

Baktériumok szerepe a mecseki uránérc keletkezésében és későbbi áthalmozásában

Virágh Károly — Szolnoki János*

(5 ábrával, 3 táblázattal)

Összefoglalás: Az utóbbi évek ásványtani, kőzettani és geokémiai vizsgálatai egyértelműen bizonyítják, hogy a mecseki uránérc-lelőhely a fejlődéstörténet különböző szakaszaiban komplex módon jött létre. A szerzők mikrobiológiai és ásványtani úton tanulmányozták a baktériumok lehetséges szerepét az uránérctelep kialakulásában.

A lelőhely különböző ércanyagából kémoautotrof kénbaktériumokat, ill. szulfátredukáló baktériumokat tenyésztettek ki. Laboratóriumi körülmények között modellkísérleteken tanulmányozták a baktériumok szerepét az uránérc ércből való kilúgozására, ill. oldatból való kicsapódására.

Mikrobiológiai és geokémiai adatok alapján arra a következtetésre jutnak, hogy a vizsgált mikrobák életműködése fontos szerepet játszott az uránérc felhalmozódásában és későbbi migrációjában. Megállapításukat az érc $U-C_{org}-S_{szulfid}$ tartalmának statisztikai vizsgálatával is alátámasztják.

A lelőhely földtani keretének áttekintése

A baktériumok geokémiai szerepét a geológusok többsége a legutóbbi időkig nem vette figyelembe. Az üledékes uránérc képződésével foglalkozó irodalom alig tesz említést a baktériumok fontos geokémiai szerepére. Általános volt a nézet, hogy az urán dúsulásában alapvető szerepet betöltő redukciós folyamatokat a szénülő növényi maradványok széntartalma-, ill. fehérjék bomlása során keletkező kénhidrogén idézik elő. Fentiek mellett előtérbe kerül a baktériumok életműködésének aktív katalizáló, redukáló szerepe is.

A mikroorganizmusok szerepét a földtani folyamatokban elsőnek Vernadskij V. I. említi. Kuznyecov Sz. I. et. al (1962) Ivanov M. V. (1964) és Zobell (1963) idevágó munkái a kőolaj ill. kéntelepek keletkezésében —, Baas Becking és Moore (1961), Temple (1964), Temple és Le Roux (1964), valamint Szolnoki J. (1966) pedig a szulfátredukáló baktériumoknak az üledékes szulfidos értelepek kialakulásában játszott szerepével foglalkoztak. Jensen M. L. (1958) a Colorado vidék kontinentális eredetű uránérctelep szulfid-minták S^{32}/S^{34} eloszlásából arra a következtetésre jutott, hogy az U-feldúsulását előidéző redukzív közeget anaerob szulfátredukáló baktériumok által termelt H_2S okozta. Adler H. H. (1963) különböző típusú északamerikai üledékes uránlelőhelyek tanulmányozása során ugyannerre a megállapításra jutott.

Perelman A. I. (1965) kiemeli a baktériumoknak fontos szerepét a hipergén folyamatokban. Holodov V. N. (1961) egy olajtartalmú mészkk epigén övességét tanulmányozva arra a megállapításra jutott, hogy a benne levő urán migrálásában a

* Előadták a Magyarhoni Földtani Társulat 1966. nov. 28-i ülésén. Kézirat lezárva 1966. XI. 28.

„biokémiai oxidáció”-nak meghatározó szerepe van. Volkova O. Ju. és Germanov A. I. (1963), valamint Germanov A. I. (1963) szerint az általuk tanulmányozott ércek oxidációja és másodlagos dúsulása a baktériumok közvetlen, vagy közvetett közreműködésével megy végbe.

Az általunk tanulmányozott uránérclelőhely kőzeteinek geokémiai arculata, az ércelelep morfológiája és ásványainak paragenetikai együttese adta a gondolatot, hogy természetes viszonyok között vizsgáljuk az urán feldúsulásának és epigén áthalmazódásának mikrobiológiai feltételeit. A vizsgálat pozitív eredménye késztetett arra, hogy a folyamat teljességének tanulmányozása érdekében laboratóriumi modellkísérlettel reprodukáljuk az urán mikrobiológiai kilúgzását majd kicsapódását.

A mecseki uránérclelőhely ásványos alkatával Kiss J. (1960, 1966) —, a genetikai kérdésekkel Barabás A., Kiss J. (1958) —, majd újabban Virágh K., Vincze J. (1967) munkái foglalkoznak.

A mecseki-hegységi mintegy 3000 m vastag perm összletben az urán szempontjából a felsőpermi zöld, zöldesszürke, változó szemcsenagyságú homokkőből és agyagos, aleurolitos közbeteleplésből álló ún. produktív, homokkőösszlet áll a tanulmányozás középpontjában. A fenti képződmények uralkodóan kvareből, földpátból és kisebb mértékben savanyú kiömlési és magmás közettörmelékéből állnak. A kőzet zöld- és zöldesszürke színét a finom eloszlású szerves anyag és a hidroszilikátok Fe^{++} -je okozzák. A produktív összlet főleg folyómedri és kevesebb ártéri üledékből áll, átmeneti geokémiai jelleggel. A produktív összlet nyugatról keleti irányba haladva lépcsőzetesen egyre mélyebb sztratigráfiai szintbe kerül, ezért heteropikus fáciesnek tekintendő. Gyakran találunk benne nyugatról keleti irányba ujjasan befogazódó szürke homokkő-közbetelepléseket és ellentétes irányba ékelődő vörös homokkő ujjas beágazásokat, lencsákat. Az összlet egészében ellentétes geokémiai viszonyokat tükröz, mely elvileg kedvező az urán ipari méretű felhalmazódására.

Az egykori permi üledégyűjtő területén szemiárid klíma uralkodhatott: a fekvés és a produktív összletben gyakran találunk néhány cm vastag kőszénlencsét, kovásodott-karbonátosodott szenes fatörzseket.

Az alpi tektogenezis folyamán a triász és jura üledékekkel fedett permi képződmények kiemelkedtek és antiklinálissá formálódtak. A boltozat ezzel a helyi erőziobázis lehorodási területévé vált a harmadidőszak teljes folyamán. Jelenleg hegyszerszerkezeti szempontból a produktív összlethez viszonyítva nyitott antiklinálissal állunk szemben, melyet törésszerű tektonikai formaelemek szabdalnak fel. A tektonikai vonalak mentén hipergén övességet figyelhetünk meg. Ez kifejezésre jut mind a kőzetek feloxidálódásában (kivörösödés) mind redukciójában (elzöldülés) a tektonikai törésvonalak és litoklázisok mentén.

Az ércek ásványos összetétele meglehetősen egyszerű. A fő ásványa az uránszurokérc és az uránkóro. Az uránszilikátok, -karbonátok, -szulfátok alárendeltek. A szulfidos kísérők közül leggyakoribb a pirít, ezenkívül galenit, kalkopirit, szfalerit, fakőérc, bornit, nikkelin is kimutatható.

A mecseki lelőhely ércfelhalmazódásával foglalkozó szerzők általában egyetértenek abban, hogy az urán leülepedésében a redukciós, az áthalmazódásban az oxidációs-redukciós folyamatok játszották a fő szerepet.

Laboratóriumi vizsgálatok, eredmények

A kitűzött cél érdekében működő bányauzemben 100—140 m mélységből sterilizált eszközökkel oxidált és redukált ércmintákat szedtünk, melyeket légmentesen zárt üvegekben laboratóriumba szállítottunk.

KL. 2281. sz. minta:

A produktív összlet felső részében, a vörös fedőhomokkő alatt 4 m-re elhelyezkedő zöld, rozsdafoltos arkózás homokkő ércanyaga. Mintavétel helye egy vízvezető vető

síkjától 8 m-re van, ahol érces szint az utólagos kilúgozódás következtében a vetősík irányában fokozatosan elmeddül.

KL. 2282. sz. minta:

Előbbi mintával azonos rétegtani helyzetű. A vetősík fekvő oldalától 15 m-re. Töredezett, mikrorepedésekkel átjárt laza rozsdafoltos érces homokkő. Oxidált típus. A repedések mentén oxidálódás figyelhető meg, a szivárgó víz pH-ja 3,5.

KL. 2283. sz. minta:

Helyileg a produktív összlet felső érces szintje, mely Ny felé fő érces szintben folytatódik. Az adott rétegben elszórta sok szenesedett kovás fatörzs és szénecsk figyelhető meg. Az érc minősége rendkívül változó. Az érc fekvőjében szürke homokkő települ. Az érc a szenesedett fatörzskérget kitöltő szürke, kovásodott aprószemű homokkőben helyezkedik el. A fatörzset is átszelő mikrorepedések mentén 5—10 cm-es elnyújtott vörös foltok találhatók.

KL. 2284. sz. minta:

A produktív összlet felső harmadában levő fő érces szint — egy köztesvörös homokkő kiemelkedésétől 10 m-re. A mintavétel helye oxidációs és redukációs mező közötti átmeneti szakasz. 2 cm vastag réteg mentén levő szénlencse körül 5—10 cm-es szürke redukációs udvar helyezkedik el. A minta a szénlencsét övező szürke középszemű homokkőből származik, redukált ércitípus.

KL. 2285. sz. minta:

Az előző mintától 40 m távolságban levő mikrorepedezett, szürkészöld, kovásodott homokkőben elhelyezkedő átmeneti (inkább redukált) ércitípus.

KL. 2286—87. sz. minta:

Mikrorepedésekkel harántolt rozsdavörös oxidált érc, a produktív összlet legfelső révéből, a vörös fedőösszlet határáról. A középszemű vörös homokkőben függőleges mikrorepedések falán uránkorom bevonatok láthatók. Nem tartozik érces szinthez, hipergén eredetű.

Mikroszkópos vizsgálat alapján megállapítható, hogy a minták uránoxid-tartalma általában kötőanyagként van jelen, vagy a kőzet elegyrészeit (kvarcporfirtörmelék és földpátok) korrodálják és részben helyettesítik. Az uránoxid többé-kevésbé egyenletesen szórt, vagy csomós elhelyezkedésű. A KL. 2286—87 sz. mintákban ezenkívül a mikrorepedések falán 0,1—0,5 mm uránkorom-bevonat figyelhető meg. Az uránoxid oxidáltsági foka O_{Fe} értékekkel megegyezően a szurokérc II—IV (naszturán) között változik. A redukált ércitípusokban a szulfidok (pirit, galenit, fakóérc, szfalerit, nikkelin) és az uránoxidok szoros paragenetikai együttest alkotnak. A litoklázisok felületén megjelenő uránkorom kétségtelenül epigén.

Az ércmintákból kémiai (U p o r E.) és radiológiai (V a d o s I.) vizsgálatokat végeztettünk, melyek eredményeit az I. táblázat tartalmazza.

I. táblázat

Minta jele száma	Össz. Fe%	O_{Fe} $\left[\frac{2Fe_2O_3}{FeO} \right]$	Corg %	S%	SO ₂ %	Ra/U egység
KL 2281	1,55	2,20	0,18	0,33	0,33	1,14
KL 2282	2,38	5,60	0,23	0,42	nyom	1,08
KL 2283	1,88	0,10	1,80	1,60	0,92	0,98
KL 2284	1,66	0,24	1,60	5,80	0,41	0,92
KL 2285	1,27	1,40	0,59	—	—	1,58
KL 2286	9,53	14,90	0,17	0,20	nyom	1,01
KL 2287	14,42	26,40	0,10	0,06	nyom	1,06

Steril körülmények között vett és kezelt mintákból S z o l n o k i J. (1965) baktériumokat tenyésztett ki, melyek eredményeit a II. sz. táblázatban foglaltuk össze.

II. táblázat

Minta jele száma	Érc típusa	Baktériumszám/g kőzet	
		Kémoautotrof kénbaktériumok	Szulfát redukálók
KL 2281	oxidált	11 500	0
KL 2282	oxidált	9 000	0
KL 2283	redukált	< 100	9 500
KL 2284	redukált	< 100	12 000
KL 2285	átmeneti	3 500	< 100
KL 2286	oxidált	7 500	0

A táblázatokból egyértelműen kitűnik, hogy a mintákból kitenyésztett baktériumok oxidáló vagy redukáló jellege jól egybevághat a kőzetek oxidáltsági fokát kifejező O_{Fe} értékekkel.

Az I-II. táblázat adataiból szintén megállapítható, hogy a szulfátredukáló baktériumok életműködéséhez szükséges szervesanyag a kőzetben jelen van. A szulfátredukáló baktérium tartalmú mintákban mutatható ki a legnagyobb $C_{org}+$ szulfidtartalom, és itt mutatható ki a legkisebb O_{Fe} érték.

Kísérleteket végeztünk az urán kilúgozására a lelőhely érceiből. Az őrlött mintához Szolnoki J. 3,5 pH-s tápoldatot adott, majd beoltotta a *Thiobacillus ferrooxidans* tenyésztéssel. Szobahőmérsékleten 21 napon keresztül rázatuk. A kísérlet befejeztével meghatározottuk az érceben visszamaradt uránkoncentrációt.

A III. táblázatból látható, hogy a *Th. ferrooxidans* hatására az érc urántartalmának jelentős része oldatba ment. Különösen jelentős volt a baktériumos uránkilúgozás a redukált típusú ércekben, ami arra utal, hogy a baktériumok intenzíven oxidálták az érc szulfidkomponenseit.

III. táblázat

Minta jele	Érc típusa	Végző pH	Oldatba ment U%
KL 2282	oxidált	4,5	23,55
KL 2283	redukált	3,0	72,02
KL 2284	redukált	3,5	69,27
KL 2286	oxidált	4,0	30,19

Laboratóriumi kísérleteket végeztünk az uránnak oldatból való kicsapására és a kísérleti agar-agar oszlopban való feldúsítására szulfátredukáló baktériumok segítségével. A kísérleti edény üvegeső volt, melynek középső részén 3 %-os vizes agar oszlopot helyeztünk el. A kísérleteket két különböző agar oszloppal végeztük, az egyikben $CaCO_3$ réteg is volt, a másikban nem. Az agar oszlop alatti teret Na-laktátot tartalmazó tápoldattal (Skermán, 1959) töltöttük meg, beoltottuk *Desulfovibrio* tenyésztéssel és gumidugóval zártuk. Az agar oszlop fölé 0,5%-os urános oldatot tettünk, mely az agar oszlopban lefelé diffundált, míg az oszlop alatti térben anaerob körülmények között, a szulfátredukáló mikrobák által képzett H_2S az agar oszlopban fölfelé hatolt. Ahol az uránoldat és a H_2S az agar oszlopban találkozott, az urán redukálódott, kicsapódott, feldúsult réteges elszíneződés alakjában. A kísérlet 60 napig tartott szobahőmérsékleten. Ezt követően az agar oszlopot a csőből kitöltük, a színes rétegeknek megfelelően felszeleltük és az egyes rétegekben meghatároztuk az urán mennyiségét. Az agar oszlopok sematikus rajzát, az egyes rétegeket és az U%-os eloszlását a rétegekben, az 1. ábrán mutatjuk be.

A szulfátredukáló baktériumok által termelt H_2S hatására az urán az agar oszlopban rétegesen dúsult fel. Mindkét agar oszlop esetében a sárga színű rétegben volt a legnagyobb dúsulás. A $CaCO_3$ réteg U-tartalma jelentéktelen.

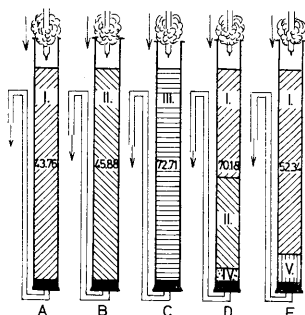
Agar-oszlop	Össz U eloszlása %	Agar-oszlop	Össz U eloszlása %
Br	3,21	Sz	3,9
S	79,04	S	92,12
V-Br	6,49	Sz	3,91
V	0,8	Szü	0
V-S	9,32		
V-Br	0,71		
Sz	0,43		

1. ábra. Kicsapódott urán %-os eloszlása az agar-agar oszlopokban. Jelmagyarázat: Br = barna, S = sárga V-S = világossárga, V-Br = világosbarna, Sz = színtelen, F = fehér, Szü = szürkés
Fig. 1. Répartition en % de l'uranium précipité dans les colonnes agar-agar. Légende: Br = brun, S = jaune, V-S = jaune clair, V-Br = brun clair, Sz = incolore, F = blanc, Szü = grisâtre

Laboratóriumi kísérleteket végeztünk az uránnak mikrobiológiai úton való feldúsítására homok oszlopokban. A kísérleti berendezés előzőhöz hasonló üvegeső volt, melyet előzetesen savazott és mosott homokkal, ill. homok és egyéb anyagok keverékével töltöttünk meg és biztosítottuk, hogy bár az oszlopon folyadék áramlott keresztül, az oszlop alsó részében anaerob viszonyok uralkodjanak (2. ábra). Az oszlopokat *Desulfovibrio* tenyésztéssel oltottuk be. Az oszlopokon olyan oldatot áramoltattunk át folyamatosan, mely literenként 1 g Na_2SO_4 -ot és 1 mg U-t tartalmazott, $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ formájában. Az átfolyás sebessége kb. 30 ml/nap volt. A kísérlet 30 napig tartott. Mértük a kifolyó oldat urántartalmát, ebből megállapítottuk az oszlopban visszamaradt mennyiséget és vizsgáltuk a kifolyó oldat baktérium-tartalmát. Az eredményeket a 2. ábrán közöljük.

Az oszlopokba írt számok a visszamaradt U %-t jelentik, az átáramoltott uránmennyiséget 100 %-nak véve. Azokban az oszlopokban, amelyek szerves anyagot is tartalmaztak (C, D, E) lényegesen nagyobb % urán maradt vissza, mint ott, ahol szerves anyag nem volt (A, B). Ezenfelül a szerves anyagokat is tartalmazó oszlopokon átfolyó oldatokban a kísérlet egész tartama alatt nagyszámú szulfátredukáló baktérium volt kimutatható, míg az első két oszlopon

átfolyó oldatban ezek nem voltak. Tehát a kísérletekkel bizonyítottnak vehető, hogy anaerob viszonyok mellett, szerves anyag jelenlétében szulfátredukálók hatására az urán egy része az oldatból kicsapódott és az oszlopokban felgyűlt.



2. ábra. Modellkísérletek vázlatjai az urán kicsapására homokoszlopokban. Jelmagyarázat: I = homok
 II = homok + 10% CaCO₃, III = homok + 10% bitumenes mészkő, IV = Sphagnum, V = bitumenes mészkő
 Fig. 2. Esquisses d'expériences de modèle pour la précipitation de l'uranium dans des colonnes de sable. L'échelle:
 I = sable, II = sable + 10% de CaCO₃, III = sable + 10% de calcaire bitumineux, IV = Sphagnum, V = calcaire bitumineux

A homokoszlopból vett mintaanyagot mikroszkóp alatt tanulmányoztuk. A mintát műanyagba ágyazva ércsiszolatot állítottunk elő. A felületi csiszolatban az uránoxid kiválása nem tanulmányozható, szemcséinek $< 1 \mu$ mérete miatt. Ezzel szemben 0,5–0,7 mm-es ovális és kerekded koncentrikus felépítésű kiválások figyelhetők meg a homokszemcsék között. Ezek külső gyűrűje nem polarizálható, központi magja is rosszul. A központi magban néhány μ nagyságú nagyobb reflexiójú szulfidszemcse, feltehetően pirit helyezkedik el, amelyet hidrotroilit, melnikovit (?) övez. Ebből áll a homokoszlop sötétszürke színeződésű anyaga is. U p o r E. a kísérletekhez felhasznált homokban 0,05 % szulfidként mutatott ki. Tehát a kolloidális vasszulfid a beágyazó homokban levő szórt szulfidszemcsék körül mint kristályos mag körül koncentrikusan vált ki. A képletek külső gyűrűje feltehetően hidratált uránoxidok kiválásából áll.

A mennyiségi és minőségi mikrobiológiai vizsgálatok során igazolódott, hogy a redukáló és oxidáló mikroorganizmusok a bányában is élnek. A redukált ércekből *Desulfovibrio desulfuricans* az oxidált ércekből *Thiobacillus* genushoz tartozó mikroorganizmusokat sikerült kimutatni. A *Thiobacillus* genushoz tartozó mikroorganizmusok életműködése oxigéndús savas közegben (pH 0,5–5) lehetséges. Mint katalizátor szerepel a vasszulfid savas közegben történő oxidációjában.

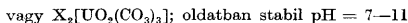
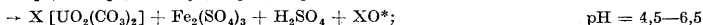
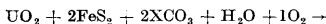
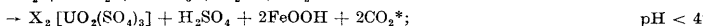
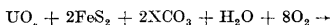
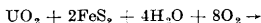
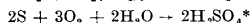
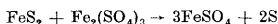
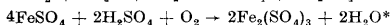
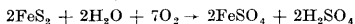
A *Desulfovibrio desulfuricans* anaerob körülmények között él. Szerves anyaggal táplálkozik, életműködése során a szerves anyagot lebontja és a szulfátokat redukálja, eközben H₂S keletkezik.

A baktériumoknak a hőmérséklettel szemben tanúsított viselkedésére kevés adat ismeretes. Z o b e l l és munkatársai (1963) hivatkoznak olyan irodalmi forrásra, mely szerint anaerob baktériumok elterjedten tenyésznek olyan környezetben, melynek hőmérséklete 45-től 85 C°-ig terjed.

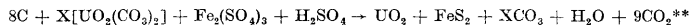
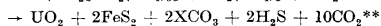
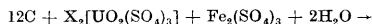
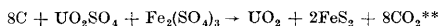
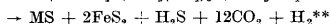
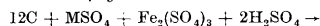
Irodalmi adatok alapján a nyomásnak alárendelt jelentősége van a baktériumok életműködésére. J e n s e n (1958) szerint 5000 m mélységben a tengeri iszapban is kimutatható baktérium. Anaerob baktériumokat találtak több ezer m mélységben a kőolajkutakban és sódóмок fölötti kőzetekben. Mindez bizonyítja, hogy sem hidrosztatikus nyomás, sem annak erős csökkenése nem befolyásolja a baktériumok életképességét.

A mikroorganizmusok katalizáló szerepe a mi viszonyaink között az alábbiakban sematikusan felírt kémiai reakciókban nyilvánulhat meg:

Oxidációs folyamatok



Redukciós folyamatok



Esetünkben M = Fe; Cu; Pb; Zn; Ni; és X = K; Na; Mg; Fe.

*-al jelölt reakciókban katalizáló szerepet játszik a *Thiobacillus ferrooxidans*;

**-al jelölt reakciók a *Desulfovibrio desulfuricans* életműködése folytán mennek végbe.

Az ércek $\text{U}-\text{C}_{\text{org}}-\text{S}_{\text{szulfid}}$ eloszlásának statisztikai vizsgálata

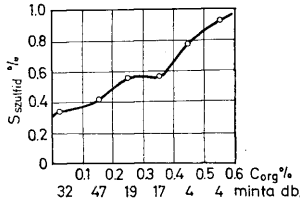
Virágh K. és Vincze J. (1967) rámutatnak, hogy az uránoxid és piritzemcsék halmaza egyidejű kialakulásra utal azzal, hogy a pirit az U_3O_8 -t némileg megelőzi. Továbbá ismeretes, hogy a legnagyobb uránkoncentráció a

szenesedett fatörzsek és szénlencsék körül található. A kőszén maga U-t alig tartalmaz.

Mivel az U-redukcióját ($U^{6+} \rightarrow U^{4+}$) egyes szerzők az elemi szén hatásával magyarázzák, megvizsgáltuk az urán és C_{org} , valamint az urán és $S_{szulfid}$ korrelációját.

Először is vegyük vizsgálat alá az $S_{szulfid}$ és C_{org} összefüggését. Több mint 120 adatpárt dolgoztunk fel statisztikailag úgy, hogy a C_{org} növekvő koncentrációja szerint rendeztük a hozzátartozó $S_{szulfid}$ értékeket.

Az összefüggést kifejező görbéből megállapítható, hogy a C_{org} növekedésével gyakorlatilag egyenes arányban nő a kőzet $S_{szulfid}$ tartalma. Ez a tény megfelel annak a kiindulásnak, hogy a szulfidok ott képződhetnek bakteriológiai úton, ahol C_{org} jelen van a kőzetben.

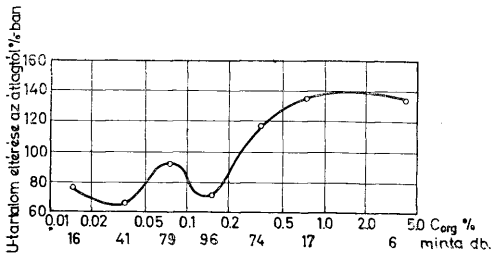


3. ábra. Mecseki uránércok $S_{szulfid}$ és C_{org} -tartalmának összefüggése (Virágh K, 1966).

Fig. 3. Corrélation entre les teneurs en $S_{szulfid}$ et C_{org} des minerais d'uranium de la Montagne de Mecsek (K. Virágh, 1966)

A továbbiakban a kérdés az, hogy a C_{org} , vagy az $S_{szulfid}$ mutat-e szorosabb korrelációt az U-nal. Az U és C_{org} -tartalom összefüggésének tisztázására 329 adatpárt értékeltünk ki. Az U-t a C_{org} -tartalom növekvő sorrendjében rendeztük. Mivel az érceben a szórt C_{org} -tartalom három nagyságrendet ölel fel, (0,01—7%), az egyes koncentrációtartományok határát közelítően 10-es alapú logaritmusos beosztás szerint vettük fel és az U-tartalmakat ezen tartományokon belül átlagoltuk. A függőleges tengelyen jelölt 100%-os érték a lelőhely átlagának felel meg.

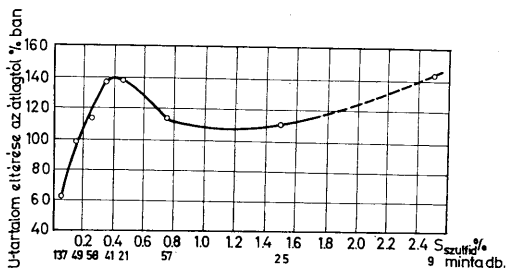
A 4. ábra alapján a C_{org} növekedéséhez növekvő uránátlag csatlakozik. Részleteiben megállapíthatjuk, hogy 0,2% C_{org} alatt gyakorlatilag nincs összefüggés



4. ábra. Mecseki uránércok urán- és C_{org} -tartalmának összefüggése (Virágh K, 1966)

Fig. 4. Corrélation entre les teneurs en U et en C_{org} des minerais d'uranium de la Montagne de Mecsek (K. Virágh, 1966)

a két tényező között. Ezen érték felett az urántartalom határozottan növekvő tendenciájú, de nem lineáris. Tehát a C_{org} - és az urántartalom között csak az átlagértékek felett mutatkozik korreláció. Ez a részleges korreláció arra utal, hogy az esetek többségében az urán redukálásában a C_{org} -nak közvetett szerepe van, tehát keresnünk kell olyan összefüggést, mely az urántartalom növekedésének közvetlen előidézője. Megvizsgáltuk, hogy a H_2S mint redukálószer milyen mértékben gyakorol hatást az urán koncentráldására. A kérdés



5. ábra. Mecseki uránércek urán- és $S_{szulfid}$ -tartalmának összefüggése (V i r á g h K., 1966)
Fig. 5. Corrélation entre les teneurs en U et en S_{sulf} des minerais d'uranium de la Montagne Mecsek (K. Virágh, 1966)

megközelítése az urántartalom és az $S_{szulfid}$ -tartalom összefüggésének vizsgálatán keresztül lehetséges. Közel 400 adatpárt vettünk statisztikus vizsgálat alá. A feldolgozás eredményét az 5. ábrán tüntettük fel.

Az 5. ábrából egyértelműen megállapítható, hogy 0,4 %-os $S_{szulfid}$ tartalom növekedéséig az urántartalom gyakorlatilag egyenes arányban nő. Az urántartalom eközben a lelőhely átlagos tartalmának közel 140%-át éri el. A 0,4 $S_{szulfid}$ -tartalom felett a függvény-kapcsolat megszakad és a független változó növekedése ellenére az átlagos urántartalomban kifejezett függő változó átlagértékei csökkennek és csak 1%-os $S_{szulfid}$ -tartalom felett kezdődik újabb növekedés. Ezt úgy értelmezhetjük, hogy a H_2S mint redukálószer a 0,4% $S_{szulfid}$ értékig egyenesen befolyásolja az uránnak redukció útján történő kicsapódását, ezen érték felett a kénhidrogén túlsúly az urántartalom növekedésére nem gyakorolhatott közvetlen hatást. Ha tekintetbe vesszük, hogy a 0,4% $S_{szulfid}$ -nál kisebb értékeket tartalmaz az uránércek közel 3/4 része, további bizonyítás nélkül is beláthatjuk, hogy a kénhidrogén mint legfontosabb redukálószer játszott szerepet az uránércek döntő többségének kicsapódásában.

Földtani és geokémiai értelmezés

Az előzőekben vázolt földtani keret, ásványos együttes, a modellkísérletek, valamint a statisztikai vizsgálatok eredményei tükrében a baktériumok szerepét a lelőhely fejlődéstörténetének egyes nagy szakaszaiban az alábbiak szerint értelmezhetjük.

A szemiariid klíma folyóvíze (Evszeeva L. Sz., Perelman A. I. 1962) oxidatív jellegű, pH-ja semlegestől lúgosig változik. Ebben a közegben az urán komplex uránilkarbonát — $[\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2]^{4-}$; $\text{UO}_2(\text{H}_2\text{O})_{1-2}$; uránhidroxid — $\text{UO}_2(\text{OH})^+$, valamint uránhidroxid szőlök kolloid aggregátumaiban — $[\text{UO}_2(\text{OH})_2]_n$ szállítható.

A mecseki lelőhely üledékfelhalmozódása idején, az üledékképződés során a pangó felszíni vizekben az urán leüleptítőjeként egyaránt szerepet játszhatott a szerves anyagokhoz való adszorpció, U-szerves vegyületek képződése, továbbá az uránhidroxid polimerizált ionjainak és kolloid aggregátumainak koagulációja és együttüledése adszorbens agyagásványokkal, kovasavval.

A diagenézis állapotában levő folyami üledékekbe beszivárgó urántartalmú oldatokból az urán többféle hatásra válhat ki. Itt egyaránt lejátszódhat kénhidrogénes és kénhidrogén nélküli (gléjes) redukció. A gléjesedést oxigéntől mentes földalatti vizek okozzák, melyben az anaerob baktériumok életműködéséből származó CO_2 és CH_4 , valamint szerves savak lehetnek. A baktériumok az oxigént elvonják azokból a különböző ásványos oldatokból, melyekben változó vegyértékű elemek vannak, így azok redukálódva kicsapódnak a szilárd fázisban. Uralkodó a kénhidrogénes redukció, a szulfátredukáló baktériumok életműködéséhez minden előfeltétel biztosítva volt.

A diagenézis első szakaszában levő folyami üledékeket időnként még külső (aerációs) behatások érték, melyek részleges feloxidálódást hoztak létre. A szerves anyag bomlása és a szerves savak jelenléte az eredetileg semleges-lúgos közeget savanyúvá változtatja (savanyú oxidáció). Az oxidatív hatások megszűntével fokozatosan általánossá válik a redukció, az urán üledékbe jutása.

A folyami üledékek külső hatásoktól való elzáródása után, a diagenézis második szakaszában intenzíven fejlődik a karbonátos gléjes*(kénhidrogén nélküli) redukció. A karbonátos közegben az uránilkarbonátionok CO_2 jelenlétében meglehetősen stabilak. Tehát az urán kicsapódásában a kénhidrogénes redukciót kell előtérbe helyezni. A szerves anyagot a betemetett növényi maradványok szolgáltatták, a szulfátion a szemiariid klíma folyóvizéből maradt vissza a még laza üledék pórusvizében (mely helyenként erősen feldúsulhatott a diagenézis első szakaszában). A képződő bakteriogén H_2S erős redukáló hatására a pórusvizekben levő urán üledékbe jutott, melyben szerepet játszott a Fe^{2+} is.

Sztrahov N. M. (1960—62) szerint értelmezett ktagenezisben lejátszódó mikrobiológiai folyamatok egyenes folytatásai a diagenézis biológiai folyamatainak. A mikrobiológiai folyamatoknak csak a hőmérséklet szab határt. Mai ismereteink szerint aligha képzelhető el, hogy a mecseki perm összlet ktagenezisének végső szakaszában — amikor is 150°C körüli hőmérséklet uralkodhatott — a mikrobiológiai folyamatok töretlenül tovább fejlődtek. A ktagenezis során tehát nem a döntő szerepet játszották az urán mobilizálódásában és kicsapódásában.

A mecseki perm produktív összletének hipergén fejlődési szakaszában a mikrobiológiai folyamatok újból nagy szerepet játszanak. Erről tanúskodik az, hogy a bányászkodás alatt álló ércetekből vett mintákból kémoautotrof kénbaktériumokat és szulfátredukáló baktériumokat sikerült kitenyészteni.

A *Thiobacillus ferrooxidans* életműködése számára szükséges savanyú közeg

* gléj — irodalmi használatba átvett ukrán szó — mocsarakban és folyókban leülepedett kélesszürke, vagy zöldes agyag.

kialakulását lehetővé teszi az, hogy a diagenezis során még pórúsoldatokban levő karbonátok a katagenézis során konkrétciókba és karbonátos kötőanyagba differenciálódtak és így kisebb-nagyobb távolságra a szulfátos oldatok migrálása is lehetővé válhatott. Azonban 4 fölötti pH értéknél az uranilszulfát komplex anion elbomlik és CO_3^{2-} jelenlétében uranilkarbonát komplex képződik; CO_2 jelenlétében az $[\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3]^{4-}$ oldatban marad $\text{pH} = 11$ -ig.

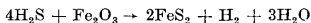
A vetők és repedésekkel átjárt övek mentén a nagyobb mélységben és más megfelelő helyen különböző típusú reduktív folyamatok játszódnak le, következőképpen az oldatba került urán újból kicsapódik.

A permi homokkőben a gléjes reduktió is kifejezésre jut. Bányában gyakran megfigyelhető, hogy a vörös homokkőben levő kőzetrések mentén gyakran a vörös kőzetanyag a Fe^{3+} redukálódása miatt kiszöldül. Gyakran látunk olyan jelenségeket, amikor a repedésekkel átjárt részekben a kőzet teljesen redukálódik és csak kisebb-nagyobb tömbök belsejében lehet megfigyelni a vörös szín relikttumát.

Szerves anyag jelenlétében anaerob körülmények között *Desulfovibrio* genushoz tartozó mikroorganizmusok életműködése kénhidrogéntermelést eredményez. Megállapítható, hogy a lelőhelyünkön a legnagyobb urándúsulások széncsikok és szenesedett fatörzsek közelében a reduktív udvarokban lépnek fel. Tehát az előzőekben részletezett kísérletek és statisztikai vizsgálatok alapján megállapíthatjuk, hogy a H_2S mint redukálószer döntő szerepet játszott az uránérc kialakulásában.

A kénhidrogén mint hatásos redukálószer a homokkő pórusaiban vándorol, így olyan helyeken is biztosíthatja a reduktiót, ahol hiányzik a szerves anyag. Így tehát nemcsak azok a szulfidok vezethetők vissza a szulfátredukáló baktériumok életműködésének tevékenységére, melyeknek ún. „bakteriopirit” megjelenése van, hanem azok a szulfidásványok is, melyek epigén módon keletkeztek (pl. CuFeS_2 stb.).

Itt említjük, hogy a kénhidrogénes reduktió folyamán egy még hatásosabb redukálóanyag, nascens hidrogén is szerepet játszik (Jensen M. L. 1958.) az alábbi egyenlet szerint:



Felvetődik a kérdés, hogy az üledékes környezetben a szulfátreduktió nem mehet-e végbe abiotikus úton is. Erre a felelet negatív, mert a szulfátok ilyen reduktója csak 500 C° feletti hőmérsékleten történik (Adler H. H. 1963), mikrobiológiai úton pedig szobahőmérsékleten is végbemegy.

Irodalom — Bibliographie

- Adler, H. H. (1963): Concepts of genesis of sandstone-type uranium ore deposits. *Econ. Geol.* 58, p. 839–852. — Baas Becking, L. G. M. — Moore, D. (1961): Biogenic sulfides. *Econ. Geol.* 56, p. 259–272. — Barabás, A. — Kiss, J. (1958): La genèse et le caractère petrographique sedimentaire de l'enrichissement de minerais d'uranium dans la Montagne Mecsek. *Acta de la deuxième Conf. Intern. des Nat. Unies, Geneve* — Barabás, A.: — Virag, K.: (1963): Механизм образования осадочных урановых руд на примере мечацкого месторождения. *Питология и полезные ископаемые*. 2. p. 143–145. — Евсеева, И Перельман А. И. (1962): Геохимия урана в зоне гипергенеза. Госатомиздат. Москва — Harrison, V. F. — Gory, W. A. — Ivarson, K. C. (1966): Leaching of uranium from Elliot Lake ore in the presence of bacteria. *Canadian Mining Journal* 87, p. 64–67. — Harrison, V. F. — Gory, W. A. — Hughson, M. R. (1966): Factors influencing the application of bacterial leaching to a Canadian uranium ore. *Journal of metals*. 11, p. 1189–1194. — Иванов, М. В. (1934): Значение микробиологии в ких процессов в генезисе месторождений самородной серы. *Наук. Москва* — Jensen, M. L. (1958): Sulfur isotopes and the origin of sandstone-type uranium deposits. *Econ. Geol.* 5. — Кизнецов, С. И. — Иванов, М. В. — Ляликова, Н. Н. (1952): Введение в геологическую микробиологию, Акад. Наук. Москва—Miller, R. P.—Napier, E.—Audsluy,

- A. — Daborn, G. R. (1963): Natural leaching of uranium ores. *Trans. Inst. Mining a. Metallurgy*, 72., p. 217—254. — Передман, А. И. (1965): Геохимия эпигенетических процессов. Недра. Москва—Скелтап, V. B. D. (1959): A guide to the identification of the genera of bacteria. Williams et Wilkins, Baltimore — Szolnoki, J. — Boguár, L. (1964): Experiments on the biogenic oxidation of some sulphide ores. *Acta Geol.* 8., p. 179—187. — Szolnoki, J. (1966): Role of the sulphate-reducing bacteria in the formation of secondary sulphide ore deposits. *Acta Geol.* 10., p. 319—324. — Szolnoki, J. — Virágh, K. (1966): Role of the bacteria in the formation of sedimentary uranium ore sites deposited in sandstone. *Abstr. IX. Intern. Congr. f. Microbiol. Moscow.*, p. 333. — Стрхов, Н. М. (1960—62): Олномы теории литогенеза. *Ав. Наук СССР. Москва — Темпле, К. Л. (1964): Syngensis of sulfide ores: an evaluation of biochemical aspects. Econ. Geol.* 59., p. 1473—1491. — Temple, K. L. — Le Roux, N. W. (1964): Syngensis of sulfide ores: desorption of adsorbed metal ions their precipitation as sulfides. *Econ. Geol.* 59., p. 647—655. — Virágh K. — Vincze J. (1967): A mecseki-uránérclelőhely képződésének sajátosságai. *Földt. Közl.* 97., p. 39—59. — Zobell, C. E. (1963): Organic geochemistry of sulfur. *Organic geochemistry. Intern. Ser. of Monogr. on Earth Sci. Pergamon. Oxford.* 16. — Холодов, В. И. и др. (1931): Об эпигенетической зональности уранового оруденения в нефтеносных карбонатных породах. *Иль, АН. СССР. сер. геол.* 11.

Le rôle des bactéries dans la gerèse et la réaccumulation du minerai d'uranium de la Montagne de Mecsek, (Hongrie)

K. Virágh — J. Szolnoki

Les études pétrographiques, minéralogiques et les recherches géochimiques complexes des années récentes prouvent, d'une manière inéquivoque, que le gisement de minerai d'uranium dans la Montagne Mecsek représente le produit complexe de processus ayant eu lieu dans les différentes phases géologiques. Les auteurs ont étudié par des moyens microbiologiques et minéralogiques le rôle éventuel des bactéries dans la genèse du gisement de minerai d'uranium.

En utilisant de différents échantillons de minerai du gisement, on a obtenu des cultures de bactéries réductrices de soufre chimico-autotrophiques et respectivement de sulfate, en dépendance du potentiel d'oxydo — réduction. A l'aide d'expériences de laboratoire on a étudié le rôle des bactéries dans le lessivage d'uranium du minerai, resp. dans sa précipitation de la solution.

On a fait des recherches statistiques sur la corrélation des teneurs en U et en sulfides de C_{org} -S des minerais.

Après avoir examiné l'évolution historique du gisement à la lumière des données microbiologiques, géochimiques, minéralogiques et statistiques, on a abouti à la conclusion que les activités biologiques des bactéries examinées avaient joué un rôle décisif dans l'accumulation et aussi dans la redéposition ultérieure du minerai d'uranium et, globalement, dans la formation de l'aspect minéralogique actuel du gisement.