



Bundesministerium
für Umwelt, Naturschutz
und Reaktorsicherheit

SCHRIFTENREIHE REAKTORSICHERHEIT UND STRAHLENSCHUTZ

**METHODISCHE WEITERENTWICKLUNG DES LEITFADENS
ZUR RADIOLOGISCHEN UNTERSUCHUNG UND BEWERTUNG
BERGBAULICHER ALTLASTEN UND ERWEITERUNG DES
ANWENDUNGSBEREICHES**

BMU - 2005-672



WIR STEuern UM AUF ERNEUERBARE ENERGIEN.

BMU – 2005-672

**„Methodische Weiterentwicklung des Leitfadens zur
radiologischen Untersuchung und Bewertung
bergbaulicher Altlasten und Erweiterung des
Anwendungsbereiches“**

G.E.O.S. Freiberg Ingenieurgesellschaft mbH

Gewerbepark „Schwarze Kiefern“

Postfach 1162

09581 Freiberg

IMPRESSUM

Dieser Band enthält einen Abschlussbericht über ein vom Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) gefördertes Vorhaben. Verantwortlich für den Inhalt sind allein die Autoren. Das BMU übernimmt keine Gewähr für die Richtigkeit, die Genauigkeit und Vollständigkeit der Angaben sowie die Beachtung privater Rechte Dritter. Der Eigentümer behält sich alle Rechte an der weiteren Nutzung oder Vervielfältigung des Berichts vor.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der des BMU übereinstimmen.

Herausgeber:

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit

Referat RS I 2

Postfach 12 06 29

53048 Bonn

ISSN 1612-6386

Erscheinungsjahr: 2005

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis.....	5
Tabellenverzeichnis.....	6
1 Einleitung	7
2 Hinterlassenschaften des Uranbergbaus als potentielle Lebensräume für Mikroorganismen.....	9
2.1 Allgemeine chemische und physikalische Parameter	9
2.2 Geochemisches Verhalten von Radionukliden.....	10
2.2.1 Uran.....	10
2.2.2 Thorium.....	12
2.2.3 Radium	12
2.2.4 Blei.....	13
2.3 Bedeutung der organischen Substanz auf das Migrationsverhalten von Radionukliden.....	14
2.4 Allgemeine Voraussetzungen für mikrobielle Aktivität.....	16
3 Mikrobielle Populationen in Bergbauhinterlassenschaften.....	17
3.1 Mikroorganismen in Halden.....	18
3.2 Mikroorganismen in IAA's und Tailings bzw. Aquiferen	21
3.3 Kurzbeschreibung einiger Gattungen aus den verschiedenen Standorten.....	25
3.3.1 Chemolithotrophe Mikroorganismen	25
3.3.2 Sulfat reduzierende Bakterien (SRB)	26
3.3.3 Denitrifikanten.....	27
3.3.4 γ - Proteobakterien.....	27
4 Wechselwirkungen von Mikroorganismen mit Schwermetallen/ Radionukliden	28
4.1 Qualitative Aussagen.....	28
4.2 Bakterielle Laugung.....	31
4.3 Mikrobielle Anteil an biogeochemischen Migrationsprozessen.....	33
4.4 Bewertung des mikrobiellen Beitrags zur Freisetzung radioaktiver Stoffe.....	39

Abschlussbericht

4.4.1	Bewertung des mikrobiellen Beitrags zur Freisetzung radioaktiver Stoffe an Standorten mit pH- Werten im Sickerwasser >6	41
4.4.2	Bewertung des mikrobiellen Beitrags zur Freisetzung radioaktiver Stoffe an Standorten mit pH- Werten im Sickerwasser <4,5	48
4.5	Einfluss von Mikroorganismen auf verschiedene Radionuklide	50
4.5.1	Blei.....	50
4.5.2	Thorium.....	51
4.5.3	Radon	51
5	Anregungen zum Leitfaden für die Modellierung des Wasserpfads.....	52
5.1	Modellierung des Wasserpfades im Leitfaden	52
5.2	Vergleich mit anderen Leitfäden und Prüfung der Handlungsanleitung.....	52
5.3	Ziel der Modellierung und Fachdetails	54
5.3.1	Freisetzungsmechanismus.....	54
5.3.2	Aerationszonenmodellierung.....	59
5.3.3	Parameteridentifikation.....	60
6	Methodik zur Abschätzung mikrobieller Parameter für die Modellierung	61
7	Empfehlungen und Ableitung von weiterführenden Arbeiten	67
8	Zusammenfassung.....	69
9	Glossar.....	72
10	Quellen.....	74

Abschlussbericht

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1:	Natürlicher Urankreislauf nach Boyle [Boyle1982].....	11
Abbildung 2:	Bodenprofil mit Horizonten, [Hypersoil2004].....	14
Abbildung 3:	Gattungsvielfalt in radioaktiv belasteten Böden (Angaben in % nach Häufigkeit der Nennung in der Literatur, Quellen siehe Anhang 1)	17
Abbildung 4:	Verteilung von bakteriellen Klassen in verschiedenen Standorten der Urangewinnung (nach [Geißler2003]).....	23
Abbildung 5:	Wechselwirkungen zwischen Mikroorganismen und Schwermetallen	29
Abbildung 6:	Eisen- und Schwefelzyklus nach [Amils2003].....	35
Abbildung 7:	Mikrobielle Eisensulfidoxidation unter Berücksichtigung der Umgebungsbedingungen nach [LeRoux 1980]	36
Abbildung 8:	Reaktion zur Freisetzung von Uran (M ...Metall).....	37
Abbildung 9:	Uranfreisetzung an verschiedenen Messpunkten der Wismut SDAG.....	42
Abbildung 10:	Mikrobielle Prozesse im neutralen bis basischen pH- Bereich	44
Abbildung 11:	Konzentrationsverlauf von Uran, DOC und HCO ₃ ⁻ bei einem Übergangszustand in den reduzierenden Bereich und der Bildung von sulfatreduzierenden Mikroorganismen.....	45
Abbildung 12:	Mögliches Ablaufschema für die Analysen zur Bestimmung der mikrobiellen Aktivität	66

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1:	Bewertungskriterien für das Freisetzungsverhalten von Radionukliden.....	10
Tabelle 2:	Mikroorganismen in Uranhalden nach [Selenska-Pobell02].....	20
Tabelle 3	pH, Eh und Zusammensetzung der Tailing- Proben nach [Scheinost2004].....	22
Tabelle 4:	Reduktive Metallfällung durch Mikroorganismen.....	31
Tabelle 5:	Mikroorganismen, die die Laugung von Metallen aus Erzen fördern [Ehrlich86].....	32
Tabelle 6:	Abfolge von Reaktionen im Boden in Abhängigkeit vom Eh-Wert.....	36
Tabelle 7:	Zusammenstellung von Freisetzungs- und Immobilisierungsraten	40
Tabelle 8	Zusammensetzung des Frei-, Poren- und Sickerwassers.....	43
Tabelle 9:	Veränderung der Zusammensetzung des Flutungswassers der Grube Pöhla Tellerhäuser	47
Tabelle 10:	Mikrobiell katalysierte Freisetzung von Uran bei verschiedenen pH- Werten	49

1 Einleitung

Die G.E.O.S. Freiberg Ingenieurgesellschaft mbH wurde durch das Bundesamt für Strahlenschutz mit Schreiben vom 15.09.2003 AG 3.1 - StSch zur Abgabe eines Angebotes zum Thema „Methodische Weiterentwicklung des Leitfadens zur radiologischen Untersuchung und Bewertung bergbaulicher Altlasten und der Erweiterung des Anwendungsbereiches“ dieses Leitfadens aufgefordert. Dem Anschreiben entsprechend soll der Leitfaden in dem Teil A auf die Mikrobiologie bzw. die durch von Mikroorganismen implizierten möglichen Prozesse in den Halden und Absetzanlagen erweitert werden.

Bisher wurden im Leitfaden für die Modellierung und Bewertung der Freisetzung von Radionukliden nur chemische / geochemische Prozesse in den Halden betrachtet. Da neben diesen mit mikrobiologischen Prozessen, z. B. in den pyrithaltigen Halden, zu rechnen ist, kann die Freisetzung auch durch mikrobiologische Prozesse beeinflusst werden.

Folgende Aufgaben und Fragestellungen sollen deshalb bearbeitet werden:

Hat die im Leitfaden gebende Empfehlung auch Gültigkeit unter der Berücksichtigung mikrobiologischer Prozesse?

Müssen bei der Untersuchung und Modellierung des Transportes der Radionuklide mit dem Grundwasser ebenfalls mikrobiologische Fragestellungen betrachtet werden?

Welche Parameter müssen erfasst und beurteilt werden, wenn bei der Entscheidung über die Sanierungsmaßnahmen bei Halden auch mikrobiologische Prozesse relevant sind?

Welche Untersuchungsmethoden sollten angewendet werden, um die notwendigen Parameter effizient und zuverlässig ermitteln zu können?

Sind bei den Betrachtungen der Freisetzung von Radionukliden aus industriellen Absetzanlagen/ Tailings hinsichtlich der mikrobiologischen Prozesse Besonderheiten zu berücksichtigen?

Die im Leitfaden gegebenen Empfehlungen für die Behandlung des Wasserpfadens sollen dahingehend überprüft werden, ob sie einer Ergänzung oder Erweiterung aus mikrobiologischer Sicht bedürfen. Es sollte ebenfalls geprüft werden, ob zum Zwecke der Weiterentwicklung des Leitfadens mikrobiologische Untersuchungen und Messungen erforderlich sind.

Dazu sollen Empfehlungen für das Vorgehen zur Weiterentwicklung des Leitfadens herausgearbeitet werden.

Abschlussbericht

In das Vorhaben sollen die industriellen Absetzanlagen (IAA) und die Halden des Alt- und Uranbergbaues in den Ländern Sachsen, Sachsen-Anhalt und Thüringen einbezogen werden, soweit sie nicht mehr im Zuständigkeitsbereich der Wismut GmbH liegen.

2 Hinterlassenschaften des Uranbergbaus als potentielle Lebensräume für Mikroorganismen

2.1 Allgemeine chemische und physikalische Parameter

Das vorliegende Datenmaterial wurde nach Umgebungsbedingungen (pH, pO₂, T, Feuchtigkeit), Vorhandensein von Nährstoffen (Kohlenstoff, Stickstoff, Schwefel, Phosphor) und Schadstoffkonzentrationen (Radionuklide, Metalle, Arsen) durchgesehen. Eine Einschätzung über das Freisetzungsverhalten kann dabei nach den Bewertungskriterien, wie sie von C&E [C&E2001] zusammengestellt worden sind, abgeleitet werden. Das Freisetzungsverhalten wird dabei mit den Noten 1 - 5 bewertet. 1 bedeutet günstige Eigenschaften für eine Freisetzung, 5 ungünstige. Das Haldeninventar wird dabei nach der Zusammensetzung und der Art des Nebengesteins, des Gangmaterials und der Vererzung bewertet. Die Bewertungskriterien sind in der Tabelle 1 dargestellt und die Ergebnisse im Anhang vorhanden. Dabei bedeuten:

- ein hoher Sulfidgehalt ein hohes Säurebildungspotenzial und damit ein hohes Freisetzungspotenzial,
- ein hoher Quarzgehalt ein niedriges Freisetzungspotenzial, wenn er mit einem niedrigen Sulfidgehalt verbunden ist,
- ein hoher Karbonatgehalt eine große Pufferkapazität und damit ein niedriges Freisetzungsverhalten,
- ein hoher Gehalt an organischem Kohlenstoff eine größere Freisetzungsmöglichkeit bedingt durch eine stark geminderte Verwitterungsbeständigkeit und
- ein hoher Tonmineralanteil ein gutes Rückhaltevermögen und dadurch ein vermindertes Freisetzungsvermögen.

Mit diesen Wichtungsfaktoren sind die für eine Freisetzung von Radionukliden in Betracht kommenden Halden und Verdachtsflächen bewertet worden. Dabei müssen diejenigen Halden und Verdachtsflächen mit weniger als 40 Punkte als prädestiniert für eine Freisetzung von Radionukliden angesehen werden (Anlage 2).

Abschlussbericht

Tabelle 1: Bewertungskriterien für das Freisetzungsverhalten von Radionukliden

Bewertungskriterien		Note	Grenzwerte
1.1 Nebengestein			
1.1.1 Typ	karbonatisch	1	
	silikatisch/tonig	3	
	kontaktmetamorph	3	
	magmatisch	3	
1.1.2 Verwitterungsanfälligkeit	leicht	1	
	mittel	3	
	schwer	5	
1.1.3 Sulfidgehalt	hoch	1	> 3%
	niedrig	5	< 3%
1.1.4 Gehalt an Karbonaten	hoch	3	> 10%
	niedrig	1	< 10%
1.1.5 Hoher Gehalt an C _{org.}	hoch	3	> 2
1.2 Gangmaterial			
1.2.1 Karbonatanteil	hoch	1	> 50%
	niedrig	3	
1.2.2 Quarzanteil	hoch	3	> 50%
	niedrig	1	
1.2.3 Sulfidanteil	hoch	1	> 3%
	niedrig	3	< 3%
1.3 Vererzung			
1.3.1 Morphologie	dispers	1	
	Stockwerk	3	
	Gang	5	
1.3.2 Vererzung	primär	3	> 50%
	sekundär	1	< 50%

2.2 Geochemisches Verhalten von Radionukliden

In diesem Abschnitt werden Eigenschaften und Verhaltensweisen der ausgewählten Radionuklide U, Th, Ra, und Pb dargestellt. Das betrifft neben Informationen zum natürlichen Vorkommen auch chemische und ausgewählte physikalische Eigenschaften.

Weiterhin wird ein Überblick zu den Wechselwirkungen von Radionukliden mit organischem Bodenmaterial gegeben.

2.2.1 Uran

Die durchschnittliche Konzentration des natürlichen Elementes Uran in der Erdkruste beträgt 2,5-4 mg/kg. Die in der Natur am häufigsten vorkommenden Oxidationsstufen des Urans sind 4+ und 6+. Seltener kommt es in den Wertigkeiten 3+ und 5+ vor. Der Ionenradius von U⁴⁺ beträgt 0,097 nm, der von U⁶⁺ 0,080 nm. Vierwertiges Uran tritt, der vergleichbaren Ionenradien wegen, oft in diadochem Ersatz für verschiedene Elemente (z. B. Zr, Th, Ce, Y,

Abschlussbericht

Ca) in Mineralien vieler Eruptivgesteine, Pegmatiten (bevorzugt in kaliumreichen Pegmatiten) oder mit Seltenen Erden auf. Uran ist ein lithophiles Element und besitzt eine hohe Affinität zu Sauerstoff. Die wichtigsten Minerale des vierwertigen Urans sind Uraninit (idiomorphes UO_2 bis U_3O_8), Pechblende (kolomorphes UO_2 bis U_3O_8), Coffinit ($USiO_4$) und Thorianit ($(Th, U)O_2$). Die Minerale des sechswertigen Urans sind im Wesentlichen die Uranglimmer (z. B. aus der Gruppe der Phosphate: Uranocircit, Torbernit, Autunit).

Unter oxidierenden Bedingungen ist das sechswertige Uran die mobilste Form des Urans, vierwertiges Uran ist in Wasser unter „normalen“ pH/Eh- Bedingungen nahezu unlöslich. Für Uran(VI) ist charakteristisch die Bildung leichtlöslicher Uranylkomplexe, die in Abhängigkeit von den bestehenden pH-, Eh-, Temperatur- und Konzentrationsbedingungen vorrangig in wässriger Lösung migrieren können. Die wichtigsten wässrigen Spezies sind vermutlich UO_2^{2+} , $UO_2(CO_3)_3^{4-}$, $UO_2(CO_3)_2^{2-}$, $UO_2SO_4^0$, $UO_2(SO_4)_2^{2-}$ und $UO_2(HPO_4)_2^{2-}$, wobei $UO_2(CO_3)_3^{4-}$ und Phosphatverbindungen die dominanten Spezies im alkalischen Milieu darstellen und die sulfatischen Verbindungen im sauren Milieu überwiegen.

Für Transport- und Sorptionsprozesse sind besonders die nullwertigen Komplexe zu beachten. Sie gehen nur geringe Wechselwirkungen ein und werden daher kaum retardiert [Merkel2002].

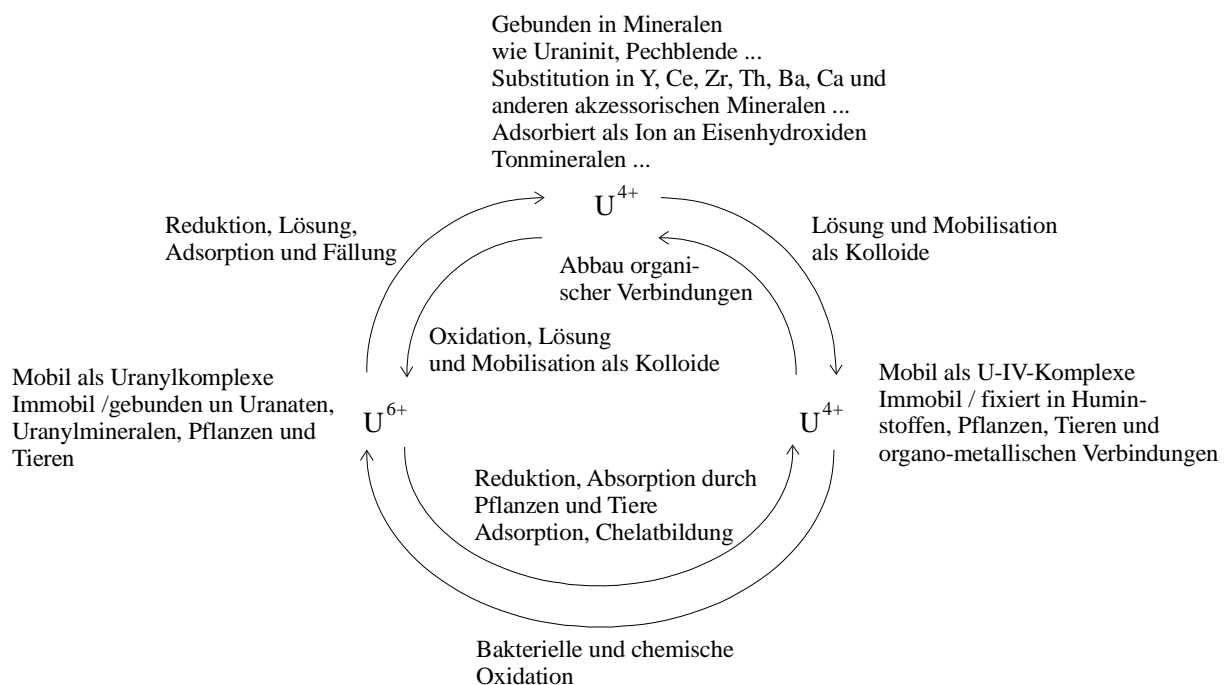


Abbildung 1: Natürlicher Urankreislauf nach Boyle [Boyle1982]

Abschlussbericht

Wirkungsvolle geochemische Barrieren für den Urantransport in wässriger Lösung stellen Fe-Mn-Hydroxide, SiO₂-Al-Hydrolysate, Tonminerale sowie organisches Material (Produkt der Bodenbildung) dar.

Hierbei kommt es zur Reduktion von U⁶⁺ zu U⁴⁺ und einem damit verbundenen Mobilitätsverlust. Insbesondere in organischem Material kommt es durch chemische Vorgänge wie Ionenaustausch, Reduktion oder Komplexbildung zu einer Urananreicherung.

Bei der Anreicherung von Uran in organischem Material bilden die Uranylionen bevorzugt Komplexe mit Humin- und Fulvosäuren. Die maximale Sorptionskapazität der Huminsäuren für Uran wird bei pH 4,5 erreicht. Für anorganische Sorbenten liegt die Kapazität bei pH-Werten von 4,5 bis 7,5.

Boyle beschreibt 1982 den in der Natur ablaufenden Urankreislauf wie in der Abbildung 1 dargestellt.

2.2.2 Thorium

Thorium unterscheidet sich hinsichtlich seiner geochemischen Eigenschaften wesentlich von Uran. Thorium kommt in der Natur am häufigsten in der Oxidationsstufe 4+ vor. Geringere Bedeutung haben die Oxidationsstufen 2+ und 3+. Der Ionenradius von Th⁴⁺ beträgt 0,102 nm. Auf Grund der ähnlich großen Ionenradien zeigen das vierwertige Uran und Thorium vergleichbare kristallchemische Eigenschaften. Sie bilden gemischte Uran-Thorium Minerale oder akzessorische Minerale ähnlicher Zusammensetzung wie z.B. Thorit, Uranthorit, Monazit und Xenotym. In pegmatitischen Gesteinen ist Thorium häufig in Titano-Niobo-Tantalaten und Titanaten zu finden. Das Verhältnis des Thoriumgehaltes zum Urangehalt beträgt in magmatischen Gesteinen im Mittel 3-4. Der Durchschnittsgehalt von Thorium in der Lithosphäre beträgt ca. 8–13 mg/kg.

Im Gegensatz zu Uran bildet Thorium keine wasserlöslichen Hydroxyverbindungen, was eine Migration unter oxidierenden Bedingungen in dieser Form erheblich erschwert.

2.2.3 Radium

Die Existenz des Alkalimetalls Radium ist vorrangig an die gesteinsbildenden und akzessorischen Minerale der sauren Gesteine geknüpft (Pechblende, Baryt, Calcit). Bei Verwitterungsprozessen löst es sich zusammen mit Barium und Calcium und gelangt so in

Abschlussbericht

die Sedimente der Pedosphäre. Radium tritt gegenüber Sauerstoff bivalent auf. Der Ionenradius von Ra^{2+} beträgt 0,162 nm.

Radium verhält sich als Erdalkalimetall wie Barium. Die Löslichkeit des Radiumsulfates ist etwas geringer als die des Bariumsulfates, Radium wird aber mit diesem mitgefällt. Unter reduzierenden und alkalischen Bedingungen kann Ra als Hydroxid fixiert werden.

2.2.4 Blei

Die geochemischen Eigenschaften des Radionuklids ^{210}Pb entsprechen denen des natürlichen Elementes Pb. Der Gehalt des Elements in der kontinentalen Kruste wird mit 16 mg/kg angegeben. Blei wird sehr stark durch spezifische Adsorptionsprozesse gebunden. Insbesondere Fe-, Al- und Mn-Oxide weisen eine hohe Bindungskapazität für Blei auf. Außerdem weist Blei eine große Affinität zu Schwefel auf (häufigstes Bleimineral ist PbS – Galenit). Die Mobilität von Blei im Boden ist sehr stark pH-Wert-abhängig. Bis pH-Wert 4 ist es sehr immobil. Erst wenn der pH-Wert des Bodens unter 4 sinkt, nimmt die Löslichkeit zu und Blei kann als zweiwertiges Ion verlagert werden. Die häufigsten Spezies im Sickerwasser unter oxidierenden und sauren Bedingungen sind Pb^{2+} , hydratisiert zu $\text{Pb}(\text{H}_2\text{O})_4^{2+}$ oder $\text{Pb}(\text{H}_2\text{O})_3^{2+}$, organische Komplexe, PbSO_4^0 und PbHCO_3^+ . Im alkalischen Milieu dominieren die Spezies PbCO_3^0 , PbHCO_3^+ , $\text{Pb}(\text{CO}_3)_2^{2-}$ und PbOH^+ .

Eine wichtige Bindungsform, die zur Abreicherung von gelöstem Blei führt, ist die sorptive Bindung an Tonminerale, Mn- / Fe-oxide und Organika. In pH-Bereichen um 3, wie sie in Waldböden vorrangig angetroffen werden, überwiegt die Bindungskapazität der Huminstoffe die der Oxide, so dass ein großer Teil des Bleis in den O- und A-Horizonten an die organische Substanz gebunden ist. Das bei pH-Werten <4 aus mineralischer Bindung freigesetzte Blei wird von Pflanzen aufgenommen und nach deren Absterben in den O- und A-Horizonten (Abbildung 2) angereichert. Reduzierende Bedingungen stellen ein gutes Milieu für die Bildung von löslichen organischen Komplexbildnern dar, so dass sich die Mobilität von Blei unter solchen Bedingungen stark erhöht (sogenannte metallorganische Komplexe). Bei hohen pH-Werten und hohem Karbonatgehalt werden Bleihydroxokarbonate und bei hohem Phosphatgehalt Bleiphosphate gebildet.

Abschlussbericht

2.3 Bedeutung der organischen Substanz auf das Migrationsverhalten von Radionukliden

Die Bodenneubildung auf Bergbauhinterlassenschaften vollzieht sich in relativ langen Zeiträumen unter dem Einfluss verschiedener Faktoren wie z.B. Klima, Grundwasser, Oberflächenrelief, Vegetation, Bodenorganismen und anthropogener Nutzungen. Zunächst wird das feste Gestein an der Oberfläche zunehmend gelockert und es entstehen Klüfte und Spalten. In diesen siedeln sich Moose, Flechten und Bodentiere an. Daraus entwickelt sich allmählich eine geringmächtige Humusschicht, auf der Gräser und Kräuter wachsen können. Die sich bildende Vegetationsdecke schützt den entstandenen Boden vor Trockenheit und Kälte sowie vor der Erosion durch Wind und Regen. Vor allem aber liefern die Pflanzen reichlich organisches Material (Streu), das durch Zersetzung und Humifizierung zu Humus umgebildet wird. Teilweise werden/wurden die Halden, Tailings und IAA's mit einer Bodenschicht abgedeckt. Diese Bodenschicht dient zur Verhinderung der Erosion.

Die Abbaugeschwindigkeit der Streu wird von Umweltbedingungen wie Temperatur, Feuchtigkeit, Bodenfaktoren sowie von der Herkunft und Zusammensetzung des Materials beeinflusst. Verholzte Pflanzenteile, Nadeln von Waldbäumen und Gewächse mit hohen Polyphenol- und Harzgehalten werden sehr langsam von Mikroorganismen besiedelt und folglich sehr langsam abgebaut.

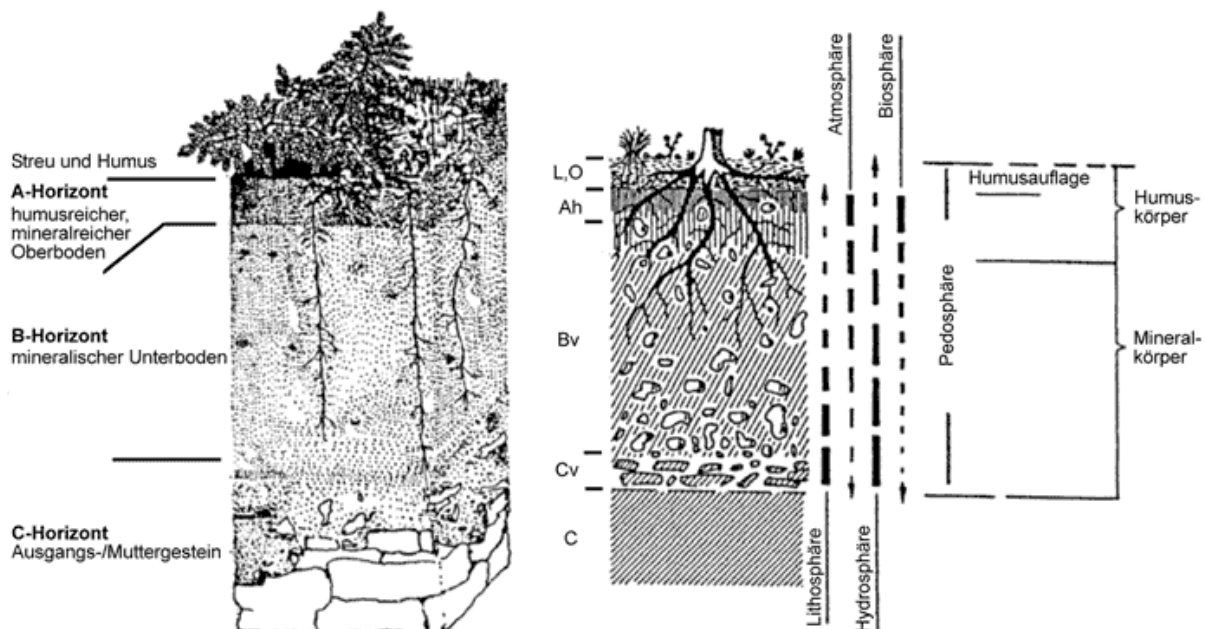


Abbildung 2: Bodenprofil mit Horizonten, [Hypersoil2004]

Abschlussbericht

Die Abbaugeschwindigkeit der natürlichen organischen Substanz im Boden steht weiterhin in engem Zusammenhang mit dem chemischen Aufbau der Moleküle. Zu diesen Substanzen zählen natürliche hydrophobe Verbindungen, Polysaccharide, niedermolekulare neutrale Verbindungen und organische Säuren, Huminstoffe sowie Huminstoff- Hydrolysate. Einfache niedermolekulare Stoffe wie monomolekulare Zucker oder Aminosäuren, die unmittelbar für den Zellaufbau und die Energiegewinnung der Mikroorganismen genutzt werden können, werden sehr schnell verwertet. Makromoleküle wie Cellulose, Stärke und Proteine müssen vor der Verwertung erst in kleinere Bruchstücke gespalten werden. Stoffe mit hohem Anteil an aromatischen Kohlenstoffen (Lignin, Polyphenole) sind teilweise gar nicht abbaubar und bilden die Ausgangssubstanzen zur Bildung stabiler Huminstoffe. Diese Huminstoffe bilden sogenannte Binnenstrukturen, die an ihren Rändern funktionelle Gruppen aufweisen, die je nach dem pH-Wert der Umgebung durch Kationen abgesättigt sind. Eine Anlagerung von Radionukliden an diese funktionellen Gruppen wurde beispielsweise für die Anlagerung ^{241}Am an Fulvosäuren nachgewiesen [Kirchner & Ehlers 2000]. Die Binnenstrukturen der Huminstoffe sind sehr resistent und können über einen langen Zeitraum im System Boden erhalten bleiben.

Auf Grund ihrer vielfältigen funktionellen Gruppen können die natürlichen organischen Substanzen mit den vorhandenen Radionukliden in unterschiedliche Wechselwirkungsbeziehungen treten. So besteht, wie in [Schlenker2000] aufgezeigt, in der Tiefenverteilung einer Reihe von Radionukliden eine auffällige Korrelation zum Gehalt an organischem Bodenmaterial. Weiterhin wurde ein Zusammenhang zwischen der Abbaugeschwindigkeit des organischen Materials und der Verlagerung der Radionuklide aufgezeigt.

Insbesondere zweiwertige Radionuklide, darunter Pb^{2+} , werden bevorzugt an organische Substanz gebunden und sind hiernach wenig mobil. Die im Rahmen von Schlenker durchgeführten Untersuchungen belegen eine deutliche Akkumulation natürlicher Radionuklide wie ^{210}Pb und ^{238}U im humifizierten Material der Of- und Oh-Horizonte. Auch vierwertiges Thorium kann in Huminstoff reichen Bodenhorizonten auftreten, da es mit den Karboxylgruppen der Huminsäuren starke Komplexe bildet [Pompe2000]. Eine andere funktionelle Gruppe, die zu einer Festlegung von Uran führt, ist Phosphat. Phosphat ist in vielen pflanzlichen Geweben und biologischen Verbindungen enthalten. Mit Hilfe von Röntgenstrukturanalysen konnte gezeigt werden, dass sich in pflanzlichen Geweben verschiedene unlösliche Uranylphosphate, so zum Beispiel auch m- Autunit, bilden [Günther2003].

Abschlussbericht

Organische Substanzen, die zu einer Freisetzung von Radionukliden beitragen, sind neben Chelatoren und Siderophoren vor allem organische Säuren, die als Stoffwechselprodukte von heterotrophen Mikroorganismen entstehen können.

Die durch heterotrophe Organismen gebildeten organischen Säuren lösen Metalle aus festen Verbindungen durch das Zusammenwirken von pH- Wert- Absenkung und Komplexbildung der Metalle mit den organischen Säuren. Zu solchen organischen Säuren gehören Dicarboxylsäuren, Polyhydroxysäuren und phenolische Verbindungen, wie die Protokatechu- und die Salicylsäure. So wird z. B. mit Hilfe dieser organischen Verbindungen Uran aus Granit gelöst [Francis1999].

2.4 Allgemeine Voraussetzungen für mikrobielle Aktivität

Im folgenden Abschnitt sollen einige allgemeine Bedingungen, die für eine aktive mikrobielle Gemeinschaft erforderlich sind, dargestellt werden. Allgemein gesagt, müssen die für das Leben erforderlichen chemischen Elemente (C, O, N, H, P, S, K), verfügbares Wasser und biologisch nutzbare Energie vorhanden sein. Die Umweltbedingungen sollten nur innerhalb enger Grenzen schwanken und innerhalb der für Mikroorganismen tolerierbaren Grenzen gelegen sein.

Viele Bakterien können ein breites Spektrum an Substraten nutzen, um ihren Bedarf an Nährstoffen zu decken. Als Beispiel sei hier die Art *Pseudomonas putida* genannt, die aus über 80 Substraten ihren Kohlenstoff- und Energiebedarf decken kann. Dazu zählen Fettsäuren, Alkohole, Kohlenhydrate, Kohlenwasserstoffe, Aminosäuren, Amine und Amide.

Andere Mikroorganismen nutzen keine organischen Verbindungen sondern CO₂ als Kohlenstoffquelle, zum Beispiel *Acidithiobacillus ferrooxidans*. Neben den organischen Verbindungen, wie bei *Pseudomonas*, können anorganische Stoffe, wie bei Sulfat reduzierenden Bakterien (SRB) oder Licht, z.B. Blaualgen, als Energiequelle für Mikroorganismen dienen. In einem Temperaturbereich von -20°C bis über 100°C und im pH-Wert Bereich von 1 bis über 10 konnte mikrobielles Leben nachgewiesen werden.

Mikroorganismen sind durch ihre Vielfältigkeit in allen Räumen dieser Erde anzutreffen. Die von ihnen besiedelten Lebensräume sind häufig nur wenige Kubikmillimeter groß.

An Hand der in verschiedenen Datenmaterialien zur Charakterisierung der Zusammensetzung des abgelagerten Materials und der im Rahmen der Umweltüberwachung durchgeführten Untersuchungen wird deutlich, dass die

Abschlussbericht

grundlegenden Voraussetzungen für mikrobielles Leben hinsichtlich der erforderlichen chemischen Elemente und einer möglichen Energiequelle in den bergbaulichen Altlasten vorhanden sind. Diese Aussage kann an Hand der zum Beispiel im Archiv der Wismut GmbH vorhandenen Daten für einen großen Teil der Bergbaurückstände als bestätigt angesehen werden.

3 Mikrobielle Populationen in Bergbauhinterlassenschaften

In der zweiten Hälfte des 20. Jahrhunderts begannen Mikrobiologen, sich für die lebensfähigen Mikroorganismen im Untergrund zu interessieren. So war es möglich, mit Hilfe von verschiedenen Kultivierungstechniken, 10^3 bis 10^8 Mikroorganismen je Gramm Sediment in Grundwassernichtleitern bzw. in Grundwasserleitern nachzuweisen [Balkwill1989]. Darüber hinaus wurden auch in Halden mit radioaktivem Material und in Uran-Tagebaurestlöchern Bakterien nachgewiesen. Als Beispiele sollen aus der Vielzahl der Veröffentlichungen die Arbeiten von Francis [Francis1990] und Suzuki et al. [Suzuki2003] genannt werden.

Die Abbildung 3 soll einen Eindruck von der zu erwartenden Vielfalt an Bakterien in radioaktiv belasteten Böden geben.

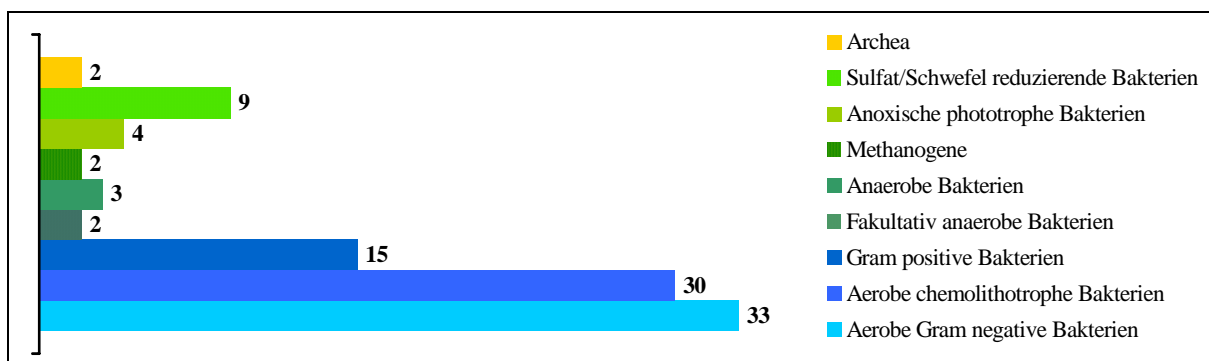


Abbildung 3: Gattungsvielfalt in radioaktiv belasteten Böden (Angaben in % nach Häufigkeit der Nennung in der Literatur, Quellen siehe Anhang 1)

Sie spiegelt die Vielfalt der kultivierbaren Mikroorganismen in belasteten Böden wider. In den dargestellten Hauptgruppen der Bakterien sind 63 verschiedene aus der Literatur bekannte

Abschlussbericht

Gattungen zusammengefasst. Von einigen dieser Gattungen sind Informationen zu ihren biochemischen Leistungen vorhanden.

So ist zum Beispiel bekannt, dass Mikroorganismen die Verwitterung von Gesteinen vorantreiben. Chemolithotrophe, genauer schwefel- und eisenoxidierende Bakterien, sind in der Lage, sulfidische Erze zu attackieren und aufzulösen. Dabei werden die sulfidische Komponente zu Sulfat und reduzierte metallische Komponenten, wie Eisen II, oxidiert [Sand1995].

Neben der Kultivierung von Mikroorganismen hat sich eine andere Herangehensweise an die Untersuchung von mikrobiellen Populationen in Böden durch kultivierungsunabhängige, direkte Methoden entwickelt. Durch diese direkten Methoden, wie mikroskopische Untersuchungen von Bodenproben, wurden deutlich größere Keimzahlen in entsprechenden Bodenproben gefunden. Ein Vergleich der Keimzahlen aus beiden Methoden zeigte, dass nur etwa 1 % der Mikroorganismen mit heute üblichen Kultivierungsmethoden erfasst werden können. Deshalb wurden auch genetische Methoden zur Bestimmung von Mikroorganismen in Böden verwendet.

3.1 Mikroorganismen in Halden

In wissenschaftlichen Arbeiten der vergangenen Jahre wurde in unterschiedlichen Bergbauhalden und Böden nach Mikroorganismen gesucht. Dabei ist eine Vielzahl von Mikroorganismen mit kulturabhängigen als auch -unabhängigen Methoden nachgewiesen und identifiziert worden. Bei diesen Arbeiten stellte sich heraus, dass ein großer Teil der nachgewiesenen Mikroorganismen Gram negative, aerobe Stäbchen/Kokken bzw. aerobe chemolithotrophe Bakterien sind. Weiterhin wurde eine Anzahl Schwefel- und Sulfat-reduzierender Bakterien, Gram positive Kokken und Gram positive Endosporen bildende Stäbchen/Kokken nachgewiesen.

Diese Gruppen von Mikroorganismen wurden auf Grund einiger gemeinsamer Eigenschaften eingeteilt. Die Gram negativen aeroben Stäbchen und Kokken sind auf Grund ihrer morphologischen Eigenschaften (Form, Gram Färbung) und ihres Energiestoffwechsels (Atmung) in einer Gruppe zusammengefasst. Als gemeinsame Merkmale der Gram positiven Kokken werden ihre Form und ihr Verhalten bei der Gram Färbung sowie ihre Unbeweglichkeit genannt. Im Gegensatz dazu sind die Gram positiven Endosporen bildenden Stäbchen/Kokken beweglich und sie bilden Überdauerungsformen (Endosporen). Die Bakterien der beiden anderen genannten Gruppen werden auf Grund ihrer

Abschlussbericht

physiologischen Eigenschaften zusammengefasst. So nutzen die Sulfat reduzierenden Bakterien (SRB) die Reduktion von Sulfat oder anderen Schwefelverbindungen zu Sulfid oder elementarem Schwefel für die Elektronenübertragung bei der Energiegewinnung. Die Mikroorganismen der Gruppe der Chemolithotrophen können neben reduzierten Schwefelverbindungen, Ammonium, Nitrit und Eisen(II) oxidieren und dadurch ihren Energiebedarf decken.

Als Beispiel für die mikrobielle Vielfalt sind in der Tabelle 2 für drei Uranhalden die mit Hilfe von molekularbiologischen Methoden gefundenen Mikroorganismen aufgeführt. Darüber hinaus wurden aus Bodenproben der Haberlandhalde (Johanngeorgenstadt) Anreicherungskulturen angelegt. Reinkulturen aus diesen Anreicherungskulturen wurden als *Acidithiobacillus* spp., *Agrobacterium* spp., *Bacillus* spp., *Clostridium* spp., *Desulfovibrio* spp., *Erwinia* spp., *Leptospirillum* spp., *Pseudomonas* spp., *Rhizobium* spp., *Sphingomonas* spp. und *Stenotrophomonas* spp. identifiziert. Somit wurden an diesen drei Standorten über 30 verschiedene Gattungen nachgewiesen.

Haldenmaterialien aus verschiedenen Teilen Deutschlands und der Welt stellen für viele mikrobiologische Forschungen bis jetzt ein interessantes Untersuchungsfeld dar. Bei den Untersuchungen wurde festgestellt, dass in der mikrobiellen Besiedlung der Halden Unterschiede auftreten. Diese Unterschiede werden unter anderem durch die Herkunft des Haldenmaterials, den Verwitterungszustand der Halde und den standortspezifischen klimatischen Bedingungen beeinflusst. Häufig wurden in den untersuchten Proben von Bergbauhalden Mikroorganismen folgender Gattungen identifiziert: *Acidithiobacillus* spp., *Leptospirillum* spp., *Desulfovibrio* spp., *Bacillus* spp., und *Pseudomonas* spp.. Diese Bakterien werden teilweise zur industriellen Gewinnung von Metallen aus Erzen und zum Teil zur Entfernung von Schwermetallen aus industriellen Wässern eingesetzt. Die beiden Prozesse sind auch für die Bewertung der Freisetzung von Radionukliden aus bergbaulichen Altlasten relevant.

Durch die industrielle Nutzung der mikrobiellen Prozesse zur Urangewinnung und im sanierenden Umweltschutz sind für die Freisetzung und Festlegung von Uran Raten unter natürlichen Bedingungen bekannt. Diese können zur Bestimmung der mikrobiellen Freisetzung und Festlegung in Halden genutzt werden. Für andere Radionuklide sind solche Raten nur für Vorgänge im Labormaßstab und unter optimalen Bedingungen für die Bakterien bekannt. Für erste Vorhersagen zur Quelltermgröße können sie genutzt werden, allerdings ist für eine zuverlässige Prog-

Abschlussbericht

Tabelle 2: Mikroorganismen in Uranhalden nach [Selenska-Pobell2002]

Gattung	Klasse	Herkunft
<i>Acinetobacter</i>	γ -Proteobacteria	Gittersee
<i>Anammox</i>	Plactomycteales	Gittersee
<i>Burkholderia</i>	β -Proteobacteria	Gittersee
<i>Desulfocapsa</i>	δ -Proteobacterium	Gittersee
<i>Desulfuromonas</i>	δ -Proteobacteria	Gittersee
<i>Flavobacterium</i>	Flavobacteria	Gittersee
<i>Magnetobacteria</i>	Nitrospira	Gittersee
<i>Nitrosomonas</i>	β -Proteobacteria	Gittersee
<i>Paenibacillus</i>	Bacilli	Gittersee
<i>Pelobacter</i>	δ -Proteobacterium	Gittersee
<i>Rhodobacter</i>	α -Proteobacteria	Gittersee
<i>Shewanella</i>	γ -Proteobacteria	Gittersee
<i>Acidithiobacillus</i>	γ -Proteobacteria	Gittersee, Johanngeorgenstadt
<i>Acidobacterium</i>	Acidobacteria	Gittersee, Johanngeorgenstadt
<i>Aeromonas</i>	γ -Proteobacteria	Gittersee, Johanngeorgenstadt
<i>Pseudomonas</i>	γ -Proteobacteria	Gittersee, Johanngeorgenstadt, Schlema
<i>Desulfobacter</i>	δ -Proteobacterium	Gittersee, Schlema
<i>Nitrosococcus</i>	γ -Proteobacteria	Johanngeorgenstadt
<i>Rasbo</i>	α -Proteobacteria	Johanngeorgenstadt
<i>Bradyrhizobium</i>	α -Proteobacteria	Johanngeorgenstadt, Schlema
	Grüne Bakterien	Schlema
	Grüne Schwefel Bakterien	Schlema
<i>Bacillus</i>	Bacilli	Schlema
<i>Enthoteonella</i>	δ -Proteobacterium	Schlema
<i>Geobacter</i>	δ -Proteobacterium	Schlema
<i>Nitrospina</i>	δ -Proteobacterium	Schlema
<i>Sarcobium</i>	γ -Proteobacteria	Schlema
<i>Zooglea</i>	β -Proteobacteria	Schlema

nose der möglichen Freisetzung unter natürlichen Bedingungen die Ermittlung der realen Raten erforderlich.

3.2 Mikroorganismen in IAA's und Tailings bzw. Aquiferen

Die Recherche nach den vorhandenen mikrobiellen Populationen in IAA's und Aquiferen zeigte, dass diese Habitate nur in sehr geringem Maße untersucht wurden. Gründe dafür könnten die schlechte Zugänglichkeit, die Schwierigkeit der Probenahme und der vermutete geringe Gehalt an Radionukliden sein. Aus dem wenigen Material heraus ist eine weitere Untersuchung dieser Altlasten dringend zu empfehlen.

Zu Beginn dieses Abschnitts sollen Arbeiten vorgestellt werden, die sich der chemischen/hydrochemischen Beschreibung von IAA's in Deutschland beschäftigt haben. Dazu zählen die Dissertation von Naamoun und einige Beiträge zum Jahresbericht des Instituts für Radiochemie im Forschungszentrum Rossendorf von Scheinost.

Die hydrogeochemische und radiologische Untersuchung der Uran Tailings enthaltenden IAA „Schneckenstein“ stellt eine umfangreiche Zusammenstellung von tiefenabhängigen chemischen und physikalischen Analysen dar [Naamoun2002]. So zeigt sich ein Gefälle des k_f - Werts in der IAA. Mit zunehmender Tiefe nimmt die Wasserdurchlässigkeit in den entnommenen Kernen von 10^{-5} m/s in oberflächennahen Schichten bis auf $10^{-7} - 10^{-8}$ m/s in größeren Tiefen ab. Berechnungen für den Eh- Wert zeigen ebenfalls einen Abnahme des Wertes hin zu anoxischen Verhältnissen. Diese Aussage steht aber im Widerspruch zu den real gemessenen Daten. Die Messergebnisse zeigen, dass bis in den Grundbereich der Tailings der IAA oxische Verhältnisse anzutreffen sind. Perspektivisch ist aber anzunehmen, dass sich mit zunehmender Zeit anoxische Bedingungen über alle Tiefen einstellen werden. In den Tailings ist ein hoher Anteil an Silikaten und Tonen enthalten. Sulfidische Verbindungen fehlen hingegen fast vollständig. Durch diese mineralische Zusammensetzung scheint eine Versauerung der Tailings und der austretenden Wässer unwahrscheinlich. Im Porenwasser der Kernproben wurden gelöste organische Stoffe (DOC) nachgewiesen. Die durchschnittlich gefundene Menge an DOC in allen untersuchten Porenwässern beträgt ca. 7,5 mg/l. Nimmt man an, dass diese Menge an organischen Material komplett zu Mikroorganismen umgesetzt wird, könnten etwa 10^9 Bakterien im Liter Porenwasser daraus entstehen. Diese aus einem Liter Porenwasser gewachsenen Bakterien könnten unter optimalen Bedingungen etwa 0,1 µg Uran im Jahr freisetzen. Naamoun 2002 bestimmte die Wassersättigung in den entnommenen Kernproben. Die geringste Sättigung in diesen betrug

Abschlussbericht

23 %, die höchste 83 %. Ebenso wurden Berechnungen zur Volumenabschätzung durchgeführt. Das bestimmte Volumen lag bei 550000 m³ und ist somit kleiner als das vom VEB Bergsicherung Schneeberg 1965 mit 705000 m³ angegebene. Werden als Grundlage für die Vorhersage des mikrobiell freigesetzten Urans 23 % Wassersättigung und ein Gesamtvolumen des Tailings von 550000 m³ angenommen, würden durch mikrobielle Vorgänge unter optimalen Bedingungen für die Bakterien rund 12 g Uran je Jahr freigesetzt werden können.

Die Arbeiten von Scheinost 2004 beschäftigen sich mit einer IAA in Freital. Diese IAA mit Tailings wurde in der Zeit von 1949 bis 1960 von der Wismut SDAG angelegt, anschließend mit kommunalen Abfällen und einer Erdschicht abgedeckt und später mit Bergbauabfällen aufgefüllt. Damit handelt es sich in diesem Fall um eine Mischablagerung. An dieser Stelle sollen trotzdem einige Informationen von diesem Tailing dargestellt werden. Es wurden zwei Proben aus dem Tailing untersucht. Angaben zu ihrer Zusammensetzung sind in Tabelle 3 aufgeführt.

Tabelle 3: pH, Eh und Zusammensetzung der Tailing- Proben nach [Scheinost2004]

Probe	pH	Eh, mV	U, mg/kg	S, mg/kg	Fe, mg/kg	Pb, mg/kg	Th, mg/kg
F1	8,0	450	444	25900	21950	1410	16
F3	4,0	500	425	5433	26800	128	27

In der Probe F1 ist das Uran recht homogen verteilt und an Kalium oder 3d- Metalle gebunden und mobil. In der zweiten Probe mit einem pH- Wert von 4 zeigt sich eine andere Verteilung des Urans. Hier liegt es inhomogen und in mineralischer Form vor. Das Uran ist in dieser Probe nahezu immobil. Es wurde an diesen Proben für einen basischen pH- Wert eine höhere Uranmobilität als im saueren Bereich nachgewiesen.

Im Weiteren folgen einige Aussagen aus mikrobiologischen Arbeiten verschiedener Autoren. In der Abbildung 4 ist die Verteilung verschiedener bakterieller Klassen in drei verschiedenen Urantailings im Vergleich zu der Zusammensetzung der mikrobiellen Population der Haberlandhalde bei Johanngeorgenstadt nach Geißler2003 dargestellt. Durch diese Untersuchungen wurde deutlich, dass sowohl in den Rückständen des Bergbaus als auch in denen der Uranaufarbeitung Mikroorganismen nachweisbar sind.

Durch die unterschiedliche Zusammensetzung von Halden (hauptsächlich taubes Gestein) und Tailings (Schlämme der chemischen Aufbereitung) variiert auch die mikrobielle

Abschlussbericht

Population. In der Abbildung 4 ist zu erkennen, dass in allen vier untersuchten Standorten Proteobakterien nachgewiesen werden konnten. In den Tailings wurde eine größere Anzahl an γ -Proteobakterien als in der Haberlandhalde festgestellt. Zu den γ -Proteobakterien zählen Schwefelbakterien (z.B. *Beggiatoa*), Schwefelpurpurbakterien (*Chromatiaceae*) sowie einige Vertreter der Gattung *Pseudomonas*.

Darüber hinaus wird durch die verschiedenen Standorte der Tailings der Einfluss von standortspezifischen Faktoren auf die mikrobielle Population deutlich. Die große Variationsbreite der anderen gefundenen bakteriellen Klassen spiegelt die Abhängigkeit der mikrobiellen Population vom Klima und der Zusammensetzung der Ablagerungen wider. Diese Standortabhängigkeit verdeutlicht auch die Schwierigkeiten, die bei einer allgemeingültigen Bewertung des mikrobiellen Beitrags an der Freisetzung von Radionukliden auftreten.

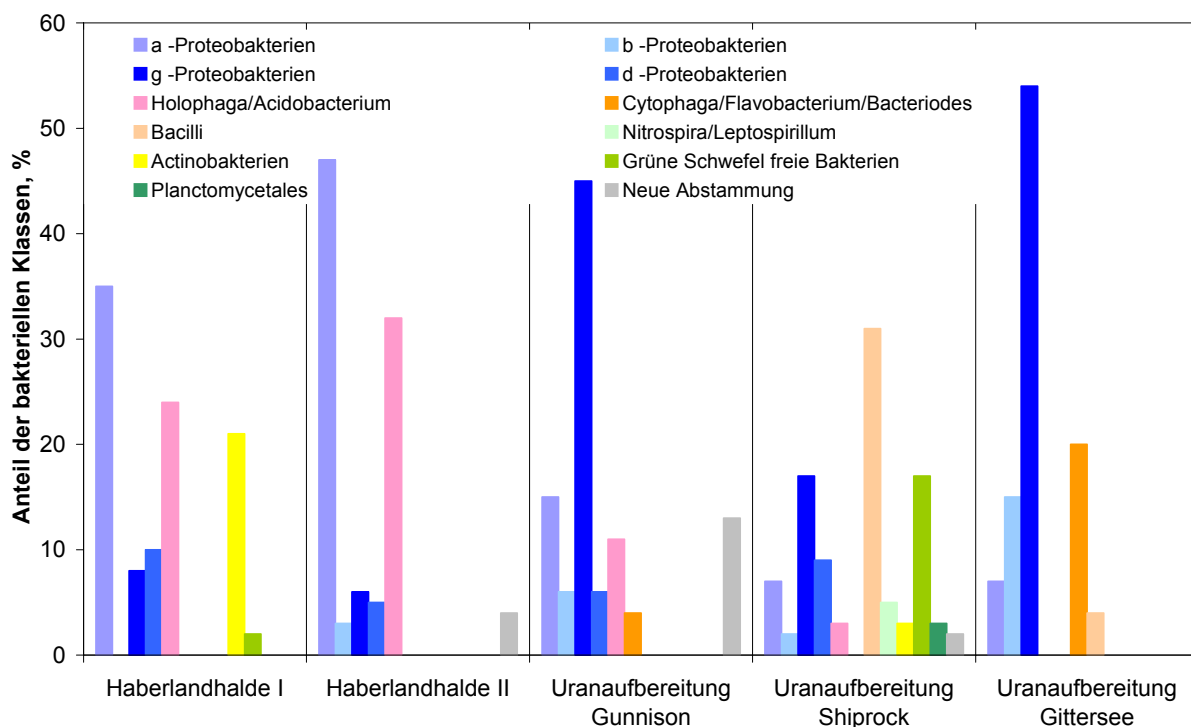


Abbildung 4: Verteilung von bakteriellen Klassen in verschiedenen Standorten der Urangewinnung (nach [Geißler2003])

Ein weiterer durch Rückstände der Urangewinnung gefährdeter Bereich ist das Grundwasser. Grundwasserleiter werden in ihren physikalischen und chemischen Eigenschaften durch hydrogeologische Gegebenheiten und aquiferspezifische

Abschlussbericht

Materialkenngrößen charakterisiert. Die mineralische Umgebung des Grundwasserleiters hat einen wesentlichen Einfluss auf die chemische Beschaffenheit des Grundwassers. Das Grundwasser weist eine große Variabilität des Nährstoffgehaltes auf. In den meisten Fällen ist das Grundwasser nährstoffarm, insbesondere hinsichtlich der Gehalte an Kohlenstoff, Phosphor und Stickstoff. Die mikrobielle Population des Grundwassers besteht im Wesentlichen aus Bakterien, fädigen Pilzen, Hefen und Protozoen. In Bereichen mit geothermalen Aktivitäten, wo anorganische reduzierte Verbindungen in ein mit Sauerstoff angereichertes Wasser eindringen, sind chemolithotrophe Mikroorganismen (z.B. *Acidithiobacillus*) zu erwarten. Heterotrophe Mikroorganismen sind an den Eintrag von gelöstem organischem Kohlenstoff (DOC) oder von organischem Material sedimentativen Ursprungs gebunden. Der Eintrag der Kohlenstoffquellen erfolgt entlang der Grundwasserfließrichtung. Es sind mehrere Möglichkeiten der Herkunft von Mikroorganismen im Grundwasser vorstellbar. Die Organismen sind entweder dort seit der ersten Besiedelung der Sedimente, oder aber sie wurden mit dem Grundwasserzstrom an ihren jetzigen Ort transportiert. Zudem können Mikroorganismen über die Grundwasserneubildung aus ungesättigten Zonen eingetragen werden.

Die Gemeinschaft der Grundwassermikroorganismen besteht einerseits aus Mikroorganismen, die an dem Feststoff angeheftet sind sowie aus Mikroorganismen, die im Grundwasser frei beweglich sind. Vermutlich besteht jedoch eine überlappende Beziehung zwischen beiden Gemeinschaften und der kontinuierliche Austausch zwischen beiden Gemeinschaften wird durch die Verfügbarkeit von Nährstoffen, Elektronen-Akzeptoren und Donatoren sowie anderen Umweltfaktoren reguliert.

In den oberen Bodenschichten wird ein durchschnittlicher Gehalt von 10^8 - 10^9 aeroben Bakterien/g Trockengewicht angenommen. Mit zunehmender Bodenprofiltiefe nimmt der Nährstoffgehalt kontinuierlich ab, und damit die Konzentration von Bakterien. Sie sinkt mit zunehmender Tiefe auf Lebendkeimzellzahlen von etwa 10^2 - 10^3 Bakterien/g Boden-Trockengewicht. Auf der Höhe des Grundwasserspiegels steigt die Anzahl der Mikroorganismen wieder auf Werte zwischen 10^4 - 10^7 aerober Bakterien/g Trockengewicht. Die Bakterienhäufigkeit und die bakterielle Aktivität in der gesättigten und ungesättigten Zone sind abhängig von hydrogeologischen, physikalischen und geochemischen Gegebenheiten.

Entlang der Grundwasserfließrichtung ändern sich die Mikroorganismenkonzentrationen durch die für die Mikroorganismen wichtigsten chemischen und physikalischen Parameter (C, N-, P-, und S-Quellen, Feuchtigkeit, pH, Elektronenakzeptoren), das „grazing“, die Einwanderung von Mikroorganismen und die hydrogeologischen Gegebenheiten. Da die

Abschlussbericht

Nährstoffkonzentrationen meist sehr gering sind, werden geringe Wachstums- und Stoffwechselraten *in situ* erwartet. In oberflächennahen Grundwässern wurden folgende Stoffwechselaktivitäten nachgewiesen: Chemoorganotrophie, Denitrifikation, Nitrifikation, Nitratammonifikation, Sulfat-Reduktion, Schwefel- und Sulfid-Oxidation, Kohlenwasserstoff-Oxidation, Methanogenese, Methan-Oxidation, Mangan-Oxidation und -Reduktion sowie Eisen- Reduktion [Gliesche1996].

Die Recherche zeigte, dass, verglichen mit den Untersuchungen zur Mikrobiologie in Halden mit radioaktivem Material, es nur eine geringe Anzahl an Arbeiten über mikrobiologische Vorgänge für radioaktiv belastete Tailings, IAA's und Aquifere gibt. Für eine präzise Prognose des mikrobiellen Beitrags der Freisetzung von Radioaktivität aus diesen Standorten sind umfangreichere Kenntnisse der standortspezifischen Mikroflora dringend notwendig.

Bis diese Erkenntnisse vorliegen, können unter der berechtigten Annahme, dass in Tailings und IAA's ähnliche mikrobielle Vorgänge stattfinden wie in Halden, Aussagen zur mikrobiellen Aktivität in diesen Standorten abgeleitet werden. Die dabei erhaltenen Folgerungen hinsichtlich der mikrobiell katalysierten Freisetzung von Radionukliden aus Tailings und IAA's sind deshalb als erste Näherung zu verstehen.

3.3 Kurzbeschreibung einiger Gattungen aus den verschiedenen Standorten

Es ist bekannt, dass verschiedene mikrobielle Gattungen ubiquitär sind. Bei den im Rahmen dieser Arbeiten durchgeführten Recherchen wurde festgestellt, dass einige dieser ubiquitären Mikroorganismen eine größere Bedeutung für die in Halden und Tailings ablaufenden Vorgänge haben als andere. In diesem Abschnitt sollen einige allgemeingültige Eigenschaften dieser und einiger spezieller Gattungen dargestellt werden.

3.3.1 Chemolithotrophe Mikroorganismen

Alle Mikroorganismen, die mit der Bezeichnung „Chemolithotrophe“ zusammengefasst werden, nutzen anorganische Substanzen zur Energiegewinnung und als terminale Elektronenakzeptoren. Diese anorganischen Energiequellen sind H_2S , H_2 und NH_3 . Als terminale Elektronenakzeptoren werden von chemolithotrophen Mikroorganismen S_0 , O_2 , NO_3^- und SO_4^{2-} verwendet. Chemolithotrophe nutzen als Kohlenstoffquelle meist CO_2 ,

Abschlussbericht

einigen Chemotrophen dienen aber auch organische Kohlenstoffverbindungen als C-Quelle. Sie wachsen in Anwesenheit von molekularem Sauerstoff, sind also aerob.

In den Hinterlassenschaften des Bergbaus spielen vor allem die Nitrifizierer, Schwefel oxidierenden und die Eisen oxidierenden Bakterien eine Rolle.

Bei der Nitrifikation findet die Oxidation des Ammoniums durch verschiedene Mikroorganismen zu Nitrat statt. Diese autotrophen Bakterien werden als Nitrifizierer bezeichnet. An der Oxidation sind zwei verschiedene Bakteriengruppen beteiligt. Zunächst ist dies die Gruppe der Ammoniumoxidierer, wie z.B. *Nitrosomonas* und *Nitrosococcus* die Ammonium in Nitrit (NO_2^-) oxidieren. Es folgen die Nitritoxidierer, wie z.B. *Nitrobacter* die das entstandene Nitrit zu Nitrat (NO_3^-) oxidieren.

Als Substrat der chemolithotrophen Schwefeloxidierer gilt hauptsächlich Schwefelwasserstoff (H_2S), molekularer Schwefel (S° , oft in Einschlüssen gespeichert) und Thiosulfat ($\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$). Fädige Schwefelbakterien, einige Arten der Gattung *Acidothiobacillus* katalysieren diesen Vorgang. Die Oxidation der Schwefelverbindungen kann schrittweise vom Sulfid über elementaren Schwefel und Sulfid zu Sulfat führen. Da als Endprodukt dieser Oxidation Sulfat (SO_4^{2-}) entstehen kann, sind viele dieser Bakterien acidophil (acidophile Mikroorganismen wachsen bevorzugt in Umgebungen mit pH- Werten unter 4). Eine dieser acidophilen Arten ist *Acidothiobacillus ferrooxidans*. Diese Art kann auch aus der Oxidation von Fe^{2+} Energie gewinnen. *A. ferrooxidans* besitzt zur alternativen Energiegewinnung aus Fe^{2+} eine spezielle membrangebundene Elektronentransportkette, mit der unter aciden Bedingungen Fe^{2+} oxidiert wird. Sowohl die Oxidation des Schwefels als auch des Eisens finden unter aeroben Bedingungen statt.

3.3.2 Sulfat reduzierende Bakterien (SRB)

Sulfat reduzierende Bakterien sind anaerob lebende Bakterien. Sie leben von niedermolekularen organischen Säuren, Ethanol und Wasserstoff. Ein Teil der Sulfatreduzierer oxidiert die organischen Substrate zu Acetat, die zweite Gruppe baut Acetat, Benzoat und Fettsäuren vollständig zu CO_2 , H_2O und Biomasse ab. Die für das Wachstum benötigte Energie gewinnen sie durch die Übertragung der Elektronen aus der Atmungskette auf oxidierte Schwefelverbindungen, wobei diese reduziert werden. Dabei produzieren sie Schwefelwasserstoff und Hydrogenkarbonat- Ionen.

Abschlussbericht

Diese beiden Reaktionsprodukte können in einer weiteren Reaktion die Löslichkeit von Schwermetallen verändern. Der Schwefelwasserstoff bildet mit Metallionen schwer lösliche Metallsulfide. Dadurch können gelöste Schwermetalle in der Haldenmatrix gebunden werden. Die gebildeten Hydrogenkarbonat- Ionen erhöhen die Pufferkapazität oder den pH-Wert des Wassers bzw. des Bodens. Diese Verschiebung des pH- Wertes aus dem sauren in den neutralen bis basischen Bereich kann zu einer Beeinflussung der Löslichkeit von Radionukliden und Schwermetallen führen. Je nach der Veränderung der Löslichkeit sind dabei Mobilisierungen und Immobilisierungen möglich.

3.3.3 Denitrifikanten

Die Denitrifikanten katalysieren die Reduktion von Nitraten und Nitriten zu freiem Stickstoff oder Ammoniak. Dabei wird unter anaeroben Bedingungen (Sauerstoffabschluss) der Sauerstoff des NO_3^- von den Bakterien als Elektronen- Akzeptor genutzt. Dieser Prozess ist abhängig von der Sauerstoffverfügbarkeit und dem Gehalt an organischer Substanz im Boden.

Die meisten denitrifizierenden Bakterien gehören zu den Proteobakterien und sind fakultative Aerobier. Sie sind in der Lage, außer Stickstoffverbindungen auch noch andere Elektronenakzeptoren zu nutzen. Beispiele für denitrifizierende Bakterien sind *Paracoccus denitrificans* und *Pseudomonas stutzeri*.

3.3.4 γ - Proteobakterien

Die Proteobakterien stellen eine der größeren Abteilungen der Bakterien dar. Zu ihnen gehören viele wichtige stickstofffixierende Bakterien und Krankheitserreger.

Der Name Proteobacteria ist vom griechischen Gott Proteus abgeleitet, der seine Form wechseln konnte, und bezieht sich auf die Vielfalt von Formen in dieser Gruppe. Sie ist daher kaum morphologisch, sehr wohl aber durch verwandte RNA- Sequenzen definiert. Die Proteobacteria werden nach ihren RNA- Sequenzen in fünf Hauptgruppen eingeteilt und mit den griechischen Buchstaben Alpha bis Epsilon bezeichnet werden.

Eine Untergruppe der γ - Proteobakterien, die Schwefelbakterien, sind autotroph lebende Bakterien, die ihren Energiegewinn über die Oxidation von H_2S oder anderer reduzierter Schwefelverbindungen, wie elementarer Schwefel (S) und Thiosulfat ($\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$), zu Schwefel

Abschlussbericht

beziehen. Zu ihnen zählen auch viele Bacteriochlorophyll-haltige Bakterien, wie die Grünen Schwefelbakterien und die Purpur-Schwefelbakterien. Diese phototrophen Schwefelbakterien produzieren bei der Photosynthese keinen Sauerstoff.

Einige Gattungen der *Pseudomonades* bilden eine weitere Untergruppe der γ -Proteobakterien. Sie sind eine Gruppe von Gram negativen, aeroben Bakterien. Ihre für das Wachstum benötigte Energie beziehen sie durch die Oxidation von organischen Verbindungen. Pseudomonaden sind ubiquitär. Die Gattung *Ralstonia* kann zum Beispiel frei im Boden leben. *R. metallidurans* ist darüber hinaus resistent gegen Zn, Hg, Cd, Co und Ni. Andere Gattungen der *Pseudomonades* in der phylogentischen Gruppe der γ -Proteobakterien sind *Pseudomonas* und *Burkholderia*.

4 Wechselwirkungen von Mikroorganismen mit Schwermetallen/ Radionukliden

In diesem Abschnitt sollen verschiedene Wechselwirkungen von Mikroorganismen mit der Umgebung beschrieben und hinsichtlich ihres Einflusses auf die Mobilität von Schadstoffen und Radionukliden in bergbaulichen Altlasten zusammengefasst werden.

In den angeführten Betrachtungen werden die Begriffe Radionuklid und Schwermetall als gleichwertig verwendet, da in den meisten Fällen eine Beeinträchtigung der mikrobiellen Aktivität durch den Schwermetallcharakter der Radionuklide hervorgerufen wird.

4.1 Qualitative Aussagen

Mikroorganismen können die chemische Spezies und die Mobilität von Radionukliden und anderen umweltgefährdenden Schadstoffen in ihrer Umgebung verändern.

Die Migrationsfähigkeit von Radionukliden und Schwermetallen in der Geosphäre kann durch metabolische Aktivitäten direkt oder durch Metabolite indirekt beeinflusst werden. Mögliche Wechselwirkungen zwischen Mikroorganismen und Radionukliden sind in Abbildung 5 am Beispiel von Schwermetallen schematisch dargestellt.

Diese Prozesse kann man in aktive, das heißt Energie verbrauchende und mit dem Energieumsatz gekoppelte, und passive, die unabhängig vom Energieumsatz ablaufen, einteilen. Der Transport von Metallionen durch die Zellwand zählt in der Regel zu den aktiven Prozessen und im Gegensatz dazu ist die Sorption von Metallionen an der Zelloberfläche zu

Abschlussbericht

den passiven Prozessen zu zählen. Einige Beispiele sollen die Vielfältigkeit der möglichen Wechselwirkungen zwischen den Radionukliden und den Mikroorganismen verdeutlichen.

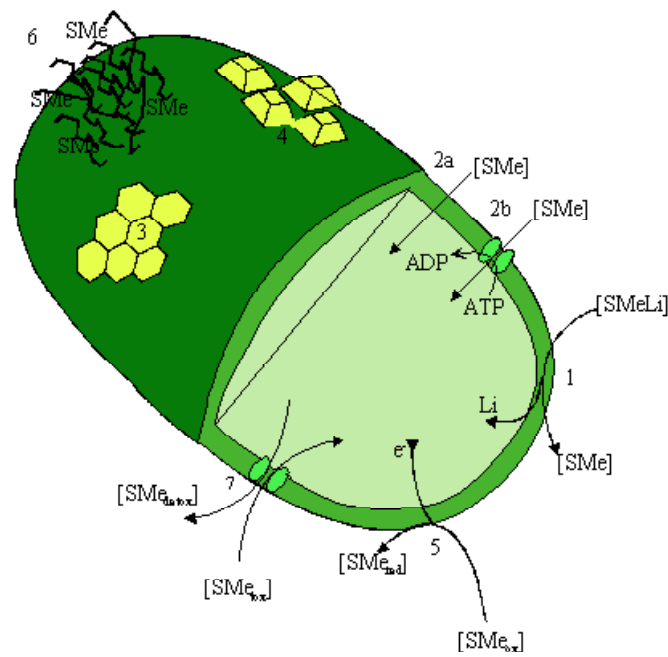


Abbildung 5: Wechselwirkungen zwischen Mikroorganismen und Schwermetallen

- 1) Spaltung von Schwermetallkomplexen, 2) Aufnahme in die Zelle (a passiv, b aktiv), 3) Sorption, 4) Mineralbildung,
 - 5) Redox-Prozesse, 6) Wechselwirkung mit Exopolymeren, 7) intrazelluläre Umwandlung
- SMe- Schwermetall, Li- Ligand, red-reduziert, ox- oxidiert, tox- toxisch, detox- weniger/nicht toxisch

In den jeweiligen Halden sind die Schwermetalle häufig in Komplexen gebunden. Als mögliche Liganden für Schwermetalle sind Nitrate, Polyphosphate, Aminocarboxylsäuren und Carboxylsäuren in den Rückständen der Urangewinnung vorhanden. Mikroorganismen können diese metallhaltigen Komplexe spalten und einzelne Komponenten der Komplexe in ihrem Metabolismus verwenden. Verschiedene Stämme der Gattung *Pseudomonas* nutzen Nitrationen dieser Komplexe als Elektronenakzeptor. Aus Polyphosphatkomplexen gewinnen Mikroorganismen den für den Metabolismus notwendigen Phosphor. Die organischen Komponenten dieser Komplexe können als Kohlenstoffquelle verwendet und dabei zu CO_2 oxidiert werden. Die Metallionen werden als wasserunlösliche Hydroxide, Oxide oder Salze ausgefällt. Dadurch verzögert sich ihre Migration [Macaskie1991, Francis1999, Lovley1997].

Werden Schwermetallkomplexe von Mikroorganismen gespalten, kann je nach Art des Liganden das verbleibende Schwermetall entweder eine höhere Mobilität, z. B. bei einer

Abschlussbericht

vorherigen Bindung an Huminstoffe, oder eine geringere Mobilität, bei einer vorherigen Bindung an Siderophore als der Komplex, aufweisen.

Die Aufnahme von Metallionen in die Zelle kann passiv durch Diffusion auf der Grundlage von Konzentrationsunterschieden zwischen den Zuständen in der Zelle und außerhalb der Zelle oder aktiv durch energieabhängige Transportvorgänge erfolgen. Werden für Mikroorganismen toxische Metallionen in die bakterielle Zelle aufgenommen, können diese wieder ausgeschleust, zu nicht toxischen Formen umgewandelt oder an Bakterienproteinen in der Zelle gebunden werden [Ehrlich1997, Ji 95].

Die Biosorption ist ein energieunabhängiger Prozess der Aufnahme von Metallionen und Radionukliden an der Zellwand und kann durch die physikochemischen Wechselwirkungen zwischen Metall- und Radionuklidspezies und den Zellwandkomponenten beschrieben werden. Die Adsorption der Metall- und Radionuklidspezies erfolgt dabei an der Zellwand der Mikroorganismen durch eine Bindung an die polaren Gruppen der Zellwandbausteine [Gadd1988, Tsezos 1990]. In den extrazellulären Polymeren und an der Zellwand können dabei auch Ausfällungen stattfinden, die die Grundlage für das Entstehen von Mineralen sind [Douglas1998].

Weitere Vorgänge, die die Migrationsfähigkeit von Metallen beeinflussen, sind die Reduktion und mikrobielle Laugungsprozesse. So können Metalle von Mikroorganismen enzymatisch reduziert werden. Das ist für Uran, Arsen, Mangan, Antimon aber auch Eisen sowie eine Reihe weiterer Metalle nachgewiesen worden (siehe auch Tabelle 4). Redoxreaktionen von mikrobiellen Metaboliten und Zersetzungsprodukten verändern das elektrochemische Potential und/oder den pH-Wert der Umgebung [Francis1990]. Durch diese Milieuveränderungen wird das Migrationsverhalten von Metallen beeinflusst. In Biofilmen ist durch Stoffwechselprodukte und durch den Verbrauch von Wasserstoffionen durch Sulfatreduzierer eine Verschiebung des elektrischen Gleichgewichts möglich [Ehrlich1997].

Der Transport von Schwermetallen in die Zelle ohne Energieverbrauch beruht in der Regel auf Diffusionsvorgängen. Diese Form der Aufnahme in die Zelle kann bei lebenden und bei toten Zellen erfolgen.

Die aufgenommenen Schwermetalle können innerhalb der Zelle recht unterschiedlich behandelt werden. Durch verschiedene Polymer- oder Membranstrukturen werden sie teilweise maskiert. In diesem Fall besteht keine direkte Gefährdung der Zelle. Werden die Schwermetalle in verschiedene funktionelle Verbindungen (Proteine, Lipide, etc.)

Abschlussbericht

eingebunden, können Störungen des Stoffwechsels auftreten. Diese Störungen können so weit gehen, dass sie wiederum den Zelltod nach sich ziehen.

Tabelle 4: Reduktive Metallfällung durch Mikroorganismen

Oxidierter Form des Metalls	Reduzierte Form des Metalls	Mikroorganismus
U(VI)	U(IV)	<i>Geobacter metallireducens</i> <i>Shewanella putrefaciens</i> <i>Desulfovibrio desulfuricans</i>
Cr(VI)	Cr(III)	<i>Enterobacter cloacae</i> <i>Desulfovibrio vulgaris</i>
Se(VI)	Se(0)	<i>Thauera selenatis</i>
Pb(II)	Pb(0)	<i>Pseudomonas maltophilia</i>
Tc(VII)	Tc(IV)	<i>Moraxella</i> sp. <i>Planococcus</i> sp.

Die enzymatische Reduktion von Metallen durch Mikroorganismen ist von großem Interesse, wenn der Prozess zu unlöslichen oder schwerlöslichen Verbindungen führt. Beispiele für solche in reduzierter Form nicht löslichen Metalle sind in der Tabelle 4 dargestellt [Lovley1995]. Darüber hinaus können Anionen und Liganden metallhaltiger Verbindungen durch mikrobielle Reaktionen verändert werden und dadurch zu einer Veränderung der Mobilität des Metalls führen. Dafür ist die Reduktion von Bleisulfat zu Bleisulfid mit einer höheren Löslichkeit ebenso wie die Reduktion des Radiumsulfates durch Sulfat reduzierende Bakterien ein Beispiel [McCready1980].

4.2 Bakterielle Laugung

Unter dem Begriff „Bakterielle Laugung“ sind verschiedene Prozesse zusammengefasst. Dazu zählen die indirekte und direkte Laugung sowie die mikrobiell beeinflusste elektrochemische Korrosion. Die indirekte Laugung ist ein mehrstufiger Prozess, bei dem die Laugung nicht direkt durch die Mikroorganismen erfolgt, sondern durch eine von den Mikroorganismen produzierte oder regenerierte Laugungslösung. Da es sich bei solchen Laugungsprozessen in der Regel um komplizierte Vorgänge mit verschiedenen chemischen und mikrobiologischen Prozessen handelt, soll hier am Beispiel des Pyrits ein solcher Vorgang erläutert werden.

Abschlussbericht

Als erster Schritt wird Pyrit durch Mikroorganismen zu $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ oxidiert. Eisen(III)- Sulfat ist ein starkes Oxidationsmittel, das Sulfid aus schwefelhaltigen Erzen zu elementarem Schwefel oxidiert. Der elementare Schwefel wird durch Mikroorganismen zu Schwefelsäure umgewandelt. Durch die Verschiebung des pH- Wertes in den sauren Bereich werden verschiedene Metalle aus den entsprechenden Erzen gelöst. Dieser Vorgang wird durch *Acidithiobacillus ferrooxidans*, *At. thiooxidans* und von verschiedenen Arten der Gattung *Sulfolobus* katalysiert [Hutchins1986].

Neben Schwefelsäure können auch andere mikrobielle Stoffwechselprodukte zu einem Herauslösen von Metallen aus Erzen führen. Darunter sind die von heterotrophen Mikroorganismen gebildeten organischen Säuren und Chelatoren zu verstehen. Diese werden von den Mikroorganismen in die Umgebung ausgeschieden und führen dort durch Bildung von Metallkomplexen zu einer Auflösung von Erzen.

Einige dieser Mikroorganismen, die die Laugung von Metallen fördern, sind in der Tabelle 5 dargestellt.

Tabelle 5: Mikroorganismen, die die Laugung von Metallen aus Erzen fördern [Ehrlich1986]

Mikroorganismus	Erz	Prozess zur Laugung
<i>Thiobacillus ferrooxidans</i>	Metallsulfide, Uraninit	Indirekte Oxidation
<i>Leptospirillum ferrooxidans</i>	Metallsulfide	Indirekte Oxidation
<i>Sulfolobus</i> sp.	Metallsulfide	Direkte / Indirekte Oxidation
<i>Vibrio</i> spp.	Ferromanganese	Reduktion von Mn(IV) zu Mn(II)
<i>Bacillus</i> 29	Ferromanganese	Reduktion von Mn(IV) zu Mn(II)
<i>Clostridium</i> spp.	Goethit, FeOOH, Hämatit	Reduktion von Fe(III) zu Fe(II)
<i>Enterobacter</i> sp.	Goethit, FeOOH, Hämatit	Reduktion von Fe(III) zu Fe(II)
<i>Pseudomonas chromatophila</i>	Krokoit	Reduktion von Cr(VI) zu Cr(III)
Pilze	Metallsulfide	Chelatbildung mit Zitronen- und Oxalsäure
<i>Acidithiobacillus thiooxidans</i>	Sulfidverbindungen	Laugung durch H_2SO_4

Diese mikrobiellen Wechselwirkungen mit Erzen stellen nur einen Teil der biologischen Vorgänge in der Geosphäre dar. Mikroorganismen spielen darüber hinaus in den

Abschlussbericht

Stoffkreisläufen der Natur eine wichtige Rolle. In den biogeochemischen Zyklen sind sie gemeinsam mit den Tieren und Pflanzen aktiv. Mikroorganismen nehmen bei der Mineralisierung von organischen Stoffen in der Natur eine Schlüsselstellung ein.

Diese Darstellungen verdeutlichen, wie vielfältig die Wechselwirkungen zwischen den Mikroorganismen und ihrer Umgebung sind. Sie zeigen auch, dass viele dieser Einflüsse sich nicht durch die Beschreibung einzelner mikrobiologischer oder geochemischer Prozesse erfassen lassen. Aus diesem Grunde wird vorgeschlagen, Summenparameter, die die biologische Aktivität einer vorhandenen Population beschreiben, als Grundlage für die Vorhersage des mikrobiologischen Beitrags der Freisetzung von Radionukliden zu verwenden. Ein solcher Summenparameter kann zum Beispiel die Atmungsaktivität sein.

4.3 Mikrobielle Anteil an biogeochemischen Migrationsprozessen

In der Natur und auch in Haldenkörpern finden eine Reihe von biogeochemischen Reaktionen statt. Diese Reaktionen sind in den biogeochemischen Zyklen miteinander verknüpft. So kann ein Produkt einer Reaktion den Startpunkt für eine weitere Reaktion darstellen oder im Ergebnis einer Reaktion werden die physikalisch- chemischen Bedingungen so verändert, dass eine weitere Reaktion stattfinden kann. Als Beispiel für die Reaktionsabfolge soll der Eisen- und Schwefelkreislauf dienen. Diese beiden Kreisläufe tragen erheblich zur Auflösung von sulfidischen Mineralen und zur Versauerung des Sickerwassers bei. Diese Prozesse sind gut bekannt und wurden bzw. werden in der industriellen Erzlaugung genutzt. Im folgenden Schema (Abbildung 6) wurden die verschiedenen und wesentlichsten Reaktionen und die sie katalysierenden Mikroorganismen ohne Berücksichtigung sekundärer chemischer Prozesse dargestellt. Im unteren Teil der Abbildung ist der Eisenkreislauf (blau) skizziert. An diesem sind Eisen reduzierende Bakterien und Eisen oxidierende Mikroorganismen beteiligt. Eine Vielzahl der Eisen reduzierenden Bakterien verwenden organische Kohlenstoffquellen zur Deckung ihres Kohlenstoffbedarfs. Diese einfachen organischen Verbindungen werden dabei zu Biomasse und Kohlendioxid umgewandelt. Das bei der Reduktion entstehende zweiwertige Eisen wird von anderen in der Gemeinschaft lebenden Eisen oxidierenden Mikroorganismen zur Deckung des Energiebedarfs genutzt. Diese aeroben Eisen oxidierenden Bakterien nutzen Kohlendioxid aus ihrer Umgebung als Kohlenstoffquelle. Während ihrer Tätigkeit entstehen Eisen (III) und einfache organische Stoffwechselprodukte. An dieser Stelle schließt sich der Eisenkreislauf.

Abschlussbericht

Einige Gattungen der Eisen oxidierenden Bakterien (z. B. *Acidithiobacillus* (*At.*)) nutzen auch oxidierbare Schwefelverbindungen zur Energiegewinnung. Damit stehen sie an der Schnittstelle zwischen Eisen- und Schwefelkreislauf (grün). Sie wandeln zum Beispiel Sulfide und elementaren Schwefel zu Sulfat um. Das Sulfat dient wiederum den so genannten Sulfat reduzierenden Bakterien (SRB) als Grundlage für die Elektronenaufnahme bei der Energiegewinnung. Diese Bakterien bilden aus dem Sulfat wieder Sulfid, das entweder durch phototrophe Bakterien weiter zu elementarem Schwefel oxidiert oder direkt von *Acidithiobacillus*- Arten wieder zu Sulfat umgewandelt wird. Auch hier schließt sich der Kreislauf des Schwefels wieder.

In dem dargestellten Zyklus beeinflussen verschiedene Prozesse die Mobilität von Schwermetallen und Radionukliden, z. B. durch Festlegung von Schwermetallen als Sulfide bzw. die Erhöhung der Migrationsfähigkeit von Schwermetallen durch Eisen oxidierende Bakterien.

Wie in der Abbildung 6 zu sehen ist, sind einige der Mikroorganismenarten in beiden dieser Kreisläufe vertreten. Das heißt, wenn einer der beiden Kreisläufe gestört wird, führt das auch zu einer Störung des anderen. Eine Möglichkeit wäre z. B. die Zufuhr von sauerstoffreicher Luft zu Haldenmaterial, das durch lange Lagerungszeiten anaerobe Bedingungen aufweist. Dieser Fall kann eintreten, wenn Halden umgelagert werden, die Deckschicht abgetragen wird oder durch andere Baumaßnahmen am Haldenkörper eine Belüftung vorgenommen wird. Ein begrenzter Sauerstoffeintrag ist auch mit dem Sickerwasser möglich. Für den Schwefelkreislauf würde das bedeuten, dass die Reduktion von Sulfat zu Sulfid nicht mehr stattfindet, da die daran beteiligten Sulfat reduzierenden Bakterien auf anaerobe Verhältnisse angewiesen sind. Durch das fehlende Sulfid würden weniger gelöste Schwermetalle und Radionuklide festgelegt werden können. Außerdem nimmt die Menge an Sulfat und die Versauerung im Boden zu. Dies führt wiederum zu einer erhöhten Freisetzung von Schadmetallen aus dem Haldenmaterial und zu einer Zunahme der Sulfid oxidierenden Bakterien (*Acidithiobacillus*). Eine erhöhte Anzahl an *Acidithiobacillus* im Haldenmaterial trägt zu einer verstärkten Bildung von Metallen in höheren Oxidationsstufen bei. Diese wiederum können, wie auch im Falle von Eisen(III) starke Oxidationsmittel sein. Starke Oxidationsmittel können zur Auflösung von Mineralen und Erzen beitragen. Als Resultat dieses Vorganges wird die Freisetzung von Schadmetallen aus säurelöslichen Mineralen beschleunigt. Solche Prozessketten sind in den Grubengebäuden des Uranbergbaues mehrfach nachgewiesen worden [Glombitza 1995].

Abschlussbericht

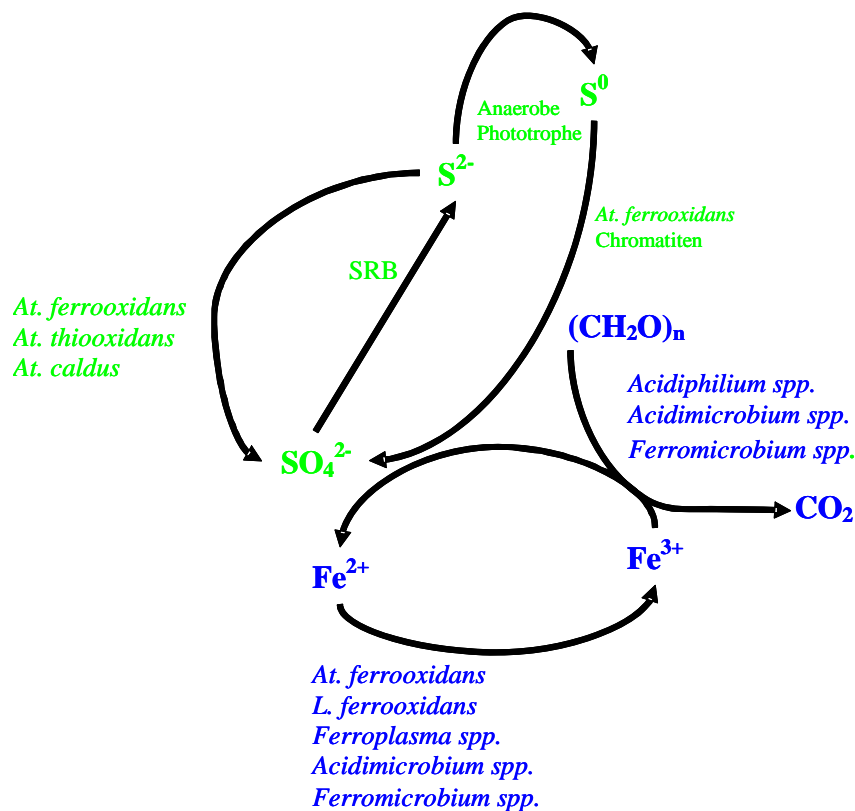


Abbildung 6: Eisen- und Schwefelzyklus nach [Amils2003]

Zu den durch Mikroorganismen veränderbaren physikalisch- chemischen Parametern des Bodens / Haldenkörpers zählen unter anderem das Redoxpotential und der pH-Wert. Zwischen dem jeweiligen Redoxpotential der Umgebung und dem Stoffwechsel der mikrobiellen Population besteht ein direkter Zusammenhang. Dieser kann wie folgt beschrieben werden: Bei der mikrobiellen Oxidation von organischen Substraten wird Energie frei, die für das Wachstum der Bakterien genutzt wird. Der freiwerdende Wasserstoff und die Elektronen werden auf andere Moleküle übertragen. Diese Moleküle (Elektronenakzeptoren) können anorganische Ionen, CO_2 , Abbauprodukte der Substrate oder komplex organische Verbindungen (Huminstoffe) sein. Diese Vorgänge erfolgen sequentiell nacheinander bis alle potentiellen Elektronenakzeptoren reduziert sind. In der Regel werden Elektronenakzeptoren sukzessive in der Reihenfolge $O_2 > NO_3^-/NO_x > Fe^{3+}$, $Mn^{4+} > Huminstoffe > SO_4^{2-} > CO_2$ verbraucht. In der Tabelle 6 sind einige mikrobielle Reaktionen in ihrer sukzessiven Reihenfolge und ihre möglichen Wirkung auf die Umgebung dargestellt [Michels2001].

Abschlussbericht

Tabelle 6: Abfolge von Reaktionen im Boden

Ausgangsverbindung	Elektronenverbrauch für	(mögliche) Wirkungen
oxidiertes Mangan	reduziertes Mangan (allg.)	Ausfällung
Manganoxide	Manganhydroxide	Ausfällung
Nitrat	Ammonium	Absinken des pH-Wertes
Sulfat	reduzierter Schwefel	Absinken des pH-Wertes
oxidiertes Sulfat und Eisen	Eisensulfid	Absinken des pH-Wertes
oxidiertes Eisen	reduziertes Eisen (allg.)	Verockerung
Eisenhydroxid	Folgereaktion	Verockerung

Eine der in dieser Aufstellung mehrfach genannten Auswirkung ist die Veränderung des pH-Wertes in der Umgebung. Unter der Umgebung ist dabei zuallererst die unmittelbare Nähe zum Reaktionsort zu verstehen. Als erste Näherung sind Ausdehnungen von 100 µm bis in den Millimeterbereich anzunehmen [Paerl1996]. Als Beispiel werden in der Abbildung 7 die lokalen Vorgänge bei der mikrobiellen Sulfidoxidation gezeigt. Zu beachten ist dabei der pH-Gradient zwischen dem Reaktionsort (FeS_2) und dem Haldenmaterial.

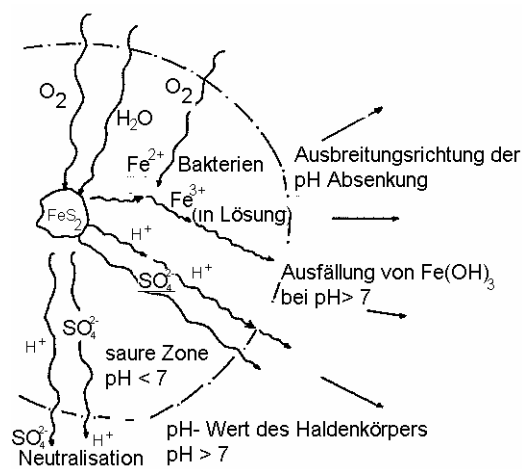
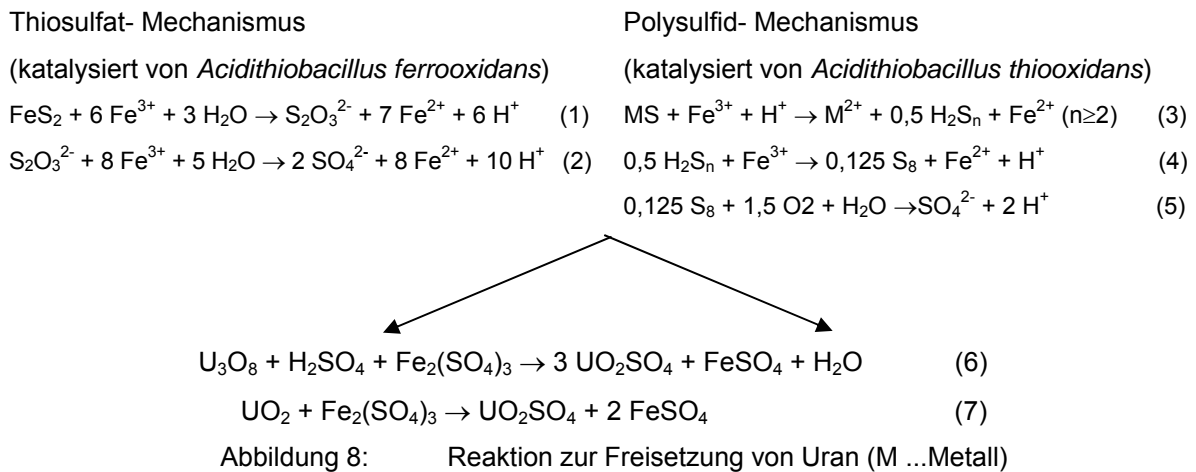


Abbildung 7: Mikrobielle Eisensulfidoxidation unter Berücksichtigung der Umgebungsbedingungen nach [LeRoux 1980]

Abschlussbericht

Erst mit fortschreitender Pyrit- Oxidation breitet sich die saure Zone mit pH- Werten von deutlich kleiner 7 weiter in das Haldenmaterial aus. Zeitlich sind für diese Verschiebungen Monate und Jahre nötig [Paerl1996].

Die Freisetzung von Uran in Anwesenheit von sulfidischen Mineralien ist ein indirekter Vorgang. Dieser Vorgang lässt sich mit den in Abbildung 8 dargestellten chemischen Gleichungen beschreiben. Die Gleichungen 1 bis 5 gehen auf Schippers et al. [Schippers 1999] und die Gleichungen 6, 7 auf Iskra et al. [Iskra1980] zurück.



Betrachtet man den Haldenkörper als Grundwassernichtleiter kann man mit ca. 10^6 Mikroorganismen je Tonne Material rechnen. Davon sind ca. 30 % aerobe chemolithotrophe Bakterien. Geht man davon aus, dass diese chemolithotrophen hauptsächlich Eisen oxidierende Bakterien sind, beträgt deren Anzahl ca. $3 \cdot 10^5$ pro Tonne Haldenmaterial. Aus der langjährigen Erfahrung der mikrobiellen Uranfreisetzung kann man von einer Freisetzungsrate von ca. $1,8 \cdot 10^{-7}$ g Uran pro Jahr und Zelle ausgehen [deSilones1991]. Mit der oben angegebenen Anzahl an Bakterien würden im Jahr 55 mg Uran aus einer Tonne Haldenmaterial freigesetzt werden können.

Wie schon angedeutet, findet im Untergrund ein Wechselspiel zwischen verschiedenen Mikroorganismen statt. Als „Gegenspieler“ der chemolithotrophen Bakterien sind in diesem Fall die Sulfat reduzierenden Bakterien (SRB) zu sehen. Nimmt man wieder ca. 10^6 Mikroorganismen je Tonne Material und ca. 9 % Sulfat reduzierende Bakterien (SRB) an, beträgt die Anzahl der SRB $9 \cdot 10^4$ pro Tonne Haldenmaterial. Aus den Untersuchungen von

Abschlussbericht

Moll et al. [Moll2002] ist bekannt, dass die SRB im sauren pH- Bereich (pH 3) ca. $1,1 \cdot 10^{-7}$ g Uran (VI) pro Jahr und Zelle zu Uran (IV) reduzieren und damit immobilisieren. Mit der oben angegebenen Anzahl an Bakterien würden im Jahr 10 mg Uran (IV) pro Tonne Haldenmaterial festgelegt werden. Im neutralen Bereich (pH 6) kann mit der gleichen Anzahl an SRB die fünffache Menge an Uran reduziert werden.

Zur Veranschaulichung dieser Zahlen soll eine Betrachtung an der Haberlandmühlen- Halde dienen. Als Grundlage für die Berechnungen dient der Bericht „Erfassung von Grunddaten zur geochemischen Modellierung einer Bergbauhalde - Halde an der Haberlandmühle“ [Pinka1999]. Aus diesem Bericht geht hervor, dass sich ungefähr 16 Tonnen Uran in insgesamt einer Million Tonnen Haldenmaterial an diesem Standort befinden. Durch die in der Halde vorkommenden chemolithotrophen Bakterien könnten 55 mg U je Tonne und Jahr freigesetzt werden. Bei einer fast neutralen Bodenreaktion (pH 6) würden durch SRB davon wieder 50 mg festgelegt. Summarisch würden damit etwa 5 mg U je Tonne Halden Material und Jahr freigesetzt werden.

Bei einer jährlichen Freisetzung von 5 mg Uran je Tonne Haldenmaterial heißt das, dass über einen Zeitraum von etwa 3000 Jahren das Uran aus der Halde ausgetragen wird. Betrachtet man das zur Zeit aus der Halde austretende Sickerwasser (80000 m³/a) und die in ihm enthaltene Menge an Uran (ca. 40 µg U/l) würden bei gleichbleibender jährlicher Fracht noch etwa 5000 Jahre Uran aus der Halde ausgetragen. Da diese Zeit in der gleichen Größenordnung liegt wie die nur durch mikrobiologische Prozesse ermittelte, kann behauptet werden, dass die mikrobiellen Prozesse einen wesentlichen Beitrag zur Freisetzung von Uran aus Halden leisten.

Die Ergebnisse der Recherche zeigen

- ◇ **dass Halden bereits gut untersucht und die Ergebnisse dazu zugänglich, für Tailings und IAA's nur wenige Daten verfügbar sind,**
- ◇ **dass in bergbaulichen Altlasten Mikroorganismen vorkommen,**
- ◇ **dass diese in Halden des Uranbergbaus aktiv sind,**

Abschlussbericht

- ◇ **dass in Halden eine wesentliche Freisetzung von Radionukliden durch Bakterien stattfindet,**
- ◇ **dass für Tailings und IAA's nur wenige Daten zur mikrobiellen Besiedlung verfügbar sind,**
- ◇ **dass auf Grund von Analogien (Vorhandensein von organischen Kohlenstoff, physikalisch-chemische Parameter, Verwendung von taubem Gestein zur Abdeckung) zwischen Halden, Tailings und IAA's eine mikrobiell katalysierte Freisetzung von Radionukliden in Tailings und IAA's möglich ist.**

Daraus wird deutlich, dass mikrobielle Vorgänge eine wichtige Rolle für die Freisetzung von Radionukliden aus bergbaulichen Altlasten spielen. Nur durch die Berücksichtigung der mikrobiellen Vorgänge gemeinsam mit den geochemischen und hydrochemischen ist eine genaue Prognose der Freisetzung von Radionukliden aus Halden, Tailings und IAA's möglich.

4.4 Bewertung des mikrobiellen Beitrags zur Freisetzung radioaktiver Stoffe

Innerhalb des Leitfadens wurden Gültigkeitsbereiche für die angestellten Betrachtungen festgesetzt. Als Randbedingungen für die Modellierung werden im Leitfaden folgende Beschränkungen vorgegeben:

1. Eine Randbedingung wird durch einen pH- Wert von größer 6 im Sickerwasser und im Boden sowie von einer Karbonat-Pufferkapazität, die das Säurebildungspotential um mindestens das Dreifache übersteigt, gekennzeichnet.
2. Ein pH- Wert von kleiner 4,5 im Sickerwasser und im Boden sowie eine Karbonat-Pufferkapazität, die kleiner ist als das Säurebildungspotential, beschreiben den zweiten Grenzfall.

In diesen beiden Fällen wird langfristig keine Erhöhung des Schadstoffaustrages erwartet. Dabei werden als treibende Kräfte für den Schadstoffaustrag physikalische, chemische und geohydrochemische Prozesse betrachtet. Biologische Vorgänge, die zu einer Veränderung der Mobilität von Radionukliden führen können, werden in den vorgeschlagenen Modellen nicht berücksichtigt.

In den Abschnitten 3 und 4.3 dieses Berichtes sind verschiedene Informationen zu mikrobiellen Populationen in bergbaulichen Altlasten zusammengetragen worden. In diesen

Abschlussbericht

Kapiteln wurde der Zusammensetzung der mikrobiellen Population besondere Beachtung in radioaktiv belasteten Umgebungen geschenkt. Für drei sächsische Uranabfallhalden (Gittersee, Schlema, Johannegeorgenstadt) wurde in der Arbeit von Selenska-Pobell 2002 beispielhaft die mikrobielle Vielfalt mit Hilfe von molekularbiologischen Methoden untersucht. Darüber hinaus wurden aus Bodenproben der Haberlandhalde (Johannegeorgenstadt) Anreicherungskulturen angelegt. Insgesamt wurden an diesen drei Standorten über 30 verschiedene Gattungen von Mikroorganismen nachgewiesen (Tabelle 2 in Abschnitt 3.1).

Zur Bewertung der Freisetzung von Schwermetallen durch Mikroorganismen ist eine Voraussetzung zu wissen, welche der gefundenen Gattungen an der Freisetzung und welche an der Festlegung von Radionukliden beteiligt sind. An Hand dieser Informationen und bekannter Raten zur Mobilisierung und Immobilisierung durch die entsprechenden Gattungen können Berechnungen zur Größe der mikrobiellen Quellen und Senken innerhalb einer bergbaulichen Altlast durchgeführt werden. In der folgenden Tabelle 7 werden die bei umfangreichen Recherchen gefundenen Raten für die Freisetzung und Festlegung von verschiedenen Schwermetallen dargestellt. An Hand dieser Angaben werden weiterhin in den nachfolgenden Abschnitten einige Berechnungen zur Freisetzung von Radionukliden durchgeführt.

Tabelle 7: Zusammenstellung von Freisetzungs- und Immobilisierungsraten

Radionuklid	Freisetzung	Immobilisierung
Uran	5,0*10 ⁻¹⁹ g je Tag und Organismus, pH 8,6 [Berthelin1977] 2,8*10 ⁻¹⁰ g je Tag und Organismus, pH 3 [Berthelin1983] 4,9*10 ⁻¹⁰ g je Tag und Organismus, pH 2 [deSilones1991]	2,4*10 ⁻¹⁴ g je Tag und Organismus, [Fredrickson2000] 1,5*10 ⁻¹⁰ g je Tag und Organismus, [Holmes2002] 3,1*10 ⁻¹⁰ - 1,5*10 ⁻⁹ g je Tag und Organismus, [Moll2002]
Blei		2,9*10 ⁻⁹ g je Organismus, [Mattuschka1994]
Thorium		10 ⁻⁴ - 10 ⁻³ g je Organismus [Iskra1980]
Radium	2,9-7,8*10 ⁻¹⁶ g je Tag und Organismus, pH 7,5 [Groudeva1999]	1-4*10 ⁻⁴ g je Organismus [Iskra1980] 4*10 ⁻¹⁷ g je Tag und Organismus, [Perez1983]

Für die Immobilisierung werden auch die an die Zellen gebundenen Mengen an Radionuklid angegeben. Das bedeutet, diese Radionuklide werden nur solange in der Halde

Abschlussbericht

zurückgehalten, wie auch die entsprechenden Bakterien in der Halde verbleiben. Als kritische Situationen können in diesen Fällen Starkniederschläge, Niederschläge nach einer langen Trockenperiode oder der Eintrag von Nährstoffen (organische Kohlenstoffquellen, Stickstoffquellen) oder Giften angesehen werden. Die Niederschläge können durch hydraulische Belastungen zu einem Ausspülen der Mikroorganismen aus den Haldenkörpern und der an ihnen gebundenen Radionuklide führen. Der Eintrag von Nährstoffen führt zu einer Veränderung in der prozentualen Zusammensetzung der bakteriellen Population der Halde. Dadurch kann je nach Verschiebung in der mikrobiellen Population eine höhere Freisetzung oder Immobilisierung erfolgen. Werden Gifte, z. B. Pflanzenschutzmittel oder Insektizide, in die Halde eingetragen, kann ein Teil der Mikroorganismen absterben und mit dem Sickerwasser aus der Halde ausgetragen werden. Auch hier ist zu erwarten, dass die an den Bakterien immobilisierten Radionuklide mit ausgespült werden.

Damit eine korrekte und umfassende Bestimmung des mikrobiellen Beitrags zur Freisetzung von Radioaktivität gewährleistet werden kann, sind die in der Tabelle 7 enthaltenen Angaben durch neue Forschungsaufgaben und durch ständige Ergänzungen aus der aktuellen wissenschaftlichen Literatur zu vervollständigen.

4.4.1 Bewertung des mikrobiellen Beitrags zur Freisetzung radioaktiver Stoffe an Standorten mit pH- Werten im Sickerwasser >6

Im Folgenden wird näher auf Messstellen der WISMUT SDAG eingegangen, deren pH-Werte über 6 liegen. Die der Auswertung vorliegenden Datenmaterialien zeigten, dass im pH- Bereich von 7 eine Art Plateau mit konstanten Urankonzentrationen vorhanden ist und bei höheren pH- Werten die Uranfreisetzung wieder zunimmt.

In der Abbildung 9 wird an Hand von Archivdaten der Wismut GmbH die Uranfreisetzung beispielhaft an drei Standorten dargestellt. Leider sind die archivierten Messdaten lückenhaft. Aussagen über einen längeren Zeitraum können deshalb nicht getroffen werden. Für den Messpunkt Warmbad stammen die dargestellten Daten aus dem Jahr 1949, für Niederschlema aus den Jahren 1950/51 und für Oberschlema aus dem Jahr 1952. Zur Orientierung wurden Linien eingefügt, die den Trend der gemessenen Daten verdeutlichen. Diese Trends zeigen in allen drei Fällen, dass es bei einer pH- Wert- Änderung in den alkalischen Bereich zu einer höheren Uranfreisetzung kommt als bei einem pH- Wert von 7. Für eine Gefährdungsabschätzung ist demnach auch im Bereich basischer pH- Werte mit einer Freisetzung an radioaktivem Material zu rechnen.

Abschlussbericht

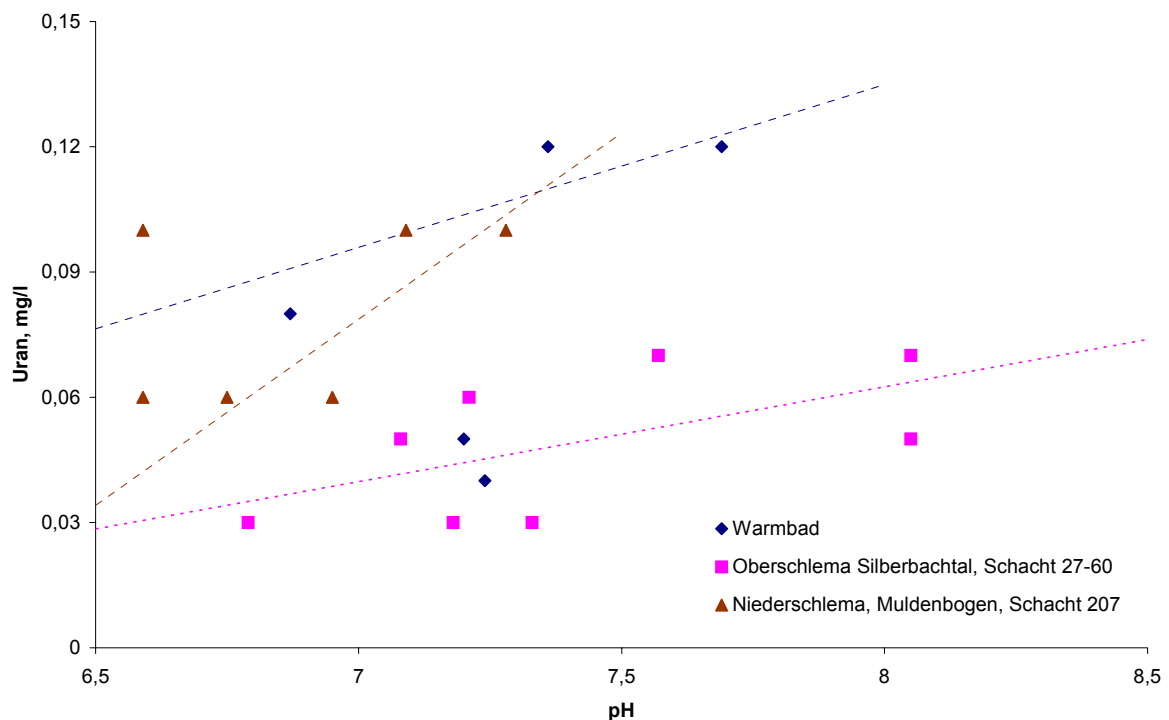


Abbildung 9: Uranfreisetzung an verschiedenen Messpunkten der Wismut SDAG
(Zeitraum 1949-1952)

In diesem pH-Bereich wurde im industriellen Maßstab die Soda alkalische Laugung zur Gewinnung von Uran durchgeführt. Bei dieser Art der Laugung wird das in IV-wertiger Form vorliegende Uran zunächst in die VI-wertige Form oxidiert und daraufhin mit Hilfe von Soda in einen wasserlöslichen Komplex überführt. Neben Uran treten in den Prozesswässern Arsen und Radium in unterschiedlich hohen Konzentrationen bzw. Aktivitätskonzentrationen auf.

Als Beispiel für die Rückstände dieses Urangewinnungsprozesses sei hier die industrielle Absetzanlage Helmsdorf aufgeführt. Das Sanierungskonzept der Wismut GmbH sieht für diese Anlage eine „trockene Verwahrung“ an Ort und Stelle vor. Dazu wird das Freiwasser seit 1995 abgepumpt und in einer Wasserbehandlungsanlage aufbereitet, bevor es in den Vorfluter, die Zwickauer Mulde, eingeleitet wird. Die infolge der Wasserspiegelabsenkung freifallenden Tailingsbereiche werden mit Geotextilien abgedeckt, mit Hilfe von Vertikaldräns (textile Dochte) zum Teil entwässert sowie geotechnisch stabilisiert und anschließend mit Material der Halde Crossen als Zwischenabdeckung überschüttet [Wismut2003].

Abschlussbericht

Zwei Jahre nach Beginn des Freiwasserabzugs wurden in den verschiedenen Wässern der IAA Helmsdorf die in Tabelle 8 aufgezeigten Werte bestimmt werden.

Die Daten in der Tabelle 8 zeigen wie erwartet hohe Konzentrationen an Karbonaten, Hydrogenkarbonaten und alkalische pH- Werte. Erfahrungen zeigen, dass in diesem pH-Bereich die Radioaktivität bei Anwesenheit von Hydrogenkarbonaten und Karbonaten zunimmt. Die Erhöhung beruht dabei auf einer Bildung von Uranylkarbonationen, die analog zum Laugungsprozess mit Soda eine Freisetzung von Uran auslösen. Die dazu benötigten Karbonationen können in dem Inventar einer Halde oder einer Tailings enthaltenden IAA vorhanden sein oder aus der Umwandlung von organischem Material (z.B. Huminstoffe) durch Mikroorganismen gebildet werden. Der letztere Prozess führt immer dann zu einer Freisetzung, wenn das organische Material zu Biomasse und anschließend zu $\text{HCO}_3^- / \text{CO}_3^{2-}$ unter aeroben oder solchen anaeroben Bedingungen umgewandelt wird, die nicht gleichzeitig mit einer Reduktion des mobilen U^{6+} zu U^{4+} verbunden sind.

Tabelle 8: Zusammensetzung des Frei-, Poren- und Sickerwassers
 des Absetzbeckens Helmsdorf (Stand 1997)

Komponente	Maßeinheit	Konzentration			
		Freiwasser	Porenwasser	Sickerwasser	Ablaufwert
U_{nat}	mg/l	7,00	2,0 - 30	14	0,5
^{226}Ra	mBq/l	1.200,00	500 - 2.000	190	200
As	mg/l	92	< 6	2,5	0,2
SO_4^{2-}	mg/l	6.000	1,0 - 10		
Cl^-	mg/l	1.600	0,1 - 2,0		
CO_3^{2-}	mg/l	2.500	< 2000		
HCO_3^-	mg/l	3.000	300 - 4.000		
pH - Wert	-	9,8	7,5 - 9,5		

Deshalb sind mikrobielle Prozesse, die zu einer Bildung von Karbonat- oder Hydrogenkarbonationen führen, von besonderem Interesse. Das sind in der Regel diejenigen Reaktionen, bei denen organisches Material in Biomasse umgewandelt und dabei CO_2 gebildet wird. Dabei kann der gesamte Kohlenstoff sowohl in aeroben als auch in anaeroben Umgebungen letztlich in CO_2 bzw. in HCO_3^- umgewandelt werden. Dadurch kommt es zu Situationen, bei denen durch eine erhöhte CO_3^{2-} - Konzentration eine Mobilisierung von Uran analog der Freisetzung durch eine Soda alkalische Laugung erfolgt. In den Wasser gesättigten Zonen kann eine gleichzeitig ablaufende Reduktion des Urans in den 4 wertigen

Abschlussbericht

Zustand und damit eine Fixierung erfolgen. Die Mobilisierung und Festlegung des Urans laufen in den Wasser gesättigten Zonen als parallele Vorgänge ab.

Die dabei ablaufenden Reaktionen der Freisetzung von Uran sind in der nachfolgenden Abbildung 10 dargestellt.

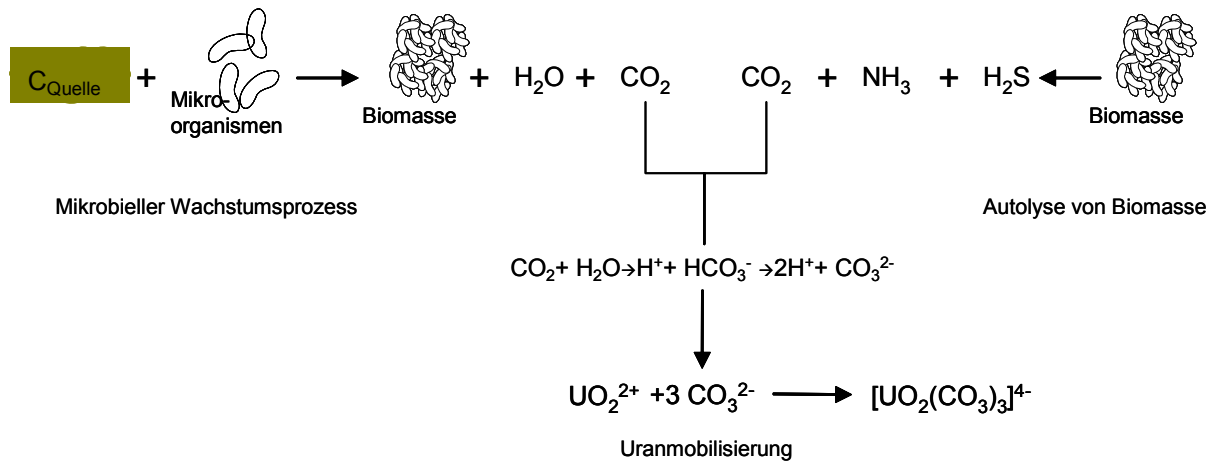


Abbildung 10: Mikrobielle Prozesse im neutralen bis basischen pH- Bereich

Diese Zustände sind deshalb in der Regel Übergangszustände in Halden und Kippen die zu zeitlich begrenzten Konzentrationsfronten führen.

Abbildung 11 zeigt solche Übergangszustände bei einem Start der mikrobiologischen Prozesse nach der Zugabe einer Kohlenstoffquelle und der Aufgabe von Wasser auf ein uranhaltiges Material. Durch die Zugabe des organischen Materials wird der HCO_3^- Gehalt in dem Wasser bedeutend erhöht und das Uran $6+$ als Uranylcarbonat ausgetragen. Die Konzentrationen liegen dabei um ein Mehrfaches über der Konzentration im zugeführten Wasser. Erst nach dem Einstellen von reduzierenden Bedingungen und in Gegenwart von Sulfat reduzierenden Mikroorganismen findet wieder eine Fixierung des Uran statt und die Konzentrationen sinken auf Werte unter $0,3 \text{ mg/l}$.

Da dieser Prozess mit dem $HCO_3^- / CO_3^{2-} / CO_2$ - Gleichgewicht verbunden ist findet er ebenfalls vorwiegend bei solchen pH Werten statt, die außerhalb des vorgegebenen Bereiches liegen.

Bei eigenen Arbeiten konnten Maximalkonzentrationen von Uranylcarbonat im Bereich von $10-20 \text{ mg/l}$ in Haldensickerwässern nach einem Trockenfallen gemessen werden [Glombitza2003].

Abschlussbericht

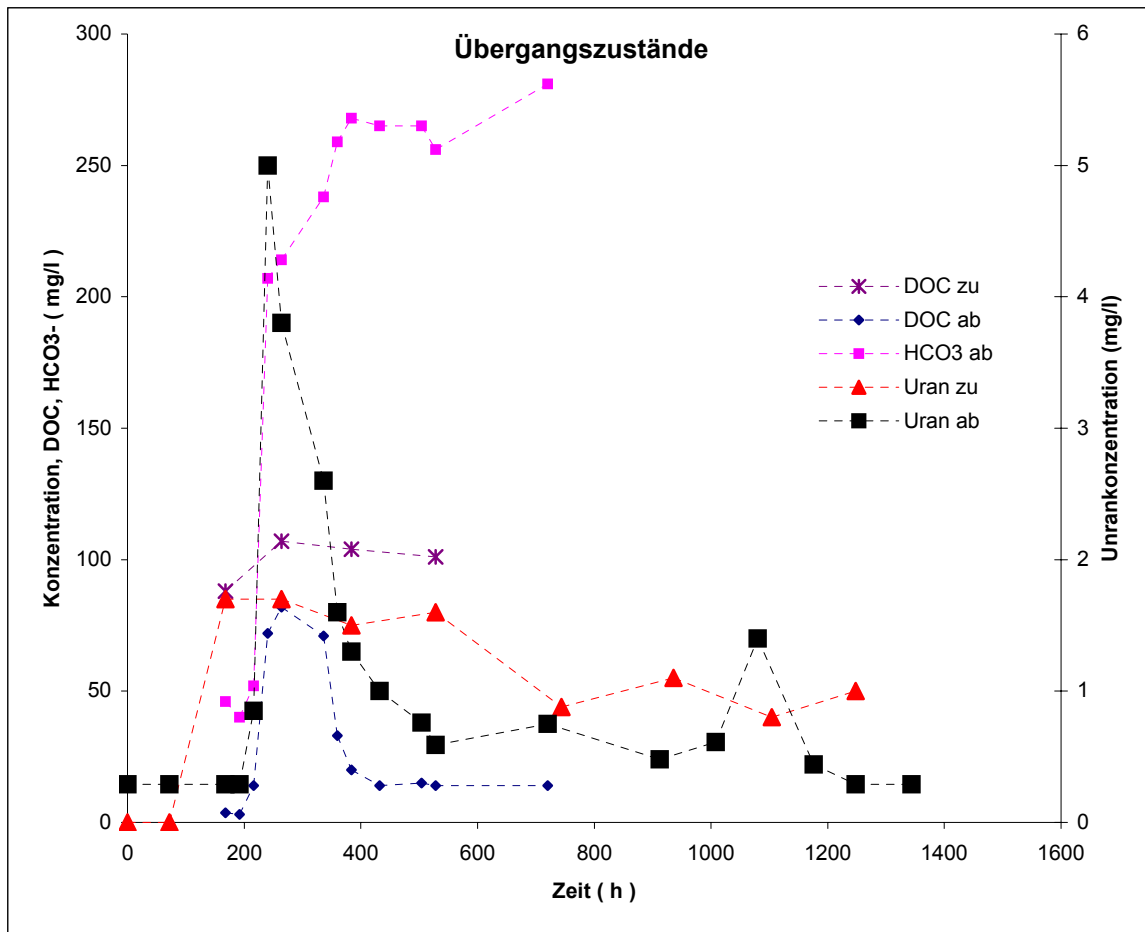
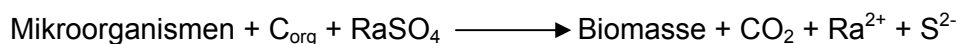


Abbildung 11: Konzentrationsverlauf von Uran, DOC und HCO₃- bei einem Übergangszustand in den reduzierenden Bereich und der Bildung von sulfatreduzierenden Mikroorganismen

Als weiteres Beispiel für den ersten Grenzfall soll die Entwicklung der Radiumfreisetzung aus sulfatischen Barium- Radium- Verbindungen betrachtet werden. Diese (Ba,Ra)SO₄ sind häufig Bestandteil in den Rückständen der Urangewinnung. Untersuchungen von McCready [McCready1980] zeigten, dass die Radiumfreisetzung bei pH 6 und kleinen Mengen an freiem Sulfat am geringsten ist. Durch Sulfat reduzierende Bakterien (SRB) erfolgt die Radium- Mobilisierung bei pH 7 [McCready1980, Groudeva1999]. Im Haldenkörper kann man von ca. 10⁶ Mikroorganismen je Tonne Material ausgehen. Von dieser Zahl sind ca. 9 % SRB, das heißt es sind 9*10⁴ SRB pro Tonne Haldenmaterial vorhanden. Aus den Untersuchungen von Groudeva et al. [Groudeva1999] ist bekannt, dass die SRB bei pH 7,5 ca. 7,3*10⁻³ Bq Radium pro Jahr und Zelle freisetzen. Mit den oben angenommenen Anzahl von 9*10⁴ Sulfatreduzierern könnten im Jahr ca. 670 Bq Radium pro Tonne Haldenmaterial

Abschlussbericht

freigesetzt werden. Parallel dazu findet auch eine mikrobielle Festlegung von Radium statt. Die Festlegung wird unter anderem durch Thiosulfat oxidierende Bakterien katalysiert. Diese stellen in den meisten Fällen ein Prozent der Gesamtpopulation in Halden, also 10^4 Zellen pro Tonne Haldenmaterial. Aus der Arbeit von Perez et al. [Perez1983] ist bekannt, dass diese Bakterien im neutralen Bereich ca. $5,6 \cdot 10^{-4}$ Bq Radium pro Jahr und Zelle festlegen. Geht man von 10^4 Zellen aus, würden im Jahr ca. 5,6 Bq Radium pro Tonne Haldenmaterial immobilisiert werden. Die Summe beider Vorgänge ergibt eine effektive jährliche Radium-Freisetzung von etwa 665 Bq pro Tonne Haldenmaterial bei pH 7 und einen Dosisbeitrag von $0,2 \mu\text{Sv}$ pro Tonne Haldenmaterial¹. Dieser Beitrag wird bei der Betrachtung laut Leitfaden nicht berücksichtigt, da er mikrobiologisch dominiert ist. Radium verhält sich als Erdalkalimetall wie Barium. In der Pedosphäre existiert es deshalb vorwiegend als Sulfat mit einer Löslichkeit von $0,21 \cdot 10^{-3}$ g/100 g Wasser als Lösungsmittel bei 20°C , die etwas geringer ist als die des BaSO_4 . Trotzdem ist es möglich, durch mikrobielle Prozesse Radium zu mobilisieren indem Mikroorganismen das Sulfat reduzieren.



Dieser Prozess ist von verschiedenen Faktoren abhängig. Zu den wichtigsten Einflussgrößen zählen der pH Wert, die Anwesenheit von Ionen wie NH_4^+ , NO_3^- oder von Schwermetallionen und die Sulfatkonzentration. Im alkalischen pH- Bereich wird Radium durch den Abbau des Sulfates freigesetzt. Die geringsten Freisetzungsraten und damit Radiumkonzentrationen wurden bei neutralen pH Werten und einem Überschuss an freien Sulfationen beobachtet. Im sauren Milieu steigen die Konzentrationen an freien Radiumionen auf Grund der Säurewirkung.

In der Tabelle 9 wurden die Veränderungen der Wasserqualität in dem Grubengebäude Pöhla im Zeitraum 1995 bis 2000 dargestellt. Dabei ist mit abnehmendem Sulfatgehalt im Flutungswasser eine Zunahme der Radiumkonzentration zu beobachten.

Das Sulfat wird in den Flutungswässern mikrobiologisch abgebaut. Das führt zu reduzierenden Bedingungen bei denen ebenfalls eine Reduktion von dreiwertigem Eisen und fünfwertigem Arsen stattfindet. Die Tabelle 9 zeigt auch, dass bei pH Werten $>6,0$ eine sich

¹ laut Empfehlung der SSK für 1 Bq ^{226}Ra = $3,8 \cdot 10^{-7}$ Sv

Abschlussbericht

ändernde und nicht konstante Freisetzung von Radioaktivität existiert. Damit wird das Postulat des Leitfadens, dass bei pH 6 der größtmögliche Austrag an Radioaktivität erfolgt, in Frage gestellt.

Tabelle 9: Veränderung der Zusammensetzung des Flutungswassers der Grube Pöhla Tellerhäuser

Zeitpunkt	pH- Wert	SO ₄ ²⁻ , mg/l	As, mg/l	Ra, mBq/l	U _{abg.} , Bq/l	Fe, mg/l	Mn, mg/l
2. Halbjahr 95	-	150	0,9	1400	20,13	17	3,7
Durchschnitt 96	6,8	40	1-4	2000	3,77-6,29	-	2-3
Juli 97	7,2	13	2,5	4600	4,28	20	1,6
Durchschnitt 99	7,3	<5	2,27	4710	1,51	10	0,77
Januar 00	7,4	<5	2,3	4500	1,13	9,3	0,7

Wenn von einer Umwandlung von 150 mg SO₄²⁻/l ausgegangen wird, dann kann mit dieser Sulfatmenge eine Radiummenge von maximal ca. 350 mg/l freigesetzt werden.

Die abgeschiedene bzw. reduzierte Sulfatmenge kann mit einer freigesetzten Aktivität von ca. 4000 mBq/l in Verbindung gebracht werden. Das bedeutet eine Mobilisierung von ca. $1 \cdot 10^{-7}$ mg Ra.

Wenn das Gleichgewichtsverhältnis von 12,6 mBq ²²⁶Ra/μg ²³⁸U zur Bewertung herangezogen wird, dann ist das Verhältnis von 4700 mBq ²²⁶Ra zu 0,1 mg ²³⁸U zugunsten des Radium verschoben worden, während bei dem Beginn der Flutungswasserbehandlung die Werte mit 1700 mBq/l und 1,6 mg U/l eine Verschiebung des Gleichgewichtes zugunsten des Uran bedeuteten.

Aus eigenen experimentellen Arbeiten für die Skalierung von Wetlands und die Steuerung der in ihnen ablaufenden Sulfatreduktion zur Schwermetall- und Radionuklidabtrennung, sind die Verbrauchsdaten an organischem Kohlenstoff für einen solchen Prozess bekannt [Glombitza2003, Glombitza2001, Glombitza2001b]. Diese liegen in Abhängigkeit von den Prozessbedingungen zwischen 75 mg– 700 mg C/g SO₄. Im Falle des Flutungswassers in Pöhla- Tellerhäuser sind demnach für die 150 mg Sulfat je Liter Wasser zwischen ca. 10– 105 mg/l Kohlenstoff einer nutzbaren Kohlenstoffquelle nötig. Bei der vollständigen Mineralisierung dieser Kohlenstoffquelle könnten dann maximal 500 mg/l HCO₃⁻ entstehen. Die vorliegenden Analysendaten für Januar 2000 zeigen HCO₃⁻- Konzentration von ca. 440

Abschlussbericht

mg/l. Der gemessene und der theoretisch ermittelte Wert stimmen damit sehr gut über ein und unterstützen die Aussage, dass die Sulfatreduktion wahrscheinlich mikrobiell katalysiert wurde. Durch die Analysen in den gefluteten Lagerstätten konnte neben dem Hydrogenkarbonat als Endprodukt der Umwandlung des organischen Kohlenstoffes auch die Existenz von Sulfidschwefel aus der Sulfatreduktion nachgewiesen werden [Pinka1999].

Analoge Prozesse, die zu einer Reduzierung des Sulfatschwefels in Anwesenheit von organischem Kohlenstoff führten, wurden ebenso in den Halden des Braunkohlenbergbau nachgewiesen [Liebner1997, Dohrmann1999, Hoth1999].

Es sind deshalb mit hoher Sicherheit ähnliche Prozesse in den Halden oder in Teilbereichen von Halden des Uranbergbaues zu erwarten.

Im alkalischen Milieu bei pH- Werten über 7 findet sowohl die Freisetzung von Uran als auch von Radium statt. Beide Vorgänge werden durch mikrobielle Populationen katalysiert. Diese Prozesse werden in der aktuellen Fassung des Leitfadens nicht berücksichtigt, da sie erstens in einem anderen pH- Bereich als den vorgegebenen ($4,5 \leq \text{pH} \leq 6$) ablaufen und zweitens von biologischen Vorgängen beeinflusst werden. Für eine Abschätzung des mikrobiellen Beitrags an der Freisetzung von radioaktivem Material im basischen pH- Bereich bildet die Auswertung des CO_2 - Gehaltes bzw. der Karbonatkonzentration und des Gehalts an organischem Kohlenstoff die Grundlage.

4.4.2 Bewertung des mikrobiellen Beitrags zur Freisetzung radioaktiver Stoffe an Standorten mit pH- Werten im Sickerwasser <4,5

In diesem Fall werden als Ausschlusskriterien ein pH- Wert von kleiner 4,5 im Sickerwasser und im Boden sowie ein Quotient von Karbonatpufferkapazität/Säurebildungspotential < 3 angesetzt.

Für den zweiten Fall wird hier die Freisetzung von Uran aus Halden bei verschiedenen pH- Werten im sauren pH- Bereich betrachtet. Auch hier wird die Freisetzung und Festlegung berücksichtigt.

In vielen bergbaulichen (und radiologischen) Altlasten tritt eine mikrobielle Population auf, in der ein großer Anteil an chemolithotrophen Mikroorganismen vorhanden ist. Darüber hinaus ist in Umgebungen mit neutralen bis schwach sauren pH- Werten eine große Anzahl von Sulfat reduzierenden Bakterien in diesen Mikrokosmen zu finden.

Abschlussbericht

Die chemolithotrophen Bakterien (z.B. *At. ferrooxidans*) oxidieren während ihres Wachstums Pyrit zu zweiwertigen Eisen und Sulfat. Dabei entstehen Wasserstoffionen. Das entstandene Eisen(II) wird von *At. ferrooxidans* zu Fe(III), einem starken Oxidationsmittel, oxidiert. Die Säure bewirkt eine weitere Auflösung des Pyrits und anderer sulfidischer Erze. Durch Eisen(III) werden säureunlösliche sulfidische Erze zerstört. Dadurch kommt es zu einer beschleunigten Zersetzung der sulfidischen Minerale und einer Freisetzung der in ihnen enthaltenen Schwermetalle.

Als Gegenspieler zu den chemolithotrophen Mikroorganismen sind die SRB in den verschiedenen Halden und auch in Tailings nachgewiesen worden. Mit fortschreitender Versauerung der Umgebung nimmt die Aktivität der Sulfat reduzierenden Bakterien innerhalb der Population ab. Durch eine kleiner werdende Anzahl an aktiven SRB wird nicht mehr so viel Sulfat zu Sulfid reduziert. Die zur Verfügung stehende Sulfidkonzentration bestimmt die Menge an Schwermetall, die als Sulfid festgelegt wird. Nimmt also die Aktivität der SRB mit sinkendem pH- Wert ab, so verringert sich auch der Anteil an festgelegten Schwermetallen am jeweiligen Standort.

Nachfolgend wird aus den bekannten Daten eine erste Berechnung für die Freisetzung und Festlegung von Uran durch Eisen oxidierende bzw. Sulfat reduzierende Bakterien vorgestellt. Die Ergebnisse der Berechnungen sind in Tabelle 10 dargestellt. Als Freisetzungs- und Festlegungsraten wurden die in Tabelle 7 genannten Raten verwendet.

Die aus den überschlägigen Rechnungen erhaltenen Werte zur Uranfreisetzung zeigen, dass bei pH-Werten unter 4,5 mit einer weiteren Freisetzung zu rechnen ist, deren Ausmaß unter anderem vom pH-Wert bestimmt wird. Da im Fall 2 des Leitfadens die Karbonatpufferkapazität erschöpft ist, kann eine weitere Versauerung der Halde (Boden, Wasser) eintreten und damit auch ein Anstieg des ausgetragenen Urans. Dieser Prozess wird zurzeit im Leitfaden nicht beachtet.

Tabelle 10: Mikrobiell katalysierte Freisetzung von Uran bei verschiedenen pH- Werten

pH- Wert	4	2	1
Eisen oxidierende Bakterien je Tonne Haldenmaterial	$3 \cdot 10^5$	$3 \cdot 10^5$	$3 \cdot 10^5$
Freisetzung, mgU/(t*a)	55	96	510
Sulfat reduzierende Bakterien je Tonne Haldenmaterial	$9 \cdot 10^4$	$9 \cdot 10^4$	$9 \cdot 10^4$
Festlegung, mgU/(t*a)	50	10	10

Abschlussbericht

Summarische Uranfreisetzung, mgU/(t*a)	5	86	500
---	---	----	-----

Die für Radium und Uran durchgeführten Berechnungen gehen von ansonsten optimalen Bedingungen für die Mikroorganismen aus. Diese Annahme ist für konkrete Standorte entsprechend zu prüfen. In Abschnitt 6 sind Vorschläge für eine stufenweise Untersuchung der Bedingungen und der mikrobiellen Population aufgeführt.

Diese Veränderung des pH-Wertes findet zuerst in unmittelbarer Nähe vom Reaktionsort statt. Bis messbare Veränderungen des pH- Wertes im Haldenkörper vor sich gehen, können Jahre vergehen [Paerl1996]. Diese zeitliche Verzögerung kann zu einem verzögertem Anstieg der Mobilisierung führen.

Für eine Abschätzung der mikrobiell katalysierten Freisetzung unter diesen Bedingungen sind der Nachweis von chemolithotrophen Mikroorganismen und von freigesetzter Radioaktivität durch gezielte Maßnahmen im Labormaßstab sowie die Ermittlung physikochemischer Parameter aus dem Monitoring der Altlasten erforderlich.

4.5 Einfluss von Mikroorganismen auf verschiedene Radionuklide

Neben den umfangreichen Untersuchungen zu den Wechselwirkungen zwischen Mikroorganismen und den Radionukliden Uran und Radium gibt es über das Verhalten der anderen Radionuklide nur wenige Informationen und Aussagen. Die vorhandene Aussagen und Analysen betreffen vor allem die Elemente Blei, Radon und Thorium.

4.5.1 Blei

Es ist bekannt, dass von Mikroorganismen sowohl die Oxidation des Bleisulfides zu Bleisulfat als auch der umgekehrte Prozess die Reduktion des Bleisulfates zu Bleisulfid unter anaeroben Bedingungen katalysiert wird. Die Löslichkeiten beider entstehender Bleiverbindungen sind sehr gering und betragen bei 20°C für das Bleisulfat $4,2 \cdot 10^{-3}$ g/100 g Wasser und für das Bleisulfid $1,3 - 8,6 \cdot 10^{-5}$ g/100 g. Daraus kann abgeleitet werden, dass die Bildung von PbS und PbSO₄ zu einer Festlegung von Blei führt. Es wird vermutet, dass neben der Bildung von schwer löslichen Bleiverbindungen über integrierte mikrobiologische Prozessschritte lösliche Bleikomplexe gebildet werden. Eine besondere Bedeutung besitzen

Abschlussbericht

dabei Alkylierungs- und Methylierungsreaktionen die zu mobilen, teilweise flüchtigen und bei di-, tri- und tetralkylierten Verbindungen teilweise zu sehr toxischen Substanzen führen können [Aldridge1989, Tayer1989].

Bei den Recherchen konnten keine weiteren Grundlagen und umfassendere Analysen für aktive mikrobielle Vorgänge, die zur Festlegung oder zur Mobilisierung von Blei führen, gefunden werden. Umfangreich sind dagegen die Biosorptionsprozesse untersucht, die zu beträchtlichen Anreicherungen von Blei in den Biomassen führen können. Dabei werden Konzentrationen von 10 % Blei in der Biomasse in *Rhizopus arrhizus* berichtet [Gadd1990].

4.5.2 Thorium

Über Thorium liegen umfangreiche Untersuchungen zur Speicherung in Biomassen vor. 0,6 % werden in der Biomasse *Aspergillus niger*, 14 % in *Penicillium* sp. und sogar 18 % in *Rhizopus arrhizus* [Tzesos1981] aus einer 129 µM Lösung angereichert. Gadd [Gadd1988] berichtet, dass aus einer 3 mM Lösung mit *Saccharomyces* sp. über 11,9 % und 13,9 % mit *Aspergillus niger* in die Biomasse aufgenommen werden. Für Thorium, wie auch für Blei, erfolgt eine Akkumulation und Anreicherung in biologischen Systemen. Diese Immobilisierung an/in der Biomasse kann im Falle einer Autolyse, einem Absterben oder einer hydraulischen Belastung der entsprechenden Mikroorganismenpopulation zu einer schubartigen Freisetzung des gespeicherten Thoriums führen. Die Autolyse und das Absterben der mikrobiellen Gemeinschaft können z. B. durch den Eintrag von Bakteriziden, Schadstoffen oder einer veränderten Nachlieferung von Nährstoffen erfolgen. Die an den Bodenpartikeln haftenden Mikroorganismen können durch eine hydraulische Belastung von den Partikeln abgetrennt werden und mit dem Wasserstrom aus der Altlast ausgetragen werden. Diese hydraulische Belastung kann im Sommerhalbjahr durch Starkniederschläge und im Winterhalbjahr durch plötzlich einsetzendes Tauwetter ausgelöst werden.

4.5.3 Radon

Zum Einfluss von mikrobiologischen Prozessen auf die Radonfreisetzung gibt es widersprüchliche und nicht eindeutige Informationen. Beim mikrobiellen Laugen von großen Mengen gebrochenem Erzmaterial der Denison Lake Mine stieg der Radongehalt in der Luft über das "akzeptable" Maß hinaus an [McCready1988]. Bei Luftanalysen im Grubenrevier Ronneburg wurden ähnliche Aussagen getroffen [Sand W.]. Dabei wurde

Abschlussbericht

vermutet, dass durch die Aktivität von *Thiobacillus* sp. Radon freigesetzt wurde. Andererseits ist jedoch anzunehmen, dass die Radonfreisetzung vorrangig auf eine Belüftung der Halden- und Grubenkörper zurückzuführen ist. Diese Belüftung hat einen doppelten Effekt auf die Radonfreisetzung. Erstens erfolgt ein intensiver Gasaustausch zwischen Haldenkörper und Umgebung, der zur Belüftung von bisher nicht am Gasaustausch beteiligten Bereichen führt und dadurch das in ihnen vorhandene Radon in einem „first flush“ Ereignis ausgetragen werden kann. Zweitens führt die Belüftung zu einem höheren Sauerstoffgehalt im Haldenkörper der zu einer Steigerung der Aktivität der aeroben *Thiobacillus* sp. führt.

5 Anregungen zum Leitfaden für die Modellierung des Wasserpfads

5.1 Modellierung des Wasserpfades im Leitfaden

Nach einer Durchsicht des „Leitfadenelements Grundwasserpfad...“ und des „Leitfadenelementes Grundwasserpfad...“ wurde festgestellt, dass ein umfassender Überblick über die Grundwassermodellierung im Allgemeinen dargelegt wird. Dabei treten einige Dopplungen in den Darlegungen, die wahrscheinlich dem Umfang dieser Arbeiten geschuldet sind, aber auch einige Ungenauigkeiten auf.

Die Ausführungen zum Radionuklidtransport kennzeichnen den Stand der Technik. Im Kapitel 8.4.2 des Leitfadenelements werden die Relationen Quellterm– Berechnung von Aktivitätskonzentrationen – Ableitung des Dosisbeitrages in einen richtigen Zusammenhang gestellt und die Kennwertprobleme zur Beschreibung der Retardation erläutert. Im Prinzip können mit den beschriebenen Modellen Transportberechnungen durchgeführt werden. Die Freisetzung der Nuklide aus der Haldenmatrix selbst kann mit derartigen Modellen nicht berechnet werden, sondern ist aus anderen geo- oder biochemischen Prozessen abzuleiten. Auf diese wird aber im Rahmen der Modellierung nicht eingegangen. Des Weiteren ist für die Berechnung und Beschreibung des Radionuklidtransports eine stufenweise Herangehensweise von einfachen zu komplizierten mathematischen Modellen skizziert.

5.2 Vergleich mit anderen Leitfäden und Prüfung der Handlungsanleitung

Handlungsleitfäden, welche die mathematische Simulation von Strömungs- und Stofftransportprozessen zum Inhalt haben, gibt es im Arbeitsumfeld von G.E.O.S. Freiberg bereits mit unterschiedlichster Zielsetzung. So gab das Landesamt für Umwelt und Geologie des Freistaates Sachsen im Jahr 1997 die „Materialien zur Altlastenerkundung“ heraus,

Abschlussbericht

welche in einem Fachband den damaligen Kenntnisstand zur Grundwassersimulation mit der Zielrichtung „Altlastenbehandlung“ zusammenfassen. Mit der Zielrichtung „Grundwasserschutz“ werden im Land Brandenburg beispielsweise Bemessungsverfahren im Rahmen der Wasserschutzzonenfestlegung empfohlen. In Abhängigkeit von der geologischen Situation, dem geologischen Kenntnisstand und weiteren Kriterien sind analytische Lösungen oder Grundwasserströmungsmodelle anzuwenden [WWT 3/1998].

Derartige Leitfäden können als eine sinnvolle und auch sehr notwendige Hilfestellung begriffen werden, um Entscheidungsträgern ohne praktischen Umgang mit Simulationsmodellen, aber auch dem einschlägig tätigen Praktiker im Ingenieurbüro eine Orientierung über die Vielzahl der auf dem Markt oder bei Hochschuleinrichtungen verfügbaren Programme zu ermöglichen und deren Berechnungsergebnisse zu bewerten. Vor allem aber, um eine Unterstützung zur sinnvollen, problembezogenen Auswahl einer geeigneten Softwarelösung zu geben und über den physikalischen Hintergrund der Programme zu informieren.

Vor diesem Hintergrund erfolgte eine Durchsicht des Leitfadens zur Grundwassermodellierung. Es wurde besonders darauf geachtet, ob ein „roter Faden“ dem Leser die Notwendigkeit des Modelleinsatzes und dessen physikalischen Hintergrund nahe bringt. Das erschien deshalb so wichtig, weil Probleme der Kennwertbeschaffung, der physikalisch richtigen Umsetzbarkeit des Problems und/oder praktische Unkenntnis der Modellanwendung manchmal Zweifel an der Sinnfälligkeit einer Grundwassersimulation bei Entscheidungsträgern entstehen lassen oder die Bewertung von Simulationsergebnissen erschweren. Dazu liefert der „Leitfaden zur Grundwassermodellierung“ die Motivation, nämlich dass „als universelles Instrument für gesicherte Ausbreitungsprognosen nur mathematische Modellierungen und Simulationen der Strömungs- und Stofftransportprozesse zur Verfügung stehen“. Leider vermitteln verschiedene modellspezifische Detailaussagen den Eindruck, dass in dem Leitfaden die Grundwassermodellierung in ihrer Komplexität untergebracht wurde, ohne jedoch den „roten Handlungsfaden“ zu verfolgen. Das betrifft auch die Ausführungen zur Modellsystematik, die sich an unterschiedlichsten Stellen finden. Dabei wäre auch dafür eine einheitliche, gekürzte und hervorgehobene Position notwendig, da die begriffliche Verwendung des Terminus „geologische Modellierung“ in der Fachöffentlichkeit sehr widersprüchlich und inkonsistent ist. So wird unter geologischer Modellierung manchmal die mathematische Simulation, also das Arbeiten mit systembeschreibenden Modellen verstanden, andernorts jedoch die

Abschlussbericht

Veranschaulichung der realen geologischen Verhältnisse in Form von Profilschnitten und Isolinienplänen, also dass, was der Modellierer als geologisches Strukturmodell versteht.

5.3 Ziel der Modellierung und Fachdetails

In dem Text des Leitfadens darf nicht der Eindruck erweckt werden, dass eine Strahlendosis mit den Modellen prognostizierbar ist (vgl. S. 12 des Leitfadens, Genauigkeitsanforderungen von 0,1 mSv/a), wenngleich Aussagen darüber das Ziel der Standortuntersuchungen sind. Vielmehr können mit Stofftransportmodellen nur Aktivitätskonzentrationen (Bq/l) berechnet werden.

Es wird als wichtig angesehen, dass in einem Leitfaden Empfehlungen zur Größenordnung des tolerierbaren Modellfehlers gegeben werden. Zur Zeit wird im Leitfaden eine Richtgröße des absoluten Fehlers von 0,1mSv/a angegeben. Diese Angabe wirft zwei Probleme auf. Erstens kann mit den vorgeschlagenen Modellen die Dosis nicht berechnet werden und zweitens ist der absolute Modellfehler in Abhängigkeit der realen Werte im Modellgebiet unterschiedlich zu bewerten. Die zweite Aussage soll hier kurz erläutert werden.

Die zulässige jährliche Strahlendosis von beruflich strahlenexponierten Personen beträgt 20 mSv und die von beruflich nicht strahlenexponierten Personen 1 mSv. Nimmt man nun für die Berechnungen, die zu diesen Jahresgrenzwerten geführt haben, einen absoluten Fehler von 0,1 mSv an sind das im Falle der beruflich strahlenexponierten Personen 0,5 % und für nicht strahlenexponierte Personen 10 % der jährlichen zulässigen Strahlendosis. Die Bedeutung des gleichen absoluten Fehlers ist in beiden Fällen offenkundig verschieden. Deshalb erscheint es als sinnvoll zu prüfen, ob die Angabe eines relativen Modellfehlers administrativ möglich und sinnvoll ist (beachte Berechnungsgrundlage Bergbau BglBb).

5.3.1 Freisetzungsmechanismus

Mit den im Leitfaden vorgesehenen Programmen können die Prozesse, die zur Freisetzung der radioaktiven Nuklide führen, nicht explizit berechnet werden, sondern nur die Migration, der radioaktive Zerfall und bei einem genannten Programm auch der Zerfall in Tochternuklide.

Den mathematischen Modellen muss das Ergebnis der Nuklidfreisetzung als Quellterm vorgegeben werden. Dabei beschreibt der Begriff Quellterm die Entwicklung der Radionuklidfreisetzung in Abhängigkeit von der Zeit, dem Klima und anderen Variablen. Die

Abschlussbericht

Beschreibung der Freisetzung erfolgt mit mathematischen Modellen in definierten Bereichen. Dazu werden in diesen Definitionsbereichen Veränderungen der Radionuklidfreisetzung beobachtet und dokumentiert. Veränderungen können dabei durch

- Konvektion (Gesamtmassenzufluss – Gesamtmassenabfluss),
- Leitung/Diffusion (auf der Basis von Konzentrationsunterschieden

$$\partial C_i / \partial t = - \operatorname{div} (D \operatorname{grad} C_i) \text{ und}$$

- einem Übergang in eine andere Phase (Stoffübergang): $\partial C_i / \partial t = \omega \beta \Delta C_i$

stattfinden [Benedek1965], [Brack1972].

Dabei ist die jeweilige resultierende Veränderung immer einer Kraft proportional, die sie auslöst.

Als beschreibende Grundgleichung für eine beliebige Größe Γ kann deshalb formuliert werden:

$\Delta \Gamma =$ Änderung Konvektion + Änderung Leitung + Änderung Stoffübergang/ Phasenübergang.

Neben diesen Veränderungen ist weiterhin eine Abnahme oder Zunahme der bilanzierten Größe möglich, wenn durch bestimmte Reaktionen eine Freisetzung und damit ein Entstehen beziehungsweise eine Vergrößerung der Konzentration verbunden ist. Ebenso sind Abscheidungen und Umwandlungen im Rahmen von chemischen Prozessen oder Stoffwandlungen möglich. Diese Vorgänge werden durch einen Reaktionsterm beschrieben, der die Änderung der Konzentration in Abhängigkeit von der Zeit und den ablaufenden Prozessen wiedergibt und als Quellen- oder Senkenterm bezeichnet wird [Benedek1965], [Brack1972]. Dabei wird von einer Quelle gesprochen, wenn die Konzentration vergrößert und von einer Senke wenn sie verkleinert wird.

Im vorliegenden Falle würde ein solcher Term die Freisetzung oder die Abscheidung bzw. Immobilisierung von Radioaktivität beschreiben und bezogen auf die Modellierung in dem Leitfadenelement die Änderung der $C_{si,r}$ in Abhängigkeit von der Zeit beschreiben, wenn eine Freisetzung oder Festlegung durch mikrobiologische oder mikrobiologisch unterstützte chemische Prozesse ablaufen würde (Gleichung (7.1)) im Leitfadenelement Grundwasser).

Neben der Änderung der Aktivität durch eine Veränderung der auftretenden Wassermenge $Q_{si}(t)$ wird somit auch eine Änderung der Aktivität $A_{si,r}(t)$ durch eine Konzentrationsänderung $C_{si,r}(t)$ ausgelöst durch eine Freisetzung oder Abscheidung bei einer konstanten Wassermenge beschreibbar.

Abschlussbericht

Als allgemeine Beschreibung kann dabei verwendet werden:

Abschlussbericht

$$\partial C_i / \partial t = \pm v_i \cdot r \quad \text{mit}$$

r ... Reaktionsgeschwindigkeit

v_i ... Stöchiometrische Umsatzkoeffizienten der Größe i

Die Kopplung an die mikrobiologischen Prozesse geht von den Zusammenhängen zwischen dem Wachstum der Mikroorganismen aus, die durch die Änderung der Zellkonzentration in einer Zeiteinheit erfasst wird und der mit diesem Wachstum verbundenen Veränderung der Aktivität, die sich durch die Freisetzung oder Abscheidung von Radionukliden und damit der Radioaktivität ergibt. Eine weitere Möglichkeit der Freisetzung oder Abscheidung verbunden mit der Vermehrung der Mikroorganismen beruht auf der Bildung von Stoffwechselprodukten.

Die Änderung der Mikroorganismenkonzentration ist eine autokatalytische Reaktion 1. Ordnung, wenn alle zum Wachstum notwendigen Stoffe in ausreichenden Mengen und im Überschuss vorhanden sind.

Das bedeutet:

$$dX/dt = f(X, t) = \mu X \quad \text{mit}$$

X ... Zellkonzentration

t ... Zeit

μ ... spezifische Wachstumsgeschwindigkeit (Gramm Biomassezunahme je Gramm Ausgangsbiomasse und Stunde = h^{-1}) [Bergter1972]

Die Zunahme der Zellkonzentration hängt von der jeweiligen Zellkonzentration und der zur Verfügung stehenden Zeit ab. Als Proportionalitätsfaktor wird die spezifische Wachstumsgeschwindigkeit verwendet, die die Änderung der Zellkonzentration bezogen auf die vorhandene Zellkonzentration und Zeiteinheit angibt.

Als Beispiel soll hier ein Wachstum von SRB auf $RaSO_4$ -haltigem Medium dargestellt werden. Das heißt die Mikroorganismen reduzieren während ihres Wachstums das Radiumsulfat zu Sulfid und freiem Radium. Für die Freisetzung von Radium durch den Abbau von Sulfat zu Sulfid bedeutet das:

$$dX/dt \sim -dSO_4^{2-}/dt \sim dRa^{2+}/dt \sim dA/dt$$

und nach Einführung der stöchiometrischen Koeffizienten oder den analogen Proportionalitätsfaktoren

Abschlussbericht

$$\frac{dX}{dt} = -\alpha_{SO_4^{2-}}^X * \frac{dSO_4^{2-}}{dt}$$
$$-\frac{dSO_4^{2-}}{dt} = \alpha_{Ra}^{SO_4^{2-}} * \frac{dRa}{dt}$$
$$\frac{dRa}{dt} = k_a \frac{dA}{dt}$$

mit

- $\alpha_{SO_4^{2-}}^X$... spezifische Menge an gebildeter Biomasse bei der Reduktion von 1 g Sulfat
- $\alpha_{Ra}^{SO_4^{2-}}$... spezifische Menge an reduziertem Sulfat bezogen auf 1 g freigesetztes Ra
- k_a ... spezifische freigesetzte Aktivität entsprechend der freigesetzten Radiummenge

Ein analoger Ansatz kann für die Freisetzung von Radioaktivität durch die mikrobielle Oxidation des Pyrits abgeleitet werden. Der Sulfidschwefel im Pyrit wird oxidiert. Das dabei entstehende Fe^{3+} oxidiert anschließend U^{4+} zu U^{6+} . Auch eine direkte U^{4+} zu U^{6+} Oxidation durch die Mikroorganismen ist möglich.

Ansatzpunkte sind:

$$dX/dt \sim -dFe^{2+}/dt$$

$$dX/dt \sim -dU^{4+}/dt \text{ und}$$

$$dX/dt \sim -dS^{2-}/dt$$

Dabei sind:

- $-dFe^{2+}/dt$... die Abnahme der Fe^{2+} Konzentration durch die mikrobielle Oxidation,
- $-dU^{4+}/dt$... die Abnahme der U^{4+} Konzentration und die Bildung von U^{6+} durch die Oxidation mit Fe^{3+} und/oder durch Mikroorganismen und
- dS^{2-}/dt ... die adäquate Oxidation des Sulfidschwefels im Pyrit zur Eisen-Freisetzung und Bildung von Schwefelsäure.

Für eine Modellierung sind dann die standortspezifischen Bedingungen in die Gleichungen einzusetzen bzw. die Abhängigkeit der spezifischen Wachstumsgeschwindigkeit von den

Abschlussbericht

Umgebungsbedingungen zu ermitteln. Dafür eignet sich die Michaelis- Menten– Monod Beziehung mit

$$\mu = \mu_{\max} S / (K_s + S)$$

mit

S ... Substratkonzentration

K_s ... Michelis- Menten- Konstante, diejenige Substratkonzentration bei der die spezifische Wachstumsgeschwindigkeit die Hälfte der maximalen Wachstumsgeschwindigkeit beträgt [Krahe2002].

Neben den Konzentrationen sind auch der Einfluss der veränderten pH Werte und Temperaturen auf ähnliche Weise zu berücksichtigen.

Dabei bietet sich an, für den eigentlichen Freisetzungprozess bzw. den ihn auslösenden Mechanismus ein auf der Wachstumskinetik beruhendes Monod – Modell zu verwenden, das durch spezifische Randbedingungen für den mikrobiellen Wachstumsprozess ergänzt ist. Ein solches Modell wurde bereits für die Freisetzung von Schwermetallen durch Mikroorganismen im Rahmen der Sickerwasserprognose zur Beschreibung mikrobieller Prozesse entwickelt und geprüft.

5.3.2 Aerationszonenmodellierung

Die Sickerwasserströmung kann durch numerische Mehrphasenmodelle, wie sie in der Reservoirmechanik von Erdöl-/Ergaslagerstätten üblich sind, beschrieben werden, aber auch mit dem ursprünglich nur für die gesättigte Filterströmung konzipierten Simulator Feflow der Wasy GmbH. Im Leitfaden wird der Hinweis vermisst, dass mit dem kommerziell vertriebenen und jedermann zugänglichen Programm Feflow die gemeinsame Berechnung der gesättigten und ungesättigten Strömung durch Verwendung der Richards-Gleichung möglich ist (in der Richards-Gleichung werden k_r-Werte durch sättigungsabhängige k-Werte und die Wasserstände durch sättigungsabhängige Saugspannungen ersetzt).

Demgegenüber können mit Sickerwasserbilanzierungsprogrammen, wie z. B. BOWAHALD, keine Sickerwasserströmungen berechnet werden. Sie dienen zur Ermittlung von Abflussbilanzen aus den Niederschlägen, können also auch die Grundwasserneubildung berechnen. Im Fall von BOWAHALD ist das auch instationär mit einer zeitlichen Auflösung bis zu einem Tag möglich. Die Sickerwasserbilanzierungsprogramme stellen den

Abschlussbericht

Grundwasserströmungsmodellen die Werte für die Quell-Senkenglieder zur Verfügung. Gewöhnlich ist das die Grundwasserneubildung oder die Grundwasserzehrung.

5.3.3 Parameteridentifikation

Im Leitfaden wird eine Zusammenstellung von Programmen zur Gewinnung geohydraulischer Parameter gegeben, welche Eingang in das Parametermodell der Simulatoren finden. Es wurde eine größere Zahl von Programmlösungen zusammengetragen, die allerdings zum Teil in Sachsen keine verbreitete Anwendung mehr finden, da es sich um alte DOS-Programme handelt, die in den 70er und 80er Jahren an der TU-Dresden entwickelt wurden. Ein wirklich wesentlicher Mangel des Leitfadens entsteht im Bereich „Parameteridentifikation“ jedoch dadurch, dass das Programm „UP“ nicht genannt wurde. Es handelt sich dabei um ein komplexes Auswertungsprogramm für Pumpversuche, welches in Sachsen Teil des Umweltinformationssystems (UIS), FIS Boden und Geologie, ist. In das Programm sind auch hydraulische Fließschemata implementiert, die auf die geologischen Verhältnisse des Mittelgebirgsraumes zutreffen (zweiseitig berandete Strömungsleiter, verwendbar für Gebirgstäler und Störungszonen). Das Programm greift auf die Datenstrukturen und Datenbestände des UIS zu. Seit 1996 wird es durch das LfUG interessierten Nutzern kostenfrei zur Verfügung gestellt. Der Nachteil dieses Programms besteht in seiner Kopplung an die UIS-Datenstruktur mit allen Folgen, die sich aus dem komplizierten Datenprocessing ergeben. Dadurch sind einer Verbreitung über den sächsischen Raum hinaus Grenzen gezogen.

Wünschenswert wäre der Hinweis im Leitfaden auf weitere aktuelle PV Auswertungsprogramme. Dazu gehört das kommerzielle Windows-Programm „Hydrotec“, das mit einer einfachen Datenstruktur auf eine allgemeine Anwendung ausgerichtet ist und mittlerweile weltweit vertrieben wird. Der hydraulische Funktionsumfang ist geringer als bei „UP“. Ein weiteres nennenswertes Programm wegen seines wissenschaftlichen Gehaltes ist die HGN-Software „PVBC“, die einen Suchalgorithmus zur Minimierung eines Fehlerfunktions verwendet und für unterschiedlichste Fließschemata einsetzbar ist.

Im Leitfadenelement wird zurzeit nicht auf den mikrobiologischen Beitrag zu den Quellen der Radionuklidfreisetzung eingegangen. Bisher findet eine Freisetzung nur im sauren pH- Bereich auf Grund chemischer Vorgänge statt. Mit den vorgesehenen Modellen wird nur das Transportverhalten und nicht die Freisetzung von Radionukliden beschrieben. Es erscheint als notwendig, den mikrobiologischen

Beitrag zur Freisetzung von Radionukliden bei den Berechnungen zu berücksichtigen. Deshalb wird eine Erweiterung der Quellterme um einen mikrobiologischen Term als sinnvoll erachtet. Des Weiteren wird vorgeschlagen an Stelle eines absoluten Modellfehlers einen relativen Modellfehler zu verwenden. Dadurch wird eine einheitlichere Schwankungsbreite der Modelle im kleineren und höheren Aktivitätsbereich im Sickerwasser aus bergbaulichen Altlasten erreicht.

Für eine bessere Abschätzung des Freisetzungsverhaltens von Radionukliden aus Halden werden eine Erweiterung der Quellterme und die Verwendung von kommerziellen hydraulischen Modellen vorgeschlagen. Ebenso sollten mikrobiologische Vorgänge, die in anderen (neutralen, basischen) pH- Bereichen ablaufen, im Leitfaden Beachtung finden.

6 Methodik zur Abschätzung mikrobieller Parameter für die Modellierung

Bisher wurden bei den Betrachtungen des Leitfadens keine mikrobiologischen Prozesse berücksichtigt. Wie die durchgeführten Recherchen zeigten, spielen mikrobielle Vorgänge sowohl bei der Freisetzung, z.B. im sauren und alkalischen Milieu, als auch bei der Festlegung von Radionukliden im neutralen Bereich z. B durch SRB eine wichtige Rolle. Um den Anteil dieser Vorgänge in die Prognose zur Freisetzung von Radioaktivität einbinden zu können, ist eine quantitative Beschreibung der mikrobiellen Prozesse in Halden, IAA's und Tailings erforderlich.

Die für eine Abschätzung des Einflusses der standortspezifischen mikrobiellen Population auf die Mobilität von Radionukliden im Standort nötigen Untersuchungen sind sehr umfangreich. Ein Grund dafür ist, dass die Mikroorganismengemeinschaft vom jeweiligen Typ der bergbaulichen Altlast abhängt. Im Raum Sachsen/Thüringen sind das unter anderem Bergehalden der Urangewinnung, Halden des Steinkohlebergbaus und durchgebrannte Steinkohleschächte. Als weiterer Grund ist die Vielfältigkeit der möglichen Wechselwirkungen zu nennen. Um die notwendigen Untersuchungen in einem vertretbarem Umfang zu halten, wird eine Stufenstrategie vorgeschlagen. In ersten, allgemeinen Untersuchungen werden Aussagen zur Anzahl und Aktivität von standortspezifischen Mikroorganismen gewonnen. Spezifische Untersuchungen von physiologisch relevanten mikrobiologischen Gruppen geben Auskunft über den Anteil der mikrobiellen Vorgänge an der Mobilisierung von Radionukliden des entsprechenden Standorts.

Abschlussbericht

In einer ersten Untersuchung sollte deshalb überprüft werden, ob grundlegende Bedingungen für die Existenz von Mikroorganismen in der Halde erfüllt werden. Dazu zählt die Verfügbarkeit an Wasser und Nährstoffen. Als erster Parameter für die Kennzeichnung der möglichen Anwesenheit einer Mikroorganismenpopulation sollte der Anteil an verfügbarem Wasser und die Konzentration an gelöstem Kohlenstoff erfasst werden. Die Bestimmung der aktuellen und potentiellen Atmungsaktivität sowie der Anzahl der kultivierbaren aeroben und anaeroben Bakterien liefert weitere Rückschlüsse auf die Konzentration an Mikroorganismen, ihre Aktivität und die Zusammensetzung der Population. Für eine Abschätzung der durch sie ausgelösten mikrobiellen Aktivität und der Abschätzung ihres Anteils an der Freisetzung von Radioaktivität werden anschließend einige weitere Untersuchungen notwendig und deshalb vorgeschlagen. Diese Untersuchungen sind in verschiedene Blöcke eingeteilt. Nach jeder dieser Gruppen kann entschieden werden, ob eine weitere Untersuchung erforderlich ist. Das Ablaufschema der vorgeschlagenen Analysen ist in der Abbildung 12 dargestellt.

Eines der Hauptprobleme bei der Bewertung von bergbaulichen Altlasten stellt auf Grund der räumlichen Ausdehnungen und der Heterogenität der Ablagerungen der Erhalt repräsentativer Proben dar. Um mit einer möglichst geringen Probenanzahl die Altlast möglichst gut beschreiben zu können, sind im Vorfeld der Probenahme Informationen hinsichtlich der Beschaffenheit und Zusammensetzung der Ablagerungen zu sammeln. Die Auswahl der Beprobungspunkte sollte an Hand der Vorab- Informationen zu erfolgen, wenn erforderlich, sollte bei der Wahl der Stellen auf Erfahrungen aus der Deponietechnik oder dem kommunalen Altlastenbereich zurückgegriffen werden. Bei der Aufstellung des Beprobungsplans ist zu beachten, dass neben festem Material auch Wasserproben je nach Standort anfallen können. Um eine Verfälschung der Ergebnisse in den mikrobiologischen Untersuchungen zu verhindern, ist bei den Probenahmen auf sterile Arbeitstechniken zu achten. Dazu zählen neben der sterilen Arbeitsweise auch die Verwendung von keimfreien bzw. keimarmen Beprobungsgerät und Transportbehältern. Sinnvoll erscheint eine Teilung des Probenmaterials vor Ort oder eine Mehrfachbeprobung, so dass bei der Untersuchung der Proben ein Teil unsteril und ein anderer steril weiterbearbeitet werden kann.

Die ersten chemischen Analysen zeigen, inwieweit grundlegende Bedingungen für eine mikrobielle Besiedlung in den Bergbaurückständen vorhanden sind. Neben den physikalisch-chemischen Parametern wie Boden und Sickerwasser pH- Wert und Eh- Wert ist das freie Wasser in festen Probematerialien zu bestimmen. Als Synonym für das freie Wasser wird der Begriff der Wasseraktivität verwendet. Die Bestimmung der Wasseraktivität wird in

Abschlussbericht

verschiedenen Industriezweigen wie der Lebensmittelindustrie, der Pharmaindustrie und der Baumaterialindustrie zur Qualitätskontrolle der Produkte eingesetzt. Für die Durchführung der a_w - Bestimmung existieren aus diesen Bereichen eine Vielzahl von Methoden und Durchführungsvorschriften. Für den Einsatz an Probenmaterialien aus Bergbahnhinterlassenschaften sind geeignete auszuwählen und auf die spezifische Anforderungen und Gegebenheiten anzupassen. Weiterhin sind die Konzentrationen von so genannten Makroelementen (C, N, P) mit gängigen chemischen Methoden (z.B. 19684- T2 (für C), EN 25663 (für N), EN ISO 11885 (für P)) zu bestimmen. Diese Elemente bilden neben dem zur Verfügung stehenden Wasser die Grundvoraussetzungen für mikrobielles Leben in allen Umgebungen. Wie in Abbildung 12 dargestellt, wird für den a_w - Wert eine Richtgröße von $a_w < 0,6$ angegeben, unter der mit nur einer sehr geringen bzw. keinen mikrobiellen Aktivität zu rechnen ist. Wird bei der Bestimmung ein a_w - Wert $< 0,6$ gefunden, kann auf eine weitere Untersuchung der Proben hinsichtlich ihres mikrobiellen Beitrags zur Freisetzung von Radioaktivität zum jetzigen Zeitpunkt verzichtet werden.

Für die Makroelemente Kohlenstoff, Stickstoff und Phosphor wird ein ungefähres Verhältnis von 100: 10: 1 angegeben. Wird nach der Bestimmung von C, P, N in etwa dieses Verhältnis erreicht, erfolgt die Bestimmung der Atmungsaktivität direkt am Probenmaterial. Weicht das Verhältnis dieser drei Elemente in der untersuchten Probe wesentlich davon ab, ist über eine Aktivierung der mikrobiellen Population zu prüfen. Dazu wird dem Material die fehlende Komponente im entsprechenden Maß zugegeben. Die Bestimmung der aktuellen bzw. der potentiellen Atmungsaktivität sind Standardmethoden der Bodenmikrobiologie und in den entsprechenden Methodensammlungen aufgeführt. Ein Nachteil beim Verwenden der Atmungsaktivität (Q_R) besteht darin, dass mit dieser Analyse hauptsächlich aerobe Mikroorganismen erfasst werden. Für die Prognose der potentiellen Freisetzung von Radionukliden würde damit die Gruppe der SRB (strikt anaerob lebend) nicht erfasst werden. Diese Bakterien katalysieren die Festlegung von Schwermetallen. Die aus den Ergebnissen der Freisetzungsprognose erhaltenen Werte könnten zu hoch sein. In einem Bereich von $0,25 < Q_R < 0,3$ sollte deshalb noch eine weitere Methode zur Charakterisierung der mikrobiellen Aktivität herangezogen werden. Zur Auswahl stehen die Bestimmung der Dehydrogenaseaktivität und die Bestimmung der Biomassezunahme nach Aktivierung mit der Chloroform- Methode. Auch diese beiden Methoden stammen aus der Bodenmikrobiologie und sind in den entsprechenden Methodensammlungen zu finden. Wird bei den Untersuchungen die angegebene Sauerstoffverbrauchsrate von $0,3 \text{ mg O}_2 / (100 \text{ g Material und Tag})$ überschritten, so müssen in einer dritten Stufe der Untersuchungen die Freisetzungsraten für radioaktive Stoffe bestimmt werden.

Abschlussbericht

Im weiteren Verlauf der Analysen nach einem positiven Befund sind molekularbiologische und / oder mikrobiologische Untersuchungen notwendig. Das Ziel dieser Arbeiten ist es, für die Freisetzung und Festlegung von Radionukliden die jeweils bekannten Gruppen von Mikroorganismen und deren Aktivität nachzuweisen. Dafür sind Nukleinsäure- Techniken auf PCR- Basis gekoppelt mit Kultivierungstechniken einsetzbar. Die Verwendung von genetischen Techniken erlaubt ein schnelles und umfassendes Screening der mikrobiellen Population in den Proben. Dazu sind die Gewinnung der DNA aus den Proben, eine anschließende Vervielfältigung von konservativen Genen und eine Sequenzierung dieser erforderlich. Die erhaltenen Gensequenzen werden dann mit Sequenzen aus Datenbanken verglichen und den entsprechenden Mikroorganismengruppen zugeordnet. Anschließend werden einzelne, relevante mikrobielle Gruppen mit den für sie optimalen Bedingungen angereichert. Das dem Untersuchungsstandort entsprechende feste Material wird mit den erhaltenen Anreicherungskulturen einer Suspensionslaugung unterzogen. Dabei werden Aussagen über maximal mögliche freigesetzte Mengen erhalten. Anschließend werden in Säulenversuchen mit dem Material des Standorts sowie mit wässrigen Proben reaktionsnahe Bedingungen nachgestellt. Diese Versuche haben unter optimalen Bedingungen für die mikrobiologischen Vorgänge stattzufinden. Die Versuchsansätze werden hinsichtlich ihrer Freisetzung bzw. Festlegung von Radionukliden analytisch begleitet. Aus der ermittelten Aktivität der mikrobiellen standortspezifischen Population können dann die zu erwartenden Freisetzungsraten abgeleitet werden, die auch die Grundlage für den mikrobiologischen Quellterm der Modellierung darstellen.

Das trifft in der Regel nur auf Zustände zu, die sich in einer Art von stationärem Fließgleichgewicht befinden und bei denen keine plötzlichen Veränderungen der Zustände auftreten.

Kritisch für die Bewertung von Freisetzungprozessen sind extreme Veränderungen der verschiedenen Parameter. So führen Starkniederschläge nach einer langen Trockenperiode zu einer plötzlichen Veränderung der Wasseraktivität und unter Umständen zum Eintrag von Nährstoffen wie organischem Kohlenstoff, Stickstoffquellen oder auch zu bakterizid und toxisch wirkenden Substanzen und Giften wie Pflanzenschutzmitteln und Insektizide. Der Eintrag von Nährstoffen und Giften führt zu einer Veränderung in der prozentualen Zusammensetzung der bakteriellen Population der Halde. Dadurch kann je nach Verschiebung in der mikrobiellen Population eine höhere Freisetzung oder Immobilisierung erfolgen. Darüber hinaus können solche Starkniederschläge durch hydraulische Belastungen zu einem Ausspülen der Mikroorganismen aus den Haldenkörpern und der an ihnen

Abschlussbericht

gebundenen Radionuklide führen. Deshalb sind zunächst solche Übergangszustände bei der Analyse auszuschalten oder bei dem begründeten Verdacht einer Freisetzung von Radionukliden in einem besonderen Kontrollprogramm zu beobachten.

Die in der Abbildung 12 angegebenen Preise sind Richtwerte und bis zum jeweiligen Abbruch angegeben (z.B: 133€ sind 20€ für a_w - Wert und 53€ für Makroelemente und 60€ für Q_R). Sie stammen aus einer ersten Vorkalkulation und müssten für die entsprechenden Probenmengen und Probenmaterialien angepasst werden. Bei der dieser Kalkulation ist die Probenahme nicht berücksichtigt.

Abschlussbericht

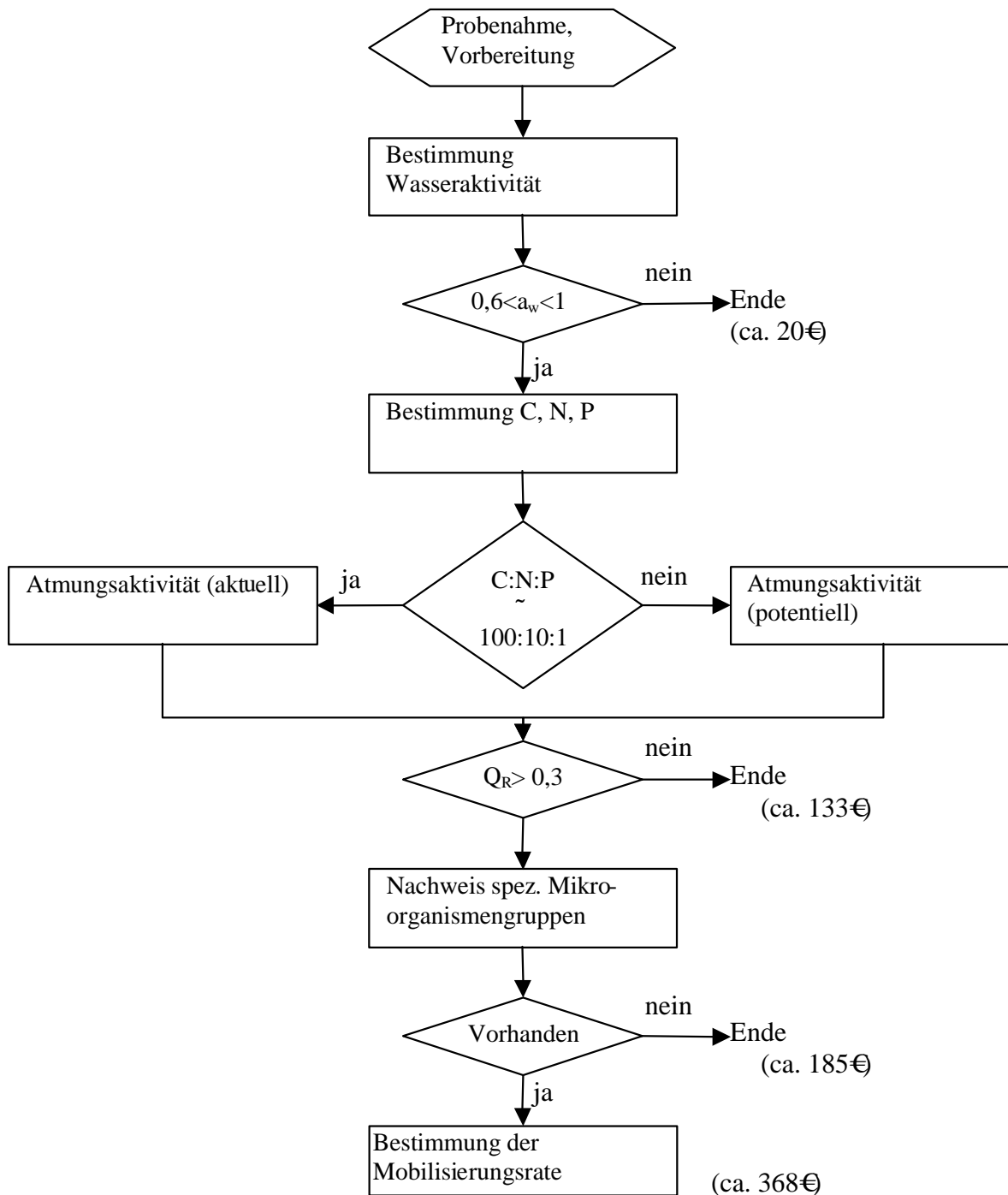


Abbildung 12: Mögliches Ablaufschema für die Analysen zur Bestimmung der mikrobiellen Aktivität

(a_w ...Wasseraktivität, Q_R ...Sauerstoffverbrauchsrate in $\text{mgO}_2/(100\text{gBoden und Tag})$)

7 Empfehlungen und Ableitung von weiterführenden Arbeiten

Die Recherche in verschiedenen Datenmaterialien zeigt erstens, dass Mikroorganismen in radioaktiv belasteten bergbaulichen Rückständen aktiv sind und sie zu einer Veränderung der Mobilität von Radionukliden beitragen. Daraus ergibt sich die Empfehlung, mikrobielle Prozesse in die Prognose zur Freisetzung von Radionukliden einzubeziehen.

Für Radionuklide, außer Uran, sind Freisetzungs- und Festlegungsraten nur für Vorgänge im Labormaßstab und unter optimalen Bedingungen für die Mikroorganismen bekannt. Für erste Vorhersagen zur Quelltermgröße können sie genutzt werden, allerdings ist für eine zuverlässige Prognose der möglichen Freisetzung unter natürlichen Bedingungen die Ermittlung der realen Raten erforderlich.

Damit eine korrekte und umfassende Bestimmung des mikrobiellen Beitrags zur Freisetzung von Radioaktivität gewährleistet werden kann, sind die in der Tabelle 7 enthaltenen Angaben durch neue Forschungsaufgaben und durch ständige Ergänzungen aus der aktuellen wissenschaftlichen Literatur zu vervollständigen und nach Möglichkeit zu einer Datenbank auszubauen.

Die Recherchen zeigten weiterhin, dass für Halden eine große Anzahl von wissenschaftlichen Arbeiten existiert. In diesen werden die mikrobiellen Vorgänge in einer radioaktiv belasteten Umgebung sowohl qualitativ als auch quantitativ beschrieben. Für industrielle Absetzanlagen und Tailings sind die Untersuchungen in einem deutlich geringeren Umfang durchgeführt worden. Eine Ergänzung der Datenbasis für IAA's und Tailings ist zur Erstellung von mikrobiellen Quelltermen in den Prognosemodellen von großer Wichtigkeit.

Die Vielfältigkeit (siehe z.B. Abbildung 5) der Wechselwirkungen zwischen den Mikroorganismen und ihrer Umgebung zeigt, dass für eine quantitative Beschreibung der einzelnen mikrobiellen Einflüsse sehr umfangreiche Untersuchungen erforderlich sind. Aus diesem Grunde wird vorgeschlagen, mit Summenparametern, die die biologische Aktivität beschreiben, zu arbeiten. Ein mögliches Schema zur Ermittlung der mikrobiellen Aktivität ist in Abbildung 12 dargestellt. Es ist hinsichtlich seiner Praktikierbarkeit und Sinnhaftigkeit an verschiedenen Standorten (z.B. saure, neutrale, alkalische Bodenreaktion) zu überprüfen. Bei der Durchführung praktischer Untersuchungen ist darauf zu achten, dass bergbauliche Altlasten mit unterschiedlichen Bodenreaktionen (sauer, neutral, alkalisch) und unterschiedlicher Art (Halde, IAA) als Modellstandorte ausgewählt werden.

Abschlussbericht

Im Leitfadenelement wird mit den vorgesehenen Modellen nur das Transportverhalten und nicht die Freisetzung von Radionukliden mit geochemischen Vorgängen beschrieben. Es ist notwendig, den mikrobiologischen Beitrag zur Freisetzung von Radionukliden bei den Berechnungen zu berücksichtigen. Eine Erweiterung der Bilanzgleichungen um Quellterme, die die mikrobiologischen und geochemischen Freisetzungsprozesse widerspiegeln, wird dringend empfohlen. Ebenso ist die Einführung von mikrobiellen und geochemischen Senken in die Prognosemodelle nötig. Um eine einheitlichere Schwankungsbreite der Modelle im kleineren und höheren Aktivitätsbereich im Sickerwasser aus bergbaulichen Altlasten zu erreichen, wird vorgeschlagen an Stelle, eines absoluten einen relativen Modellfehler zu verwenden.

Zur Analyse des Freisetzungs- und Transportverhaltens von Radionukliden sollte überprüft werden, ob eine Korrelation der Radionuklidkonzentration mit chemischen oder hydrologischen Größen vorhanden ist. Mit dem derzeitigen Kenntnisstand besitzen folgende Größen einen Einfluss auf die Aktivität: die Konzentrationen an Eisen, Karbonaten, Hydrogenkarbonaten, DOC sowie die Sickerwassermengen. Daraus leitet sich erstens die Analyse der Aktivität bei unterschiedlichen Sickerwassermengen ab. Die dabei erhaltenen spezifischen Faktoren bieten die Möglichkeit zu prüfen, ob bei veränderten Wassermengen zusätzliche Quellen oder Senken auftreten. Weiterhin könnte auch für die anderen oben genannten Größen untersucht werden, ob ein Zusammenhang zwischen der Aktivität und dem entsprechenden Parameter besteht. Die ermittelten Abhängigkeiten würden auch hier die Möglichkeit bieten, Freisetzungs- und Festlegungssituationen von Radionukliden in Abhängigkeit der Parameter zu ermitteln. Die Verwendung von diesen Korrelationen würde die Genauigkeit der Modelle erhöhen und eventuell den analytischen Aufwand bei der Überwachung verringern.

8 Zusammenfassung

Es wurden die Darstellungen im „Leitfaden zur radiologischen Untersuchung und Bewertung bergbaulicher Hinterlassenschaften“ hinsichtlich des Freisetzungsverhaltens von Radionukliden aus Halden unter Beachtung von chemischen/geochemischen Vorgängen analysiert.

Im Leitfadenelement wird zurzeit nicht auf mikrobiologische Quellen von Radionukliden eingegangen. Bisher findet nur eine Freisetzungsprognose im schwach sauren pH-Bereich auf Grund chemischer Vorgänge statt. Saures und basisches Milieu werden bei der Modellierung des Radionuklidtransports nicht berücksichtigt. Mit den vorgesehenen Modellen wird nur das Transportverhalten und nicht die Freisetzung von Radionukliden beschrieben.

Um eine Einschätzung über die mögliche Relevanz mikrobiologischer Prozesse ableiten zu können, wurden einmal Uranbergbauhalden, Tailing's und IAAs unter dem Blickwinkel ihrer Eignung für mikrobielle Lebensräume analysiert. An Hand verschiedener Datenmaterialien zur Zusammensetzung des abgelagerten Materials und der im Rahmen der Umweltüberwachung durchgeführten Untersuchungen wird deutlich, dass die grundlegenden Voraussetzungen für mikrobielles Leben hinsichtlich der erforderlichen chemischen Elemente und einer möglichen Energiequelle in den bergbaulichen Altlasten vorhanden sind. An Hand der vorhandenen Daten zum Beispiel im Archiv der Wismut GmbH kann diese Aussage für einen großen Teil der Bergbaurückstände als bestätigt angesehen werden.

Die Recherche zeigte, dass verglichen mit den Untersuchungen zur Mikrobiologie in Halden mit radioaktivem Material, es nur eine geringe Anzahl an Arbeiten über mikrobiologische Vorgänge für radioaktiv belastete Tailings, IAA's und Aquifere gibt. Für eine präzise Prognose des mikrobiellen Beitrags der Freisetzung von Radioaktivität aus diesen Standorten sind umfangreichere Kenntnisse der standortspezifischen Mikroflora dringend wünschenswert.

Bis diese Erkenntnisse vorliegen, können unter der berechtigten Annahme, dass in Tailings und IAA's ähnliche mikrobielle Vorgänge stattfinden wie in Halden, Aussagen zur mikrobiellen Aktivität in diesen Standorten abgeleitet werden. Die dabei erhaltenen Folgerungen hinsichtlich der mikrobiell katalysierten Freisetzung von Radionukliden aus Tailings und IAA's sind als erste Näherung zu verstehen.

Es wurden weiterhin ausgehend von einer Analyse der möglichen vorkommenden Mikroorganismenpopulationen die Wechselwirkungen zwischen diesen Mikroorganismen und

Abschlussbericht

ihren anorganischen Lebensräumen zusammengestellt und ausgehend von diesen Wechselwirkungen Freisetzungs- und Immobilisierungsreaktionen abgeleitet. Dabei scheinen die wichtigsten Mikroorganismenarten bei diesen Prozessen eisenoxidierende und Sulfat reduzierende Bakterien zu sein.

Mit Hilfe von Daten aus der Literatur wurden spezifische auf den jeweiligen Mikroorganismus bezogene Freisetzungs- oder Stoffwandlungsraten abgeleitet, die als Grundlage für eine Einschätzung möglicher Stoffausträge verwendet worden sind. Ein Vergleich mit aktuellen Daten in Haldensickerwässern zeigt als Ergebnis annähernd sinnvolle Resultate. Auf Grund der industriellen Nutzung der mikrobiellen Prozesse sind für die Freisetzung und Festlegung von Uran Raten unter natürlichen Bedingungen bekannt. Diese können zur Bestimmung der mikrobiellen Quellen und Senken von Uran in Halden genutzt werden. Für andere Radionuklide sind solche Raten nur für Vorgänge im Labormaßstab und unter optimalen Bedingungen für die Bakterien bekannt. Für erste Vorhersagen zur Quelltermgröße können sie genutzt werden, allerdings ist für eine zuverlässige Prognose der möglichen Freisetzung unter natürlichen Bedingungen die Ermittlung der realen Raten erforderlich.

Ebenso wurde das Verhalten in pH- Bereichen analysiert, die außerhalb der gegenwärtig im Leitfaden berücksichtigten pH- Werte zwischen 4,5 und 6 liegen. Dabei ist ebenfalls zu sehen, dass insbesondere bei sauren pH- Werten eine beträchtliche Freisetzung durch Mikroorganismen erfolgen kann. Sowohl die Freisetzung von Uran als auch von Radium findet im alkalischen Milieu ($\text{pH} > 7$) statt. Beide Vorgänge werden durch eine aktive mikrobielle Population katalysiert. Diese Prozesse werden in der aktuellen Fassung des Leitfadens nicht berücksichtigt, da sie erstens in einem anderen pH- Bereich als den vorgegebenen ($4,5 \leq \text{pH} \leq 6$) ablaufen und zweitens von biologischen Vorgängen beeinflusst werden. Für eine Abschätzung des mikrobiellen Beitrags an der Freisetzung von radioaktivem Material im basischen pH- Bereich bildet die Auswertung des CO_2 - Gehaltes bzw. der Karbonatkonzentration und des Gehalts an organischem Kohlenstoff die Grundlage.

Für die Modellierung des Wasserpfadens wurde der Einbau von Quellen und Senkengliedern empfohlen, die diese mikrobiologischen Prozesse berücksichtigen. Des Weiteren wird vorgeschlagen, an Stelle eines absoluten Modellfehlers einen relativen Modellfehler zu verwenden. Dadurch wird eine einheitlichere Schwankungsbreite der Modelle im kleineren und höheren Aktivitätsbereich im Sickerwasser aus bergbaulichen Altlasten erreicht.

Für eine bessere Abschätzung des Freisetzungsverhaltens von Radionukliden aus Halden werden eine Erweiterung der Quellterme und die Verwendung von kommerziellen

Abschlussbericht

hydraulischen Modellen vorgeschlagen. Ebenso sollten mikrobiologische Vorgänge, die in anderen (neutralen, basischen) pH- Bereichen ablaufen, im Leitfaden Beachtung finden.

Für die erste Charakterisierung des Haldenmaterials zur Einschätzung der Sinnfälligkeit einer möglichen mikrobiellen Freisetzung von Radionukliden wurde ein Algorithmus zur Vorgehensweise zusammengestellt. Auf Grund der Vielfältigkeit der mikrobiellen Einflüsse auf die Mobilität von Radionukliden wird vorgeschlagen, Summenparameter, die die biologische Aktivität beschreiben, als Grundlage für die Vorhersage des mikrobiologischen Beitrags der Freisetzung von Radionukliden zu verwenden. Ein solcher Summenparameter kann zum Beispiel die Atmungsaktivität sein.

Abschlussbericht

9 Glossar

3d- Metalle	Bezeichnung für die Nebengruppenelemente, der 4. Periode im Periodensystem.
acidophil	Organismen, die optimal an einen niedrigen pH- Wert (pH 4 und niedriger) angepasst sind
aerob	Bezeichnung für die Lebensweise von Organismen, die zum Leben Sauerstoff benötigen
anaerob	Bezeichnung für die Lebensweise von Organismen, die zum Leben keinen freien Sauerstoff benötigen
Atmungsaktivität	beschreibt den biochemischen Sauerstoffbedarf und gibt die Menge an Sauerstoff an, die Mikroorganismen in einer Probe in einem bestimmten Zeitraum bei einer Temperatur von 20° C verbrauchen, um die Inhaltsstoffe der Probe aerob abzubauen.
Autolyse	bezeichnet die Zersetzung der mikrobiellen Zelle durch zelleigene Enzyme
autotroph	Aufbau zelleigener Kohlenstoffverbindungen aus anorganischen Kohlenstoffquellen (CO ₂)
Bakterizid	ist eine Substanz, die durch eine Schädigung der Bakterienzelle den Tod des Bakteriums herbeiführt.
chemolithotroph	sind Mikroorganismen, die ihre Energie aus der Oxidation anorganischer Substanzen gewinnen.
chemoorganotroph	sind Mikroorganismen, die ihre Energie aus der Oxidation organischer Substanzen gewinnen.
first flush	bezeichnet typischer Weise die anfänglichen Abflüsse bei Starkniederschlägen. Sie enthalten einen großen Anteil der Gesamtschadfracht in einem relativ geringen Teil der gesamten Abflüsse des Starkniederschlags.
grazing	darunter wird das Vernichten von Mikroorganismenpopulationen durch Protozoen verstanden

Abschlussbericht

heterotroph	Aufbau zelleigener Kohlenstoffverbindungen aus organischen Kohlenstoffquellen
k_f- Wert	kennzeichnet die Durchlässigkeit und Permeabilität in Wasser gesättigten Böden
Nodule	geologischer Begriff, der ein kleines Stein- oder Mineralkluster, ähnlich eines Kristallisationskeims beschreibt
Rate	Größe, die sich auf eine Zeiteinheit bezieht. Sie wird als ein Maß, wie viel Uran pro Zeiteinheit freigesetzt wird und kann zu Vergleichen und Prognosen herangezogen werden.
RNA	Abkürzung für Ribonukleinsäure
ubiquitär	steht für „überall vorkommend“ oder „allgemein verbreitet, allgegenwärtig“. Der Begriff wird in der Mikrobiologie verwendet, um die weltweite Verbreitung einer mikrobiellen Gattung zu beschreiben.
Wasseraktivität (a_w-Wert)	stellt den Quotienten aus dem Wasserdampfdruck des Substrates (P _D) und dem Sättigungsdruck (P _S) des reinen Wassers dar. Sie ist ein Maß für das frei verfügbare Wasser, das für viele von Enzymen katalysierte Reaktionen und vor allem für das Wachstum von Mikroorganismen von entscheidender Bedeutung ist.

Abschlussbericht

10 Quellen

Verweis	Quelle
Aldridge1989	The biological properties of Methyl and Ethyl Derivation of Tin and lead, in: The biological alkylation of heavy elements Eds. P. J. Craig, F. Glockling The royal Society of Chemistry London 1989
Balkwill1989	Balkwill DL. 1989. Numbers, diversity, and morphological characteristics of aerobic, chemoheterotrophic bacteria in deep subsurface sediments from a site in south carolina. Geomicrobiology journal 7: 33-52
Benedek1965	Bendek P., Laszlo A., Grundlagen des Chemieingenieurwesens , VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig 1965
Bergeter1972	Bergter F., Wachstum von Mikroorganismen Experimente und Modelle, VEB Gustav Fischer Verlag Jena 1972
Berthelin1977	Berthelin J., Belgy G., Magne R.. Proceedings Conference Bacterial Leaching, 251-260, 1977
Berthelin1983	Berthelin J., Munier-Lamy C.. Environmental biogeochemistry Ecol Bull, 35, 395-401, 1983
Boyle1982	Boyle R.W.. Geochemical prospecting for thorium and uranium deposits, Develop. Econ. Geol. 16, Elsevier-Scientific Publ. Co., Amsterdam-Oxford-New York, 498 S. 1982
Brack1972	Brack G.. Reihe Automatisierungstechnik Band 115. VEB Verlag Technik, Berlin, 1972
C&E2001	Hähne, R. et al.. Mineralogisch / geochemische Systematisierung von Lagerstätten des Uranerz- und Altbergbaus in Sachsen, Sachsen - Anhalt und Thüringen, Abschlussbericht, Chemnitz, 2001
deSilones1991	de Siloniz M.I., Lorenzo P., Perera J.. Microbiologia, 7/2, 82-89, 1991
Dohrmann1999	Dohrmann H., Knöllner K., in UFZ Bericht 25, 60– 70, 1990
Douglas1998	Douglas S, Beveridge TJ, Mineral formation by bacteria in natural microbial communities, FEMS Microbiology Ecology 26, 79- 88, 1998
Ehrlich1986	Ehrlich HL, What types of microorganisms are effective in bioleaching, bioaccumulation of metals, ore, beneficiation and desulfurization of fossil fuels?, Biotechnology and Bioengineering Symp. No. 16, 1986, 227- 237
Ehrlich1997	Ehrlich HL, Microbs and metals, Appl microbiol biotechnol 48, 687-692, 1997
Francis1990	Francis AJ. 1990. Microbial dissolution and stabilisation of toxic metals and radionuclides in mixed wastes. Experientia 46: 840- 851
Francis1999	Francis A.J. Bioremediation of Contaminated Soils, 239-271, 1999
Fredrickson2000	Fredrickson J.K., Kostandarithes H.M., Li S.W., Plymale A.E., Daly M.J.. Appl. Environ. Microbiol., 66/5, 2006-2011, 2000
Gadd1988	Heavy metal and radionuclides uptake by fungi and yeast in: Biohydrometallurgy Science and Technology letters Eds. P.R. Norris, D.P. Kelly Kew Surrey U.K. 1988
Gadd1990	Fungi and Yeast for Metal accumulation, in: Microbial Mineral Recovery Eds: H.L.Ehrlich, Corale L. Brierley McGraw-Hill Publishing Company 1990
Geißler2003	Geißler A.. Molekulare Analyse der bakteriellen Diversität in Uranabrauhalden, Diplomarbeit, TU Bergakademie Freiberg, 2003
Gliesche1996	Gliesche C.G.. Schriftenreihe Wasserforschung Bd. 1: Hrsg. von B. Weigert, Berlin: Wasserforschung e.V., 1996

Abschlussbericht

- Glombitza1995 F.Glombitza, L.Eckardt, A.Hummel, R.Löffler, J.Schreyer, K.Nindel, U.Zimmermann. in: Biohydrometallurgical Processing Volume II, Eds.: C.A. Jerez, T.Vargas, H. Toledo, J. V. Wirtz, pp. 315 – 322, Universidad de Chile 1995
- Glombitza2001a Glombitza F., Karnatz F., Janneck E., Fischer H.. in: Proceedings of the International Biohydrometallurgy Symposium, Process Metallurgy 11 B, Eds. V.S.T. Ciminelli O. ;Garcia Jr., pp 459 – 467, Elsevier 2001
- Glombitza2001b Glombitza F.. Waste management. 21, 197- 203, 2001
- Glombitza2003 Glombitza F., Karnatz F., Fischer H., Pinka J., Janneck E.. in: Proceedings of the 15th International Biohydrometallurgy Symposium, 575 – 583, 2004
- Groudeva1999 Groudeva V.I., Groudev S.N.. Biohydrometallurgy and the environment toward the mining of the 21st century part A, 319-326, 1999
- Günther2003 Günther A. et al.. Wissenschaftlich- Technische Berichte FZR-400, 4-5, 2003
- Holmes2002 Holmes D.E., Finneran K.T., O'Neil R.A., Lovley D.R.. Appl. environ. microbiol., 68/5, 2300-2306, 2002
- Hoth1999 Hoth N., Feldmann H., Rinker A., Boy S., Kornjaew A., Haefner F., UFZ Bericht 25, 92-106, 1999
- Hutchins1986 Hutchins, S. R., Davidson, M. S., Brierley, J. A., Brierley, C. L., Microorganisms in Reclamation of Metals, Ann. Rev. Microbiol. 40, 311-336 (1986)
- Iskra1980 Iskra A.A., Nosov V.D., Shatalov V.V.. Proceedings Use of microorganisms in Hydrometallurgy, Pecs, Hungary 71-84, 1980
- Ji1995 Ji G, Silver S, Bacterial resistance mechanisms for heavy metals of environmental concern, J of industrial microbiology 14, 61-75, 1995
- Kirchner & Ehlers 2000 Kirchner G., Ehlers H.. Zum Einfluß von Fulvosäuren auf die Radionuklidverlagerung in Böden. In: Verhandlungen der DPG, Physik Verlag, Bremen, 108, 2000
- Krahe2002 Krahe M., Biochemical Engineering, Ullmann`s Encyclopedia of Industrial Chemistry, 2002
- LeRoux1980 le Roux N.M., Wakerley D.S.. Biogeochemistry of ancient and modern environments, 451-457, 1980
- Liebner1997 Liebner F., Katzur J.. Mitteil. der Dt. Bodenkdl. Gesell., 83, 175–178, 1997
- Lovley1995 Lovley DR, Bioremediation of organic and metal contaminants with dissimilatory Metal reduction, J Ind Microbiol 14, 1995, 85-93
- Lovley1997 Lovley DR, Coates JD, Bioremediation of metal contamination, Current Opinion in Biotechnology 8, 285-289, 1997
- Macaskie1991 Macaskie LE, The application of biotechnology to the treatment of wastes produced from the nuclear fuel cycle: Biodegradation and bioaccumulation as a means of treating radionuclide-containing streams, Critical reviews in Biotechnology 11/1, 41-112, 1991
- Mattuschka1994 Mattuschka B., Straube G., Trevors J.T.. BioMetals, 7,201-208, 1994
- McCready1980 McCready R.G.L.. Hydrometallurgy, 5, 109- 116, 1980
- McCready1988 Progress in the bacterial leaching of metals in Canada. in: Biohydrometallurgy Science and Technology letters Eds. P.R. Norris, D. P. Kelly, Kew Surrey U.K. 1988
- Merkel2002 Merkel B. J., Planer-Friedrich B.. Grundwasserchemie, Springer-Verlag, 2002
- Michels2001 Michels J., Track T., Gehrke U., Sell D.. Biologische Verfahren der Bodensanierung, Hrsg. Umweltbundesamt Fachgebiet III 3.6, 2001

Abschlussbericht

Moll2002	Moll H., Merroun M., Selenska-Pobell S., Bernhard G.. Jahresbericht FZ Rossendorf, 31, 2002
Naamoun2002	Naamoun T.. Hydrogeochemical and Radiometric Investigation of the Uranium Tailings Schneckenstein, Diss., TU BAF, 2002
Paerl1996	Paerl H.W., Pinckney J.L.. Microb. Ecol., 31/3, 225-247, 1996
Perez1983	Perez J., Torma A.E., Itzkovitch I.J.. Recent progress in biohydrometallurgy (eds. Rossi, Torma) 643-656, 1983
Perez1983	Perez J., Torma A.E., Itzkovitch I.J.. Recent progress in biohydrometallurgy (eds. Rossi, Torma) 643-656, 1983
Pinka1999	Pinka J.. Bericht Erfassung von Grunddaten zur geochemischen Modellierung einer Bergbauhalde - Halde an der Haberlandmühle, 1999
Pompe2000	Pompe S., Schmeide K., Reich T., Hennig C., Funke H., Roßberg A., Moll H., Heise K.H., Bernhard G.. Wissenschaftlich- Technische Berichte FZR-318, 1, 2001
Sand W	persönliche Mitteilung
Sand1995	Sand W, Gehrke T, Hallmann R, Schippers A.. Appl. microbial. biotechnol. 43, 961-966, 1995
Scheinost2004	Scheinost A.C. et al.. Wissenschaftlich- Technische Berichte FZR-419, 39-41, 2004
Schippers1999	Schippers A., Sand W.. App. environ. microbiol., 65/1, 319- 321, 1999
Schlenker2000	Schlenker S.. Radionuklide als Tracer für Transferprozesse und Bodenentwicklung in Forstböden, Diss., TU BAF, 2002
Selenska-Pobell2002	Selenska-Pobell S 2002. Diversity and activity of bacteria in uranium waste pile. in: Interactions of microorganisms with radionuclides eds.: Keith-Roach, Livens. 225-254
Suzuki2003	Suzuki Y., Kelly S.D., Kemner K.M., Banfield J.F.. Appl. Environ. Microbiol., 69, 1337-1346, 2003
Tayer1989	Methylation of poorly soluble metal compounds: Some environmental implications, in: The biological alkylation of heavy elements Eds. P. J. Craig, F. Glockling The royal Society of Chemistry London 1989
Tzesos 1990	Engineering aspects of Metal binding by biomass in: Microbial mineral recovery Eds: H. L. Ehrlich, C. Brierley Mc Graw Hill Publishing company 1990 p, 325 - 339
Tzesos1981	Tzesos M., Volesky B.. Biotechnol. Bioeng., 23, 583 – 604, 1981
Wismut2003	http://www.wismut.de/PDF/umweltbericht2003.pdf , 02.06.2005
WWT	3/98
hypersoil2004	http://hypersoil.uni-muenster.de/0/04/06.htm , 14.09.2004

Anlage 1

	Titel	Autoren	Zeitschrift	Jhg, pp, Jahr
1.	Bioleaching of indian uranium ores	Agate AD	Recent progress in biohydrometallurgy (eds. Rossi, Torma)	325-330, 1983
2.	Evidence for microbial iron reduction in a landfill leachate-polluted aquifer (Vejen, Denmark)	Albrechtsen HJ, Christensen TH	Appl environ microbiol	60/11, 3920-3925, 1994
3.	Cr(VI) reduction by sulfidogenic and nonsulfidogenic microbial consortia.	Arias YM, Tebo BM.	Appl Environ Microbiol	69/3, 1847-53, 2003
4.	Physicochemical factors of natural reservoirs affect the transformation and exchange of the heavy metals toxic to microbes	Babich H, Stotzky G	Environmental Biogeochemistry, eds Hallberg R [Ecol. Bull.]	35, 315-323, 1983
5.	Numbers, diversity, and morphological characteristics of aerobic, chemoheterotrophic bacteria in deep subsurface sediments from a site in south carolina	Balkwill DL	Geomicrobiology journal	7, 33-52, 1989
6.	Phylogenetic characterization of bacteria in the subsurface microbial culture collection	Balkwill DL et al.	FEMS Microbiol Rev	20/3-4, 201-16, 1997
7.	Activated sludge biotreatment of sulphurous wate emissions	Barbosa VL, Burgess JE, Darke K, Stuetz RM	Reviews in Environmental Science and Bio/Technology	1/4, 345-362, 2002
8.	A proposed technique for measuring in situ the oxidation rate in biooxidation and bioleach heaps	Bennett JW, Ritchie AIM	Hydrometallurgy	72/1-2, 51-57, 2004
9.	Some Aspects of the mechanisms of solubilization and insolubilization of uranium from granites by heterotrophic microorganisms	Berthelin J, Belgy G, Magne R	Conference Bacterial Leaching	251-260, 1977
10.	Microbial mobilization and preconcentration of uranium from various rock materials by fungi	Berthelin J, Munier-Lamy C	in Environmental biogeochemistry Ecol Bull (Stockholm) ed. Hallberg R	35, 395-401, 1983
11.	Metal-microbe interactions: contemporary approaches	Beveridge TJ et al.	Adv microb physiol	38, 178-243, 1996
12.	Facultative-thermophilic Thiobacillus-like bacteria in metal leaching	Bierrley JA	Biogeochemistry of acient and modern environments	445-450, 1980

Anlage 1

	Titel	Autoren	Zeitschrift	Jhg, pp, Jahr
13.	Development of a bioremediation process for mining wastewaters	Blumenroth P, Bosecker K, Michnea A, Varna A, Sasaran N	Biohydrometallurgy and the environment toward the mining of the 21st century, part B, eds Amils R, Ballester A	547-558, 1999
14.	Comparison of acid mine drainage microbial communities in physically and geochemically distinct ecosystems	Bond PL, Druschel GK, Banfield JF	Appl Environ Microbiol	66/11, 4962-71, 2000
15.	Phylogeny of microorganisms populating a thick, subaerial, predominantly lithotrophic biofilm at an extreme acid mine drainage site	Bond PL, Smriga SP, Banfield JF	Appl Environ Microbiol	66/9, 3842-9, 2000
16.	Bioleaching: metal solubilization by microorganisms	Bosecker K	FEMS Microbiology Reviews	20, 591-604, 1997
17.	Microbial leaching in environmental clean-up programmes	Bosecker K	Fundamental and applied biohydrometallurgy, eds. Lawrence, Branion, Ebner	533-536, 1986
18.	Bacterial leaching of a karbonate bearing uranium ore	Bosecker K, Wirth G	Biogeochemistry of acient and modern environments	577-582, 1980
19.	Microbial Leaching of Metals	Brandl H	Biotechnology (ed. Rehm)	Vol 10, 191-206, 2001
20.	Investigations of increased biological in situ leaching of the "Old Deposit" of the Preussag Rammelsberg ore mine	Brauckmann B, Poppe W, Beyer W, Lerche R, Steppke H-D	Science and technology letters	521-523, 1988
21.	Biogenic extraction of uranium from ores of the grants region	Brierley CL	Metallurgical applications of bacterial leaching	345-363, 1978
22.	Microbial ecology assessment of a mixed copper oxide/sulfide dump leach operation	Bruhn DF, Thompson DN, Noah KS	Biohydrometallurgy and the environment toward the mining of the 21st century, part B, eds Amils R, Ballester A	799--808, 1999
23.	Effect of the pH and Eh on the chemical and biological leaching of a low grade uranium ore	Bruynesteyn A, Vizsolyi A, Walden CC	Use of microorganisms in Hydrometallurgy, Pecs, Hungary	85-93, 1980
24.	Physico-chemical models for heavy metal transport in streams	Chapman BM, James RO	Biogeochemistry of acient and modern environments	373-381, 1980

Anlage 1

	Titel	Autoren	Zeitschrift	Jhg, pp, Jahr
25.	Diversity and ubiquity of bacteria capable of utilizing humic substances as electron donors for anaerobic respiration.	Coates JD et al.	Appl Environ Microbiol.	68/5, 2445-52, 2002
26.	Recovery of humic-reducing bacteria from a diversity of environments	Coates JD et al.	Appl Environ Microbiol	64/4, 1504-9, 1998
27.	Ubiquity and Diversity of Dissimilatory (Per)chlorate-Reducing Bacteria	Coates JD et al.	Appl. Envir. Microbiol	65/12, 5234-41, 1999
28.	Isolation of Geobacter species from diverse sedimentary environments.	Coates JD et al.	Appl Environ Microbiol	62/5, 1531-6, 1996
29.	Microorganisms from deep, high temperature sandstones: constraints on microbial colonization	Colwell FS et al.	FEMS Microbiology Reviews	20, 425-435, 1997
30.	Innovative techniques for collection of saturated and unsaturated subsurface basalts and sediments for microbiological characterisation	Colwell FS et al.	Journal of Microbiological Methods	15, 279-92, 1992
31.	Chemical and biological interactions during nitrate and goethite reduction by <i>Shewanella putrefaciens</i> 200	Cooper DC, Picardal FW, Schimmelmann A, Coby AJ	Appl Environ Microbiol	69/6, 3517-25, 2003
32.	Bacterial investigations of sodic uranium leaching processes	Czako-Ver K, Czegledi B, Fekete L, Kecskes M	Use of microorganisms in Hydrometallurgy, Pecs, Hungary	39-42, 1980
33.	Sodic heap leaching of Mecsek low grade uranium ores	Czegledi B, Fekete L, Czako-Ver K	Use of microorganisms in Hydrometallurgy, Pecs, Hungary	35-38, 1980
34.	Distribution of oxidizing bacterial activities and characterization of bioleaching-related microorganisms in a uranium mineral heap	de Sioniz MI, Lorenzo P, Perera J	Microbiologia	7/2, 82-9, 1991
35.	Diversity of sulfur isotope fractionations by sulfate-reducing prokaryotes	Detmers J, Bruchert V, Habicht KS, Kuever J	Appl Environ Microbiol	67/2, 888-94, 2001
36.	A Study of the adaptation of native iron oxidizing bacteria to thiourea	Diaz X, Roldan C	Biohydrometallurgy and the environment toward the mining of the 21st century, part B, eds Amils R, Ballester A	247-255, 1999

Anlage 1

	Titel	Autoren	Zeitschrift	Jhg, pp, Jahr
37.	Heavy metals removal by sand filters inoculated with metal sorbing and precipitating bacteria	Diels L, Spaans PH, et al	Biohydrometallurgy and the environment toward the mining of the 21st century, part B, eds Amils R, Ballester A	607-616, 1999
38.	Expanding the Known Diversity and Environmental Distribution of an Uncultured Phylogenetic Division of Bacteria	Dojka MA, Harris JK, Pace NR	Applied and Environmental Microbiology	66/4, 1617-21, 2000
39.	Bioleaching- our experience	Dwivedy KK, Mathur AK	Hydrometallurgy	38, 99-109, 1995
40.	Geomikrobiologische Untersuchungen	Ebner HG, Schwartz W	Zeitschrift für Allg. Mikrobiologie	14/2,93-102, 1974
41.	Seasonal variations in microbial populations and environmental conditions in an extreme acid mine drainage environment	Edwards KJ, Gihring TM, Banfield JF	Appl Environ Microbiol.	65/8, 3627-32, 1999
42.	Bioleaching of simple and complex sulphide ores	Ek C, Frenay J	Recent progress in biohydrometallurgy (eds. Rossi, Torma)	347- 360, 1983
43.	Cultivation-dependent and -independent approaches for determining bacterial diversity in heavy-metal-contaminated soil	Ellis RJ, Morgan P, Weightman AJ, Fry JC	Appl Environ Microbiol	69/6, 3223-30, 2003
44.	Laboratory and pilot plant experiments for investigation of sodic uranium leaching using bacteria	Fekete L, Czeglédi B, Czako-Ver K, Kecskés M	Use of microorganisms in Hydrometallurgy, Pecs, Hungary	43-47, 1980
45.	Comparison of the structures of the natural bacterial communities in one uranium mining waste pile and in one uranium mill tailing	Flemming K, Satschanska G, Selenska-Pobell S	JB FZR 2000	35
46.	A quantitative evaluation of the biological oxidation during the leaching of uranium ore	Floeter W, Sadkowski R, C'Schoening G	Recent progress in biohydrometallurgy (eds. Rossi, Torma)	265-277, 1983
47.	Bioremediation of radionuclide and toxic metal contaminated soils and wastes	Francis AJ	Bioremediation of Contaminated Soils	239-271, 1999
48.	Biotransformation of uranium and other actinides in radioactive wastes	Francis AJ	Journal of alloys and compounds	271-273, 78-84, 1998

Anlage 1

	Titel	Autoren	Zeitschrift	Jhg, pp, Jahr
49.	Microbial dissolution and stabilization of toxic metals and radionuclides in mixed wastes	Francis AJ	Experienta	46, 840-51, 1990
50.	Characteristics of nuclear and fossil energy wastes	Francis AJ	Experienta	46, 794-6, 1990
51.	Remediation of soils and wastes contaminated with uranium and toxic metals	Francis AJ, Dodge CJ	Environ Sci Technol	32, 3993-8, 1998
52.	Microbial Transformations of uranium in wastes	Francis AJ et al.	Radiochim Acta	52/53, 311-6, 1991
53.	XPS and XANES studies of uranium reduction by <i>Clostridium</i> sp.	Francis AJ, Dodge CJ, Lu F, Halada GP, Clayton CR	Environ Sci Technol	28, 636-9, 1994
54.	Role of bacteria as biocolloids in the transport of actinides from deep underground radioactive waste repository	Francis AJ et al.	Radiochim Acta	82, 347-354, 1998
55.	Microbial transformation of low level radioactive waste	Francis AJ	reprint from: Environmental migration of long lived radionuclides	415-29, 1982
56.	Reduction of Fe(III), Cr(VI), U(VI), and Tc(VII) by <i>Deinococcus radiodurans</i> R1	Fredrickson JK et al.	Appl Environ Microbiol	66/5, 2006-11, 2000
57.	Accumulation of metals by microorganisms and algae	Gadd GM	Biotechnology Vol 66, Special microbial processes, Rehm & Redd (eds)	401-33
58.	Study of some biosorption supports for treating the waste water from uranium ore processing	Georgescu PD, Udrea N, Aurelian F, Lazar I	Fundamental and applied biohydrometallurgy, eds. Lawrence, Branion, Ebner	255-263, 1986
59.	Biological activity and water quality at flooding of the uranium mine "Königstein"	Glombitza F et al.	Biohydrometallurgical processing Vol. II	315-322, 1995
60.	Cultural and phylogenetic analysis of mixed microbial populations found in natural and commercial bioleaching environments	Goebel BM, Stackebrandt E.	Appl Environ Microbiol	60/5, 1614-1621, 1994
61.	Scanning electron microscopy study of the colony morphology of <i>Thiobacillus ferrooxidans</i>	Goodman A, Khalid AM, Ralph BJ	Biogeochemistry of ancient and modern environments	459-467, 1980
62.	An MPN Methode for the Enumeration of Iron-reducing bacteria	Gould WD et al.	Sudbury2003	

Anlage 1

	Titel	Autoren	Zeitschrift	Jhg, pp, Jahr
63.	Treatment of drainage waters from an uranium mine by means of a laboratory constructed wetlands system	Groudev SN, Georgiev IG, Uzunov GC	Internat Conf Ecological engineering and environmental protection	1994
64.	Bioremediation of a soil contaminated with radioactive elements	Groudev SN, Georgiev PS, Spasova II, Komnitsas K	Biohydrometallurgy and the environment toward the mining of the 21st century, part B, eds Amils R, Ballester A	627-634, 1999
65.	Microbial treatment of soil contaminated with heavy metals and arsenic	Groudev SN, Spasova II	Biotechnology comes of age	E-WT2.1-2-10
66.	Microbial leaching of uranium from flotation tailings in alkaline media	Groudeva VI, Groudev SN	Biohydrometallurgy and the environment toward the mining of the 21st century part A	319-326, 1999
67.	Microbial leaching of uranium from tailings in alkaline media	Groudeva VI, Groudev SN	Biohydrometallurgy and the environment toward the mining of the 21st century, Part A	319-326, 1999
68.	The microenvironment within waste rock dumps undergoing pyritic oxidation	Harries JR, Ritchie AIM	Recent progress in biohydrometallurgy (eds. Rossi, Torma)	377- 392, 1983
69.	Microbially mediated redox processes in natural analogues for radioactive waste	Haveman SA, Pedersen K.	J Contam Hydrol	55/1-2, 161-74, 2002
70.	Bioremediation: towards a credible technology	Head IM	Microbiology	144, 599-608
71.	Geochemistry of and radioactivity in ground water of the Highland Rim and Central Basin aquifer systems, Hickman and Maury Counties, Tennessee	Hileman GE, Lee RW	U.S. Geological Survey, Water Resources Investigations Report 92-4092	1993
72.	Microorganisms in reclamation of metals	Hutchins SR, Davidson MS, Brierley JA, Brierley CL	Annu Rev Microbiol.	40, 311-36, 1986
73.	Bacterial leaching of uranium from shales and biological recovery of natural radionuclides from aqueous solutions	Iskra AA, Nosov VD, Shatalov VV	Use of microorganisms in Hydrometallurgy, Pecs, Hungary	71-84, 1980
74.	Pitfalls of passive mine water treatment	Johnson DB, Hallberg KB	Reviews in Environmental Science and Bio/Technology	1/4, 335-343, 2002

Anlage 1

	Titel	Autoren	Zeitschrift	Jhg, pp, Jahr
75.	Ecological engineering applied to base metal and uranium mining wastes	Kalin M	Biohydrometallurgy	363-368, 1989
76.	Fate of sulphide moiety in bacterial oxidation of sulphide minerals: a quantitative approach	Kandemir H	Recent progress in biohydrometallurgy (eds. Rossi, Torma)	291-315, 1983
77.	Sulfurococcus- a new genus of thermoacidophilic archae-Bacteria oxidizing sulfur, ferrous iron and sulfide minerals	Karavaiko GI et al.	Biohydrometallurgical Technologies Vol 1	685-694, 1993
78.	Reductive precipitation of gold by dissimilatory Fe(III)-reducing bacteria and archaea.	Kashefi K, Tor JM, Nevin KP, Lovley DR	Appl Environ Microbiol	67/7, 3275-9, 2001
79.	The biosphere research at SKB	Kautsky, U	Radiation protection in the 2000s- Theory and practice	145-152, June 2003
80.	Presence of microscopic fungi in sodic uranium leaching processes	Kecskes M et al.	Use of microorganisms in Hydrometallurgy, Pecs,	49-52, 1980
81.	Genus Thiobacillus Beijerinck 1904b, 597a1	Kelly DP, Harrison AP	Bergey's manual of systematic bacteriology,	1842-1858, 1989
82.	Reclassification of some species of Thiobacillus to the newly designatet genera Acidithiobacillus gen. nov., Halothiobacillus gen. nov. and Thermithiobacillus gen. nov.	Kelly DP, Wood AP	Int J Syst Evol Microbiol.	50, 511-16, 2000
83.	Biohydrometallurgy of low-grade karbonate bearing sandstone uranium ore	Khalid AM, Anwar MA, Shemsi AM, Niazi G, Akhtar K	Biohydrometallurgical Technoloies vol 1	285-292, 1993
84.	Leaching of a karbonate-bearing uranium ore with a selected strain of Thiobacillus thiooxidans	Khalid ZM, Mah,ood T, Malik KA	Science and technology letters	524-, 1988
85.	Microbial abundance and activities in relation to water potential in the vados zones of arid and semiarid sites	Kieft TL et al.	Microbial ecology	26, 59-78, 1993
86.	Microbiological Comparisons within and across Contiguous Lacustrine, Paleosol, and Fluvial Subsurface Sediments	Kieft TL et al.	Appl. Environ. Microbiol.	61/2, 749-57, 1995
87.	Biological leaching of heavy metals from anaerobically digested sewage sludge using indigenous sulfur-oxidizing bacteria and sulfur waste in a closed system	Kitada K, Ito A, Yamada K, Aizawa J, Umita T	Water Science and technology	43/2, 59-65, 2001
88.	Evolutionary relationships among sulfur- and iron-oxidizing eubacteria	Lane DJ et al.	J Bacteriol	174/1, 269-78, 1992

Anlage 1

	Titel	Autoren	Zeitschrift	Jhg, pp, Jahr
89.	The leaching of sulfide ores by a thermophilic bacterium	le Roux NM, Wakerley DS	Biogeochemistry of acient and modern environments	451-457, 1980
90.	Attached and unattached bacterial communities in a 120-meter corehole in an acidic, crystalline rock aquifer	Lehman RM et al.	Appl Environ Microbiol.	67/5, 2095-106,2001
91.	Pilot-plant bacterial film oxidation (BAFOX PROCESS) of recycled acidified uranium plant ferrous sulphate leach solution	Livesey-Goldblatt E, Tunley TH, Nagy IF	Conference Bacterial Leaching	175-190, 1977
92.	Bacterial leaching of gold, uranium, pyrite bearing compacted mine tailing slimes	Livsey-Goldblatt E	Fundamental and applied biohydrometallurgy, eds. Lawrence, Branion, Ebner	89-96, 1986
93.	Uranium mobilization from low-grade ore by cyanobacteria	Lorenz MG, Krumbein WE	App microbiol biotechnology	21, 374-377, 1985
94.	Dissimilatory Fe(III) and Mn(IV) reduction	Lovley DR	Microbiol Rev	55/2, 259-8, 1991
95.	Dissimilatory metal reduction	Lovley DR	Annu Rev Microbiol.	47, 263-90, 1993
96.	Microbial reduction of uranium	Lovley DR et al.	Nature	350, 413-5, 1991
97.	Enzymatic iron and uranium reduction by sulfate-reducing bacteria	Lovley DR, Roden EE, Phillips EJP, Woodward JC	Marine Geology	113, 41-53, 1993
98.	Distribution and Composition of Microbial Populations in a Landfill Leachate Contaminated Aquifer (Grindsted, Denmark)	Ludvigsen L et al.	Microb Ecol	37/3, 197-207, 1999
99.	Role of nitrifying bacteria in rock weathering	Lyalikova NN, Lebedeva EV	Recent progress in biohydrometallurgy (eds. Rossi, Torma)	727-734, 1983
100.	Biosorption of long-lived radionuclides	Lyalikova-Medvedeva NN, Khijniak TV	Biohydrometallurgy and the environment toward the mining of the 21st century, Part B	327-334, 1999
101.	Bacterial reduction of copper-contaminated ferric oxide: Copper toxicity and the Interaction between fermentative and iron-reducing bacteria	Markwiese JT, Colberg PJS	Archives of environmental contamination and toxicology	38, 139-146, 2000
102.	A comparison of karbonate leaching of a low-grade uranium ore at atmospheric and increased pressures	Mattus AJ, Torma AE	Hydrometallurgy	5, 179-90, 1980

Anlage 1

	Titel	Autoren	Zeitschrift	Jhg, pp, Jahr
103.	Microbiology in nuclear waste disposal: interfaces and reaction fronts	McKinley IG, Hagenlocher I, Alexander WR, Schwyn B	FEMS Microbiol Rev	20/3-4, 545-56, 1997
104.	Chromate reduction by a pseudomonad isolated from a site contaminated with chromated copper arsenate	McLean J, Beveridge TJ	Appl Environ Microbiol	67/3, 1076-84, 2001
105.	Interaction of actinides with <i>Desulfovibrio äspöensis</i> DSM 10631. Part 1: Uranium	Moll H et al.	JB FZR 2002	31
106.	Biogeochemical processes and microbial characteristics across groundwater-Surface water boundaries of the hanford reach of the columbia river	Moser DP et al.	Environ. Sci. Techol	37/22, 5127-34, 2003
107.	The diversity and function of soil microbial communities exposed to different disturbances	Müller AK, Westergaard K, Christensen S, Sorensen SJ	Microbial ecology	44/1, 49-58, 2002
108.	Sorption of rare earth elements and uranium on biomass: a kinetic study of competition processes	Naja G, Peiffert C, Cathelineau M, Mustin C	Biohydrometallurgy and the environment toward the mining of the 21st centry, part B, eds Amils R, Ballester A	343-350, 1999
109.	Natural bacterial communities in underground waters near the deep-well injection site Tomsk-7, Siberia, Russia	Nedelkova M, radeva G, Selenska-Pobell S	JB FZR 2002	30
110.	Life at the energetic edge: kinetics of circumneutral iron oxidation by lithotrophic iron-oxidizing bacteria isolated from the wetland-plant rhizosphere	Neubauer SC, Emerson D, Megonigal JP.	Appl Environ Microbiol.	68/8, 3988-95, 2002
111.	Microorganisms associated with uranium bioremediation in a high-salinity subsurface sediment.	Nevin KP, Finneran KT, Lovley DR.	Appl Environ Microbiol	69/6, 3672-75, 2003
112.	Mechanisms for Accessing Insoluble Fe(III) Oxide during Dissimilatory Fe(III) Reduction by <i>Geothrix fermentans</i>	Nevin KP, Lovley DR	Appl. Envir. Microbiol.	68/5, 2294-99, 2002
113.	Bacteria from uranium mining waste pile: interaction with U(VI)	Panak P, Hard BC, et al.	Journal of Alloys and Compounds	271, 262-6, 1998
114.	Selective accumulation of metal ions in a drain water of a uranium mining wastre pile by indigenous <i>Bacillus</i> isolates	Panak P ed al	JB FZR 1998/9	82
115.	Interaction of <i>Bacillus</i> isolates from a uranium mining waste pile with U(VI)	Panak P et al.	JB FZR 1998/9	81

Anlage 1

	Titel	Autoren	Zeitschrift	Jhg, pp, Jahr
116.	Interaction of aerobic soil bacteria with plutonium (VI)	Panak PJ, Nitsche H	Radiochim Acta	89, 499-504, 2001
117.	Microbial life in deep granitic rock	Pedersen K	FEMS Microbiology Reviews	20, 399-414, 1997
118.	Distribution and activity of bacteria in deep granitic groundwaters of southeastern Sweden	Pedersen K, Ekendahl S	Microbial ecology	20, 37-52, 1990
119.	Mixing and sulphate-reducing activity of bacteria in swelling, compacted bentonite clay under high-level radioactive waste repository conditions	Pedersen K, Motamedi M, Karnland O, Sanden T	J Appl Microbiol	89/6, 1038-47, 2000
120.	Effects of Thiobacillus ferrooxidans on barium-radium sulfate in uranium mill tailings	Perez J, Torma AE, Itzkovitch IJ	Recent progress in biohydrometallurgy (eds. Rossi, Torma)	643-656, 1983
121.	Comparison between geochemical and biological estimates of subsurface microbial activities	Phelps TJ, Murphy EM, Pfiffner SM, White DC	Microb Ecol	28, 335-349, 1994
122.	Habitable pore space and survival of Rhizobium leguminosarum biovar trifolii introduced into soil	Postma J, van Veen JA	Microbial ecology	19, 149-61, 1990
123.	Use of rRNA fluorescence in situ hybridization for measuring the activity of single cells in young and established biofilms	Poulsen LK, Ballard G, Stahl DA	Appl Environ Microbiol	59/5, 1354-60, 1993
124.	Investigation of bacterial diversity in a soil sample of a depleted saxonian uranium mining area via sequencing of PCR-amplified and TA-cloned 16S rRNA genes	Puers C, Selenska-Pobell S, Nitsche H	JB FZR 1998/9	69
125.	Archaeal diversity in soils of the uranium mining wastes	Radeva G, Selenska-Pobell S	JB FZR 2002	29
126.	A new medium for the enumeration and subculture of bacteria from potable water	Reasoner DJ, Geldreich EE	Appl Environ Microbiol	49/1, 1-7, 1985
127.	Isolation and characterization of metal-reducing thermoanaerobacter strains from deep subsurface environments of the Piceance Basin, Colorado.	Roh Y, Liu SV, Li G, Huang H, Phelps TJ, Zhou J.	Appl Environ Microbiol.	68/12, 6013-20, 2002
128.	Microcalorimetric determination of bioleaching activity and temperature dependence	Rohwerder T, Kahl A, Wentzien S, Sand w	Biohydrometallurgy and the environment toward the mining of the 21st centry, part B, eds Amils R, Ballester A	551-557, 1999

Anlage 1

	Titel	Autoren	Zeitschrift	Jhg, pp, Jahr
129.	Relationships between microbial community structure and hydrochemistry in a landfill leachate-polluted aquifer	Roling WF et al.	Appl Environ Microbiol	67/10, 4619-29, 2001
130.	Mobilization of selenite by <i>Ralstonia metallidurans</i> CH34	Roux M et al.	Appl Environ Microbiol	67/2, 769-73, 2001
131.	Untersuchung zur Immobilisation von Schadstoffen in Halden des Uranerzbergbaus	Saheli H, Gock E	in: Innovative Techniken der Bodensanierung (Heiden S Hrsg)	172-189, 1999
132.	Sulfur chemistry, biofilm, and the (in)direct attack mechanism- a critical evaluation of bacterial leaching	Sand W, Gehrke T, Hallmann R, Schippers A	Appl microbiol biotechnol	43, 961- 966, 1995
133.	Novel Mechanism for bioleaching of metal sulfides	Sand W et al.	Biotechnology comes of age	QP2.1-2.10, 1997
134.	Microbial diversity in Uranium mining waste heaps	Schippers A et al.	App environ microbil	61/8, 2930-35, 1995
135.	Diversity and activity of bacteria in uranium waste pile	Selenska-Pobell, S	Interactions of microorganisms with radionuclides eds.: Keith-Roach, Livens	225-254, 2002
136.	Water leaching characteristics of uranium tailings from ontario and northern Saskatchewan	Silver M	Hydrometallurgy	14, 189-217, 1985
137.	Suboxic deposition of ferric iron by bacteria in opposing gradients of Fe(II) and oxygen at circumneutral pH	Sobolev D, Roden EE.	Appl Environ Microbiol	67/3, 1328-34, 2001
138.	A microcalorimetric study of U(IV)-oxidation by <i>Thiobacillus ferrooxidans</i> and ferric-iron	Soljanto P, Tuovinen OH	Biogeochemistry of acient and modern environments	469-475, 1980
139.	Lithoautotrophy in the subsurface	Stevens T	FEMS Microbiology Reviews	20, 327-337, 1997
140.	Iron metabolism in anoxic environments at near neutral pH	Straub KL, Benz M, Schink B	FEMS Microbiology Ecology	34/3, 181-186, 2001
141.	Microbial studies in the Canadian nuclear fuel waste management program	Stroes-Gascoyne S, West JM	FEMS Microbiology Reviews	20, 573-590, 1997
142.	Microbial populations stimulated for hexavalent uranium reduction in uranium mine sediment.	Suzuki Y, Kelly SD, Kemner KM, Banfield JF.	Appl Environ Microbiol	69/3, 1337-46, 2003
143.	Red mud leaching with fungal metabolites	Talassova II et al.	Biohydrometallurgical processing Vol.I	379-384, 1995

Anlage 1

	Titel	Autoren	Zeitschrift	Jhg, pp, Jahr
144.	Evolutionary relationships among ammonia- and nitrite-oxidizing bacteria	Teske A, Alm E, Regan JM, Toze S, Rittmann BE, Stahl DA.	J Bacteriol	176/21, 6623-30, 1994
145.	Optimum conditions for leaching of uranium and oxidation of lead sulfide with Thiobacillus ferrooxidans and recovery of metals from bacterial leaching solution with sulfate-reducing bacteria	Tomizuka N, Yagisawa M	Metallurgical applications of bacterial leaching	321-344, 1978
146.	Mineral Bioprocessing	Torma AE	Biomine'93	1.1-1.10, 1993
147.	Biosorption of uranium, thorium and radium	Torma AE, Apel ML	Emerging Separation technologies for metals and fuels	221-234, 1993
148.	Influence of uranium extractants on pyrite oxidation ability of Thiobacillus ferrooxidans	Torma AE, Itzkovitch IJ	Conference bacterial leaching, GBF	157-164, 1977
149.	Sodium karbonate-bikarbonate leaching of a new Mexico uranium ore and removal of long half-life radionuklides from the leach residue	Torma AE, Pendleton NR, Fleming WM	Uranium	2, 17-36, 1985
150.	Solubilization of Phosphat, Uranium, and iron from Apatite- and Uranium-Containing rock samples in synthetic and microbiologically produced acid leach solutions	Tuovinen OH, Hiltunen P, Vuorinen A	Eur J appl microbiol biotechnol	17, 327-333, 1983
151.	The Agnew lake uranium mine leach liquors: chemical examinations, bacterial enumeration, and composition of plasmid DNA of ironoxidizing Thiobacilli	Tuovinen OH, Silver M, Martin PAW, Dugan PR	Use of microorganisms in Hydrometallurgy, Pecs, Hungary	59-69, 1980
152.	Bacteria cultured from soil samples of uranium mining waste piles	Tzevkova I et al.	JB FZR 2000	39
153.	Comparative analysis of bacteria in uranium mining wastes	Tzvetkova T et al.	JB FZR 2001	35
154.	Genetic diversity among Arthrobacter species collected across a heterogeneous series of terrestrial deep-subsurface sediments as determined on the basis of 16S rRNA and recA gene sequences	van Waasbergen LG, Balkwill DL, Crocker FH, Bjornstad BN, Miller RV	Appl Environ Microbiol	66/8, 3454-63, 2000
155.	Zusammensetzung und Aktivität von Laugungsbiocenosen in Modellsystemen	von Rege H	Diplomarbeit Uni Hamburg	1994

Anlage 1

	Titel	Autoren	Zeitschrift	Jhg, pp, Jahr
156.	Bio-treatment of uranium contaminated soils	Wang S, Reddy, Torma AE	in: Metallurgical processes for early twenty-first century; ed. Sonn	583-589, 1994
157.	Effect of electron donor and solution chemistry on products of dissimilatory reduction of technetium by <i>Shewanella putrefaciens</i>	Wildung RE et al.	Appl Environ Microbiol	66/6, 2451-60, 2000
158.	Novel mineral-oxidizing bacteria from Montserrat (W.I.): physiological and phylogentic characteristics	Yahya A, Roberto FF, Johnson DB	Biohydrometallurgy and the environment toward the mining of the 21st centry, part B, eds Amils R, Ballester A	729-739, 1999

Anlage 2

Bewertung der Lagerstätten anhand ausgewählter Faktoren [C&E2001]

Nr. VDF	Name VDF	Lagerstätte	Wirtsgestein	Punkte	Kategorie
1	Hettstedt	Mansfeld	Schiefertone (Kupferschiefer - Sapropelitfazies)	37 - 39	1
		Sangerhausen	Schiefertone (Kupferschiefer - Sapropelitfazies)	37	1
		Hornburg	Arkosesandstein, massive Konglomerate	34	1
2	Suhl	Schleusingen	Sandstein, Tonschiefer	19	1
2a	Ruhla	Ruhla	Granit, porphyrtartig	49	2
2b	Steinach	Steinach	Schwarzschiefer	28	1
3	Dittrichhütte	Dittrichshütte	Glimmer-Tonschiefer, kohliges Kieselschiefer	31	1
5	Ronneburg	Ronneburger Erzfeld	Tonschiefer, Kiesel- schiefer, Kalksteine, Diabase	31 - 37	1
6	Seelingstädt	Gauern	Quarz-Karbonat-Serizit- Tonschiefer	26 - 28	1
7	Mechelgrün	Zobes	Kiesel-Serizit-Schiefer, kohle- führende Kiesel- schiefer, verkarnte Kalksteine	35 - 49	1 - 2
		Bergen	Granit, groß- kristalline Aplit- und Lamprophyrgänge, Hornfelse	44	2
9	Lengenfeld	Rebesgrün	Schwarzschiefer, Kieselschiefer	62	2
		<i>Aufbereitung</i>	<i>Schwarzschiefer, Kieselschiefer</i>		
12	Zwickau	<i>Steinkohlen- lagerstätte</i>	<i>Sandsteine, Schiefertone</i>		

Anlage 2

13	Gottesberg	Gottesberg SCT 181 SCT 295	Granit, grobkristallin, vergreist, Gesteins- gänge	41 - 43	2
		Schneckenstein SCT 241 SCT 343 SCT 340 SCT 252	Phyllite, Quarz-Chlorit- Serizit- schiefer, Greisen, Granite	38 - 46	1 - 2
		Oberlauterbach	Granite (Endo-kontakt), Hornfels (Exokontakt)	41 - 43	2
		Dorfstadt	Quarz-Serizit-Schiefer	43	2
		Vogelsgrün	Quarz-Chlorit- Serizitschiefer	44 -46	2
		Friedrichsgrün	Hornfels (Quarz- Glimmer, Biotit- Andalusit)	47 -49	2
		Tanneberg	Hornfels	49 - 51	2
		Mühlleiten	Vergreiste grob- kristalliner Granit, Lamprophyrgänge	43	2
14	Filzteich	Schneeberg SCT 3 - Weißer Hirsch SCT 9 - Ritter 1 SCT 10 SCT 11 SCT 24 SCT 25 SCT 26 usw.	Phyllite, kohle- und serizitführend, sedimentär-vulka- nogene Gesteine, Amphibolite	47	2
15	Aue	Niederschlema- Alberoda	Kohle-Glimmer-, Kohle- Kieselschiefer, Amphibolite	53	2
15a	Lauter	Lauter	Andalusithornfelse Quarzite, Granit	48 - 50	2
		Freibad Neuwelt	Andalusithornfelse Quarzite, Granit	50 -52	2
16	Johanngeorgen- stadt	Johanngeorgenstad t	Serizit-Chlorit- schiefer mit koh-liger Substanz und Pyrit	33 - 35	1
		Antonsthal, Fellbach, Unruhe usw.	Biotit- und Zwei- glimmergneise mit Amphiboliten und Kersantiten	32 - 38	1

Anlage 2

17	Pöhl	Pöhl	Quarz-Glimmer-schiefer, Quarz-Feldspat-Schiefer, Quarzite, Skarne, Greisen	51 - 63	2
		Globenstein	Gneise mit Amphiboliten, Skarnen, Quarziten	49 - 63	2
		Tellerhäuser	Amphibolschiefer, grafitführend, sulfidisiert, Skarne, Gneise, Quarzite, Hornfelse	57	2
		Hämmerlein	Schiefer, Gneise quarzite mit Skarn und Amphibolithen	57	2
		Weißer Hirsch	Biotit- und Zweiglimmergneise mit Skarn- und Amphiboliteinlagerungen, Aplit-, Granit-, Pegmatit- und Lamprophyrgänge	53 - 55	2
		Raschau	Quarz-Muskovit-, Zweiglimmer-, Biotit-Chloritgneise mit Kersantitgängen	55 - 57	2
		September/Tannenbaum	Orthogneise (Augengneise), Biotitgneise, Zweiglimmerschiefer, Kersantitgänge	55 - 57	2
18	Annaberg	Annaberg	Zweiglimmergneise mit Einlagerungen von Amphibolgneis, roter Tafelgneis und Graphitgneis, Gänge von Lamprophyr und Phonolith	56 - 58	2
18a	Niederschlag	Niederschlag/Bärenstein	granatführende Gneis-Glimmerschiefer, Zweiglimmerschiefer mit Marmorlagen u. Amphibolitlinsen	43 - 45	2
19	Marienberg	Marienberg NW (Lauta) SCT 342 SCT 45 SCT 139 SCT 152 SCT 302 SCT 262	Zweiglimmergneise, Lamprophyrgänge	29	1

Anlage 2

		Himmelreich u. Drei Brüder SCT 114 SCT 44 SCT 48 SCT 238 SCT 71 SCT 70 SCT 107 SCT 85	Zweiglimmergneise Lamprophyrgänge	29 - 31	1
		Wolkenstein "Johannes" SCT 137 SCR 22 - 26 SCT 68 STO "Arthur" STO "Tropper" SCT 84	Zweiglimmergneise Lamprophyrgang STO "Tropper"	29 - 31	1
		Geringswalde "Palmbaum" SCT 46 SCT 46 bis SCT 138	Zweiglimmergneise	31	1
20	Pöbershau	Pöbershau SCT 303 SCT 304	Zweiglimmergneise (z.T. Rotgneis)	42	2
		Molchener STO Marienberg- Gebirge SCT 283	Lamprophyrgänge	49	2
20a	Freiberg	Revier "Himmel- fahrt" SCT 108 SCT 104 SCT 148	Graugneise	54	2
		Revier "Himmel- fürst" SCT 101 SCT 102	Graugneise	54	2
21	Freital	Gittersee Burgk ("Gittersee", unt. Revier)	Arkosen (z. T. kalkhaltig), Schluffsteine, Tuffite, Andesite, kohlige Schluffsteine	25	1
		Coschütz Birkigt ("Heidenschanze")	Arkosen (z. T. kalkhaltig), Schluffsteine, Tuffite, kohlige Schluffsteine	25	1