetics, 2020, 5(2): 29.
- [33] 刘玉龙, 李广悦, 王永东, 等. 氧化亚铁硫杆菌筛选及基质中 Fe^{2+} 氧化研究[J]. 矿业研究与开发, 2008(1): 38-40.
- LIU Yulong, LI Guangyue, WANG Yongdong, et al. The study on purification of *Thiobacillus ferrooxidans* and Fe^{2+} oxidation in medium [J]. Mining Research and Development, 2008(1): 38-40.
- [34] 马鹏程, 杨洪英. 生物冶金过程中黄钾铁矾的生成与抑制 [J]. 有色金属(冶炼部分), 2015(5): 1-4.
- MA Pengcheng, YANG Hongying. Formation and inhibition of jarosite in biohydrometallurgy process [J]. Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy), 2015(5): 1-4.
- [35] 赵龙, 董廷旭, 蔡春芳, 等. 砂岩型铀矿的微生物成矿作用研究述评[J]. 地质学报, 2020, 94(12): 3523-3543.
- ZHAO Long, DONG Tingxu, CAI Chunfang, et al. A review of microbial mineralization in sandstone-hosted uranium deposit [J]. Acta Geologica Sinica, 2020, 94(12): 3523-3543.
- [36] ABHILASH, SINGH S, MEHTA K D, et al. Dissolution of uranium from silicate-apatite ore by *Acidithiobacillus ferrooxidans* [J]. Hydrometallurgy, 2009, 95(1): 70-75.
- [37] HUBAU A, BRU K, OUMAROU S I, et al. Lessons learned from the upscaling of an iron bio-oxidation process to improve uranium recovery [J]. Comptes Rendus Chimie, 2025, 27(Sup. 4): 17-35.
- [38] KAKSONEN A H, LAKANIEMI A M, TUOVINEN O H. Acid and ferric sulfate bioleaching of uranium ores: a review [J]. Journal of Cleaner Production, 2020, 264. DOI: 10.1016/j.jclepro.2020.121586.
- [39] 余志波. 嗜酸铁/硫氧化菌在生物浸铀过程中的协同作用研究[D]. 南昌: 东华理工大学, 2016.
- [40] 王世俊, 周仲魁, 葛玉波, 等. 外源硫和 Fe^{3+} 对低硫铀矿生物浸出的影响 [J]. 有色金属(冶炼部分), 2021(4): 76-83.
- WANG Shijun, ZHOU Zhongkui, GE Yubo, et al. Influence of exogenous sulfur and Fe^{3+} on bioleaching of low-sulfur uranium ore [J]. Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy), 2021(4): 76-83.
- [41] 王廷健, 周仲魁, 孙占学, 等. 黄铁矿添加量对微生物浸出的影响 [J]. 有色金属(冶炼部分), 2020(7): 53-58.
- WANG Tingjian, ZHOU Zhongkui, SUN Zhanxue, et al. Effect of pyrite addition on microbiological leaching [J]. Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy), 2020(7): 53-58.
- [42] 尹升华, 王雷鸣, 潘晨阳, 等. 细粒层对浸矿表面形貌及钝化的影响 [J]. 工程科学学报, 2018, 40(8): 910-917.
- YIN Shenghua, WANG Leiming, PAN Chenyang, et al. Effect of fine interlayers on surface morphology and passivation during leaching [J]. Chinese Journal of Engineering, 2018, 40(8): 910-917.
- [43] JIA Y, RUAN R, QU J, et al. Multi-scale and trans-disciplinary research and technology developments of heap bioleaching [J]. Minerals, 2024, 14(8). DOI: 10.3390/min14080808.
- [44] 薛洪其, 杨爱江, 邓秋静, 等. 铁氧化细菌的分离及其浸出钼镍尾矿试验 [J]. 有色金属(冶炼部分), 2016(7): 17-21.
- XUE Hongqi, YANG Aijiang, DENG Qiujing, et al. Isolation of iron oxidation bacterium and bioleaching from Ni-Mo tailings [J]. Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy), 2016(7): 17-21.
- [45] RODRIGUEZ-LEIVA M, TRIBUTSCH H. Morphology of bacterial leaching patterns by *Thiobacillus ferrooxidans* on synthetic pyrite [J]. Archives of Microbiology,

- 1988, 149(5):401-405.
- [46] JIANG L, ZHOU H, PENG X. Preliminary study on bio-oxidation of pyrite by *Acidithiobacillus ferrooxidans*[J]. Acta Mineralogica Sinica, 2007, 27:25-31.
- [47] LIAO Y, ZHOU L, LIANG J, et al. Biosynthesis of schwertmannite by *Acidithiobacillus ferrooxidans* cell suspensions under different pH condition[J]. Materials Science and Engineering: C, 2009, 29(1):211-215.

Synergistic Effect of *Acidithiobacillus ferrooxidans* and *Acidithiobacillus thiooxidans* in Bioleaching of Sandstone-type Uranium Ore

LIU Chenyang^{1,2}, LIU Yajie^{1,2,3}, WANG Xuegang^{1,2,3}, ZHOU Zhongkui^{1,2,3}, WANG Jian^{1,2,3}

(1. State Key Laboratory of Nuclear Resources and Environment, East China University of Technology, Nanchang 330013, China;

2. School of Water Resources and Environment Engineering, East China University of Technology, Nanchang 330013, China;

3. Jiangxi Provincial Key Laboratory of Genesis and Remediation of Groundwater Pollution, Nanchang 330013, China)

Abstract: In-situ uranium leaching was investigated using native acidophilic ferrous sulfate oxidizing bacillus (*Acidithiobacillus ferrooxidans*, L24f) and acidophilic sulfur oxidizing bacillus (*Acidithiobacillus thiooxidans*, L24s) from sandstone-type uranium ore. In combination with physicochemical parameter monitoring and characterization techniques such as SEM-EDS and XRD, the synergistic leaching mechanism was elucidated to determine the effectiveness of synergistic leaching and the optimal inoculation ratio. The results show that L24f and L24s strains have a significant synergistic uranium leaching effect, and the inoculation volume ratio of 1 : 1 is the optimal ratio. Under this condition, the final uranium leaching rate of sandstone-type uranium ore is 86.5%, which is 7.5 percentage points higher than that of a single L24f pure bacteria system. The mixed bacterial consortium system can maintain the low pH environment of the system through complementary metabolic functions, effectively inhibit the formation of jarosite passivation layer, and significantly improve the leaching rate of uranium.

Key words: uranium; sandstone-type uranium ore; synergistic leaching; bioleaching; mixed bacteria; *Acidithiobacillus ferrooxidans*; *Acidithiobacillus thiooxidans*