

# UNTERSUCHUNGEN ZUR STRAHLENEXPOSITION DURCH NATÜRLICHE RADIONUKLIDE AUS DEM STEINKOHLEBERGBAU IN DER VORFLUT

## INVESTIGATIONS OF THE RADIATION EXPOSURE CAUSED BY AQUATIC RELEASES OF NATURAL RADIONUCLIDES FROM COAL-MINING

J.-W. Vahlbruch<sup>1</sup>, R. Sachse<sup>1</sup>, S. Harb<sup>1</sup>, D. Jakob<sup>1</sup>, R. Michel<sup>1</sup>, W.-U. Müller<sup>2</sup>,  
J. Schabronath<sup>3</sup>, D. Düputell<sup>4</sup>

- 1 Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie (ZSR), Universität Hannover, Am Kleinen Felde 30, 30167 Hannover
- 2 Institut für Medizinische Strahlenbiologie, Universitätsklinikum Essen, 45122 Essen
- 3 Deutsche Steinkohle AG, BA Arbeits-, Gesundheits- und Umweltschutz, Shamrockring 1, 44623 Herne
- 4 Emschergenossenschaft, Lippeverband, Kronprinzenstr. 24, 45128 Essen

### Zusammenfassung

Beim Abbau von Steinkohle unter Tage können in den anfallenden Grubenwässern Ausfällungen von Bariumsulfat auftreten, in denen natürliches  $^{226}\text{Ra}$  und  $^{228}\text{Ra}$  durch Mitfällung konzentriert werden können. Obwohl dies unter Tage geschieht, die Rückstände weitgehend zurückgehalten werden und unter Tage verbleiben, gelangt ein Teil dieser Radium-haltigen Ausfällungen mit den Grubenwässern in die Vorflut und wird von dort aus weiter transportiert. Auf der Grundlage der Richtlinie 96/29/Euratom wurde beispielhaft an der Lippe untersucht, ob es hierdurch zu erhöhten Strahlenexpositionen kommen kann. Dazu wurden umfangreiche Messungen der ODL und der Radionuklidgehalte von Böden entlang der Lippe durchgeführt. Die Untersuchungen zeigen, dass die mit den Grubenwässern des Steinkohlenbergbaus ausgetragenen natürlichen Radionuklide selbst unter konservativen Annahmen nicht zu einer relevanten Erhöhung der Strahlenexposition der Bevölkerung führen.

### Summary

In underground mine-waters of coal-mines precipitation of barium sulfate can occur with co-precipitation of the natural radionuclides  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{228}\text{Ra}$ . Although most of the residue remains underground,  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{228}\text{Ra}$  are found in the effluents released into rivers and are transported further on. Based on the Basic Safety Standards the river Lippe was chosen as an example to investigate the potential additional natural radiation exposure resulting from the  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{228}\text{Ra}$  releases. Therefore, extensive measurements of the ambient gamma dose rate and of the concentrations of radionuclides in soils along the Lippe were performed. These investigations show, that even under conservative assumptions the release of natural radionuclides by coal-mining does not cause a relevant increase of the radiation exposure of members of the public.

## 1 Einführung

Durch die im August 2001 in Kraft getretene neue Strahlenschutzverordnung [1] wurde als Umsetzung der EURATOM Grundnormen von 1996 [2] erstmals der Schutz von Mensch und Umwelt vor natürlichen Strahlungsquellen bei Arbeiten in Regelungen des Strahlenschutzes mit einbezogen. Davon betroffen war unter anderen die Deutsche Steinkohle AG, die alle Aktivitäten zur Förderung deutscher Steinkohle als Unternehmen unter einem Dach zusammenfasst. Bei dem Abbau von Steinkohle können unter Tage bariumhaltige und sulfathaltige Grubenwässer aufeinander treffen, was zu einer Ausfällung von Bariumsulfat und dabei zu einer Mitfällung von natürlich vorhandenem  $^{226}\text{Ra}$  und  $^{228}\text{Ra}$  führt. Obwohl ein Großteil der so anfallenden Sedimente und Inkrustierungen unter Tage gelagert werden, können in den Grubenabwässern und damit in den Vorflutern erhöhte Konzentrationen von  $^{226}\text{Ra}$  und  $^{228}\text{Ra}$  und deren Zerfallsprodukte auftreten. Am Beispiel der Schachtanlage Auguste Viktoria bei Marl, deren Vorfluter in die Lippe mündet und die aufgrund ihrer  $^{226}\text{Ra}$  Jahresfrachten als konservative Schätzung für alle anderen Schachtanlagen gelten kann, wurden deshalb zur Abschätzung der bergbaubedingten Strahlenexposition großflächige Untersuchungen der Ortsdosisleistung und der Radionuklidgehalte in Böden durchgeführt. Dabei erstreckte sich das Probenentnahmegebiet von der Mündung des Vorfluters in die Lippe (Flusskilometer 135,9 gezählt ab Quelle) bis zur Mündung der Lippe in den Rhein (Flusskilometer 183), um eine großflächige und möglichst vollständige Erfassung der Eintragung von natürlichen Radionukliden aus dem Bergbau gewährleisten zu können. Ziel der durchgeführten Untersuchungen war es somit, zum einen die räumliche Ausdehnung des Eintrages von natürlichen Radionukliden entlang der Lippe zu dokumentieren und zum anderen die Höhe der möglichen zusätzlichen Strahlenexposition abzuschätzen.

## 2 Material und Methoden

Zur Erfassung der Ortsdosisleistungen (ODL) wurde die Lippe von der Mündung des Vorfluters in die Lippe bei Flusskilometer 135,9 bis zur Mündung in den Rhein in acht Bereiche unterteilt und innerhalb dieser Abschnitte sowohl am Süd- als auch am Nordufer durch Messungen die ODL in insgesamt 86 ODL-Messungen ermittelt (Messgerät: FH 40 G-L System-Radiameter der Firma ESM Eberline Instruments).

Dabei wurden hauptsächlich die Gebiete berücksichtigt, die im Laufe der jährlichen Hochwasser regelmäßig überschwemmt werden können [3] und in denen somit Ablagerung von natürlichen Radionukliden stattgefunden haben kann. Die Messpunkte entlang der Lippe lagen in Bereichen deutlich erhöhter ODL dichter zusammen als in Bereichen durchschnittlicher ODL, um eine genaue Kartierung der ODL an den Orten, an denen ein bergbaubedingter Einfluss festzustellen war, zu gewährleisten. Dort wurden, wo möglich, gemäß einer zusätzlichen Einteilung des Uferstreifens in „unmittelbare Flussnähe/Uferböschung“ (<10 m Abstand zum Fluss), „Uferstreifen zwischen Fluss und Deich“ (10 m bis 60 m Flussabstand) und „Deichfuß“ (>60 m Abstand zum Fluss) bei gleichem Flusskilometer bis zu drei Messungen mit zunehmendem Abstand vom Lippeufer vorgenommen, um einen eventuell vorhandenen Gradienten in der ODL quantifizieren zu können. Die Messzeit orientierte sich an der Anzahl der zu messenden Impulse und lag bei 500 Impulsen (<5 % Unsicherheit) zwischen 10 Minuten und 30 Minuten. Diese so gewonnenen ODL-Daten wurden mit einem IMIS-Tagesdatensatz [4] verglichen, wobei beide Datensätze um die kosmische Komponente korrigiert wurden.

An jedem ODL-Messort wurde eine Bodenprobe (Trockenmasse ca. 2 kg) bis ca. 15 cm Tiefe entnommen. Zusätzlich wurden an zwei Orten deutlich erhöhter ODL Bodenprofile bis zur Tiefe von 30 cm entnommen. Alle Bodenproben wurden im ZSR bei 50 °C getrocknet und anschließend nach der Entfernung grober organischer Materialien gemahlen und auf 2 mm Korngröße gesiebt. Danach wurde die so behandelte Probe in einem 1-Liter-Marinelli-Becher luftdicht verschlossen und nach Einstellung des Gleichgewichtes zwischen  $^{226}\text{Ra}$  und  $^{214}\text{Bi}$  in der Uran-Radium Reihe nach Messanleitung [5] auf einem Reinst-Germanium-Detektor gamma-spektrometrisch auf den Gehalt von  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  und  $^{210}\text{Pb}$  untersucht. Dabei wurde die Zählzählbeute durch Messung von Standardpräparaten unterschiedlicher Dichte mit anschließender Interpolation berechnet. Zur Qualitätssicherung wurde der Standardboden eines Ringversuches des Bundesamtes für Strahlenschutz (Proben-Code BfS/ST2.3/Boden/V-98) benutzt, für den die eigenen Messergebnisse mit den Vergleichswerten der Physikalisch Technischen Bundesanstalt sehr gute Übereinstimmung erzielten.

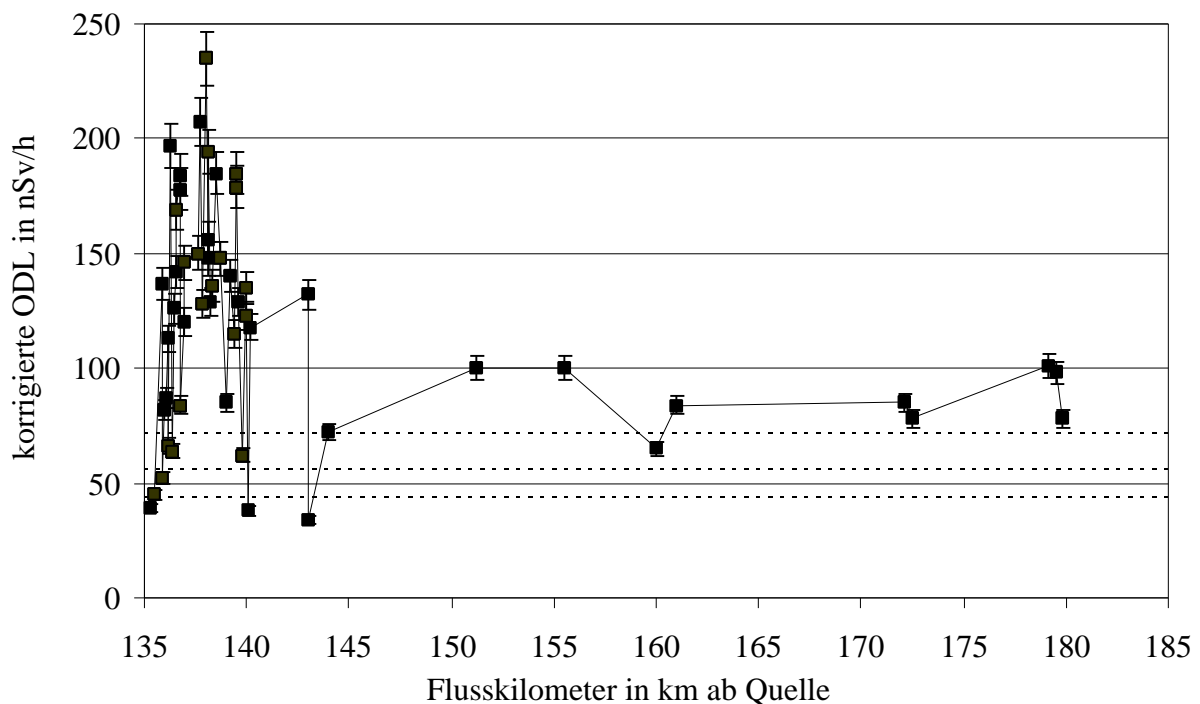
Diese so ermittelten spezifischen Aktivitäten wurden mit Datenbeständen des ZSR aus Niedersachsen verglichen und die niedersächsischen Werte von den ermittelten subtrahiert, um eine Schätzung des bergbaubedingten Anteils zu erhalten. Diese Schätzung kann als konservativ angesehen werden, da die spezifischen Aktivitäten von natürlichen Radionukliden in Böden der Norddeutschen Tiefebene geringer sind als in Nordrhein-Westfalen [6].

In Analogie zum Vorgehen bei der Bewertung von Altlasten des Uranbergbaus wurde ein von Biesold et al. [7] entwickelter Entscheidungsbaum als Kriterium für genauere Untersuchungen herangezogen. Dabei werden Gebiete entsprechend der gemessenen ODL bzw. der ermittelten spezifischen Aktivitäten als „standortspezifisch zu untersuchende Objekte“ kategorisiert, wenn die ODL um einen Faktor 2 gegenüber dem geogenen Untergrund erhöht ist und die Gebiete eine größere Fläche als  $10^4 \text{ m}^2$  aufweisen. Im Fall der Lippe war in einem Gebiet zwischen Flusskilometer 135,9 und 143,0 mit einer Fläche von ca.  $1,2 \text{ km}^2$  der Einfluss von Radionukliden aus der Vorflut am deutlichsten ausgeprägt. Danach wurden für diese Gebiete durch eine Modellierung auf Grundlage der Berechnungsgrundlage Bergbau [8] die zusätzliche, durch den Bergbau bedingte, Strahlenexposition abgeschätzt. Dabei wurden in der Bevölkerung sechs Altersklassen (<1a, 1-2a, 2-7a, 7-12a, 12-17a, >17a) unterschieden, für die entsprechend der unterschiedlichen Physiologie und dem unterschiedlichen Verhalten dieser Altersgruppen verschiedene Faktoren in der Berechnungsgrundlage Bergbau angenommen werden. Dabei entnimmt die Berechnungsgrundlage Bergbau die Dosisfaktoren den Euratom Grundnormen [2]. Insgesamt wurden die Pfade „Äußere Exposition durch Gammastrahlung des Bodens beim Aufenthalt im Freien“, „Exposition durch Aufnahme von Boden (Direktin-gestion)“ und „Exposition durch Ingestion lokal erzeugter Lebensmittel“ berücksichtigt, wobei im letzteren Fall die Teilpfade „Freisetzung von Radionukliden mit der Luft“ und „Frei-setzung mit dem Wasser (Beregnung)“ nicht mit in die Modellierung eingeschlossen wurden. Der Pfad der Trinkwasserentnahme aus der Lippe wurde ebenfalls nicht modelliert, da er realistischer Weise ausgeschlossen werden konnte.

### 3 Ergebnisse

Die um die kosmische Komponente von 30 nSv/h korrigierte Ortsdosisleistung schwankt entlang der Lippe zwischen 34 nSv/h und 235 nSv/h mit einem geometrischen Mittelwert von  $(103 \cdot 1,5^{\pm 1}) \text{ nSv/h}$  (Abb.1). Daraus ergibt sich bei angenommener logarithmischer Normal-Verteilung ein Erwartungswert von 112 nSv/h (Bei einer logarithmischen Normalverteilung

ergibt sich der Erwartungswert ( $EW$ ) als  $EW = \exp(m + s^2/2)$ , wobei  $m$  für den geometrischen Mittelwert und  $s$  für die geometrische Standardabweichung stehen). Werte oberhalb von 100 nSv/h finden sich dabei ausschließlich in einem Bereich zwischen Flusskilometer 135,9 und km 143,0 (gezählt ab Quelle); in diesem Bereich betrug der Abstand zwischen den einzelnen Messpunkten entlang des Flussufers ungefähr 300 m, so dass eine dichte Kartierung der ODL entlang des Lippeufers erfolgte. Nach km 143,0 wurden keine Werte oberhalb von 100 nSv/h gemessen, allerdings schwankte die ODL direkt am Lippeufer um einen Wert von  $(86 \pm 13)$  nSv/h. Folglich kann bis zur Mündung der Lippe in den Rhein in unmittelbarer Nähe zum Fluss von einer Erhöhung der ODL um maximal einen Faktor 2 gegenüber IMIS-Daten für ganz Nordrhein-Westfalen von  $(59 \cdot 1,3^{\pm 1})$  nSv/h (gestrichelt in Abb.1 und Abb.2) gesprochen werden.



wurden. Dieses Gebiet deutlich erhöhter ODL zwischen km 135,9 und km 143 weist eine Fläche von ungefähr  $1,2 \text{ km}^2$  auf und wird u.a. als Weide und Ackerland wirtschaftlich genutzt.

Innerhalb dieses Gebietes wurde senkrecht zur Flussrichtung mit zunehmendem Abstand zum Fluss eine deutliche Abnahme der ODL festgestellt. So ergaben sich arithmetische Mittelwerte von  $(143 \pm 36) \text{ nSv/h}$  in „unmittelbare Flussnähe“,  $(106 \pm 33) \text{ nSv/h}$  im „Uferstreifen zwischen Fluss und Deich“ und  $(87 \pm 21) \text{ nSv/h}$  am „Deichfuß“. Dabei sind die Messwerte eines von einem Mäander fast eingeschlossenen Gebietes bei Flusskilometer 139,5 nicht berücksichtigt worden, da trotz zunehmenden Abstandes vom Flussufer dieses Gebiet regelmäßig komplett überflutet wird [3].

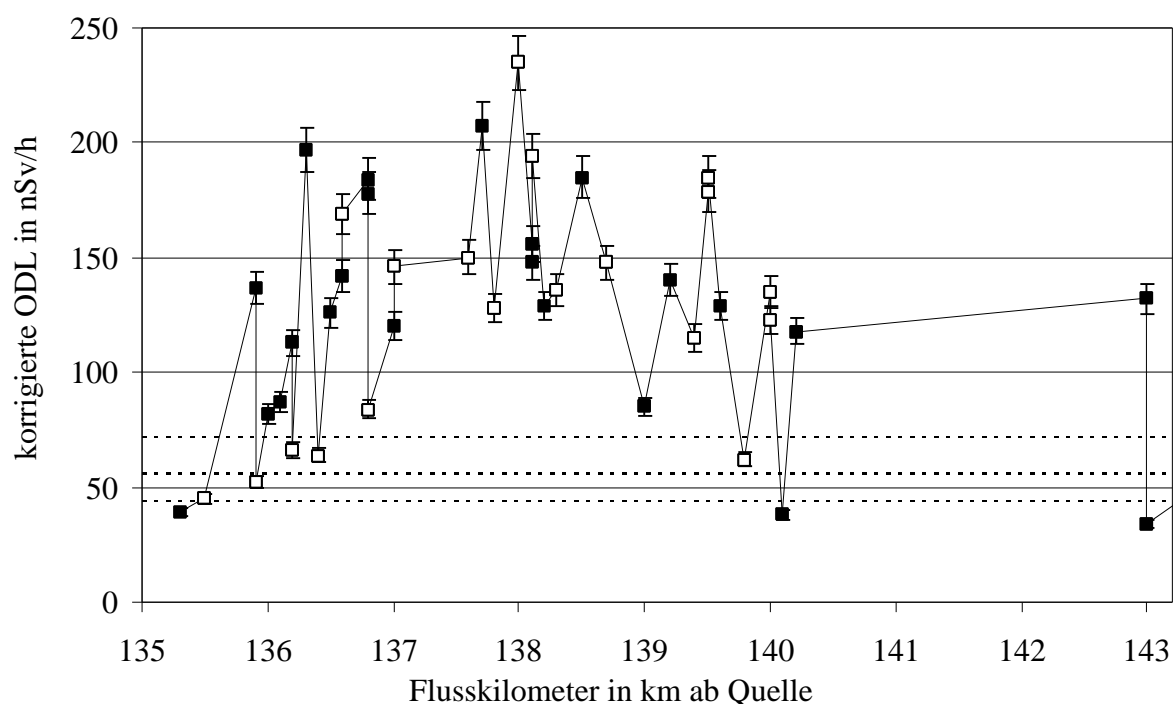


Abb. 2: Werte der ODL in nSv/h, korrigiert für den Anteil der kosmischen Strahlung, in Abhängigkeit von der Entfernung zur Einmündung des Vorfluters im Vergleich zu IMIS-Daten.

Alle Bodenproben, die, wie oben erwähnt, entlang der Lippe an den Orten der ODL-Messungen genommen wurden, ergaben bei angenommener logarithmischer Normalverteilung Erwartungswerte der Aktivitätskonzentrationen von  $287 \text{ Bq/kg}$  für  $^{226}\text{Ra}$ ,  $59 \text{ Bq/kg}$  für  $^{228}\text{Ra}$ ,  $63 \text{ Bq/kg}$  für  $^{228}\text{Th}$  und  $219 \text{ Bq/kg}$  für  $^{210}\text{Pb}$  mit geometrischen Standardabweichungen von jeweils etwa 2. Ähnliche Konzentrationen wurden auch in anderen Untersuchungen berichtet [9], in denen allerdings keine Expositionsabschätzung durchgeführt wurde. Die maximal ermittelten Aktivitätskonzentrationen lagen bei  $545 \text{ Bq/kg}$  für  $^{226}\text{Ra}$ ,  $146 \text{ Bq/kg}$  für  $^{228}\text{Ra}$ ,  $115 \text{ Bq/kg}$  für  $^{228}\text{Th}$  und  $372 \text{ Bq/kg}$  für  $^{210}\text{Pb}$ . Diese Orte maximaler Aktivität befanden sich wiederum in dem Gebiet besonders erhöhter ODL zwischen den Flusskilometer 135,9 und 143,0.

Die an Orten erhöhter ODL genommenen Bodenprofile belegen den oberflächlichen Eintrag und die Migration von  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  und  $^{210}\text{Pb}$  in größere Tiefen.

Die potentielle zusätzliche Strahlenexposition wurde wie folgt berechnet. Für jeden Messort wurde für die an diesem Ort gemessenen ODL-Werte und Radionuklidkonzentrationen gemäß Berechnungsgrundlage Bergbau die zusätzliche bergbaubedingte Strahlenexposition für unterschiedliche Altersgruppen berechnet. Bei einer angenommenen logarithmischen Normalverteilung dieser Modellierungsergebnisse an den verschiedenen Messorten ergeben sich die in Abb. 3 dargestellten Erwartungswerte für die zusätzliche Exposition. Die Erwartungswerte der Jahresdosis liegen mit Ausnahme der 1- bis 2-Jährigen unter 0,17 mSv, wobei der Pfad der externen Bestrahlung unter der Annahme von 2000 h Aufenthaltszeit die Exposition dominiert. Bei den 1- bis 2-Jährigen dominiert hingegen der Pfad der Direktingestion von Boden bei einer angenommenen Verzehrsgeschwindigkeit von 0,1 kg/a, so dass für diese Altersgruppe ein Erwartungswert von etwa 0,25 mSv errechnet wird. Der Pfad der „Exposition durch die Ingestion lokal erzeugter Lebensmittel“ trägt mit weniger als 1 % zur Dosis bei.

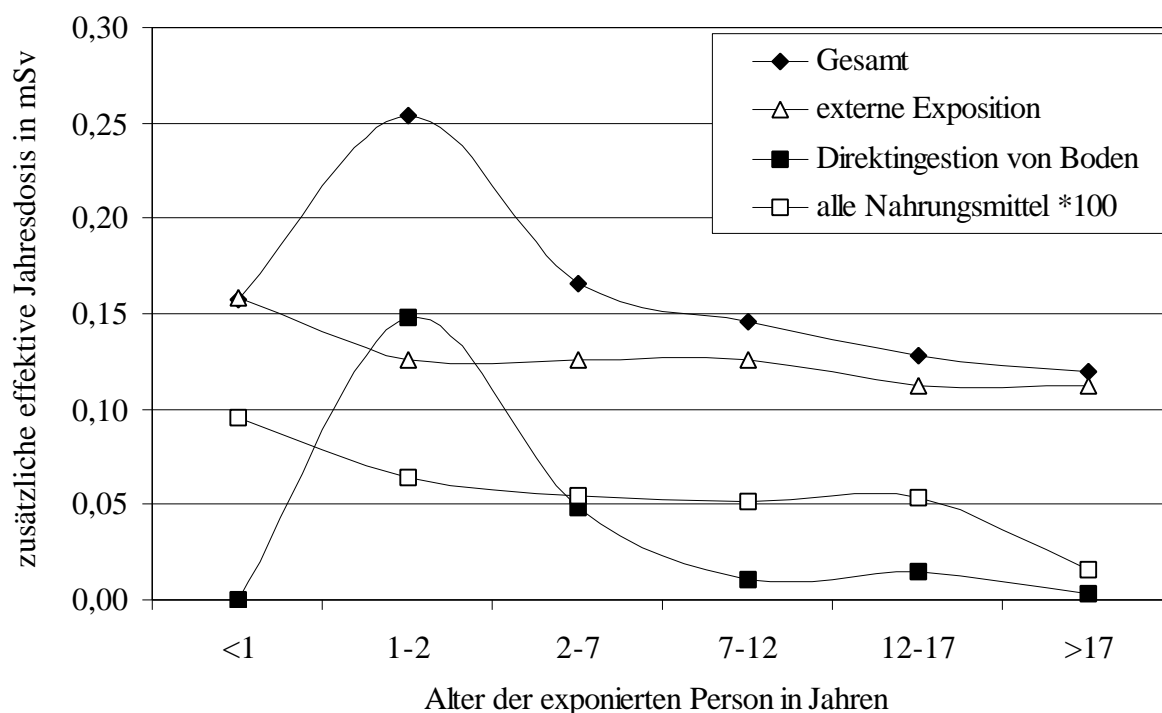


Abb. 3: Erwartungswerte der zusätzlichen jährlichen effektiven Dosis in mSv.

Unter der abdeckenden Annahme, dass die potentielle zusätzliche Exposition ausschließlich durch den Ort mit den höchsten Radionuklidgehalten im Boden und mit hoher Ortsdosisleistung (bei Flusskilometer 138,1) bewirkt wird, ergeben sich, wieder mit Ausnahme der 1- bis 2-Jährigen, zusätzliche Jahresdosen von max. 0,3 mSv. Für die 1- bis 2-Jährigen ergibt sich aufgrund der Direktingestion von Boden eine zusätzliche Jahresdosis von knapp 0,5 mSv (Abb. 4).

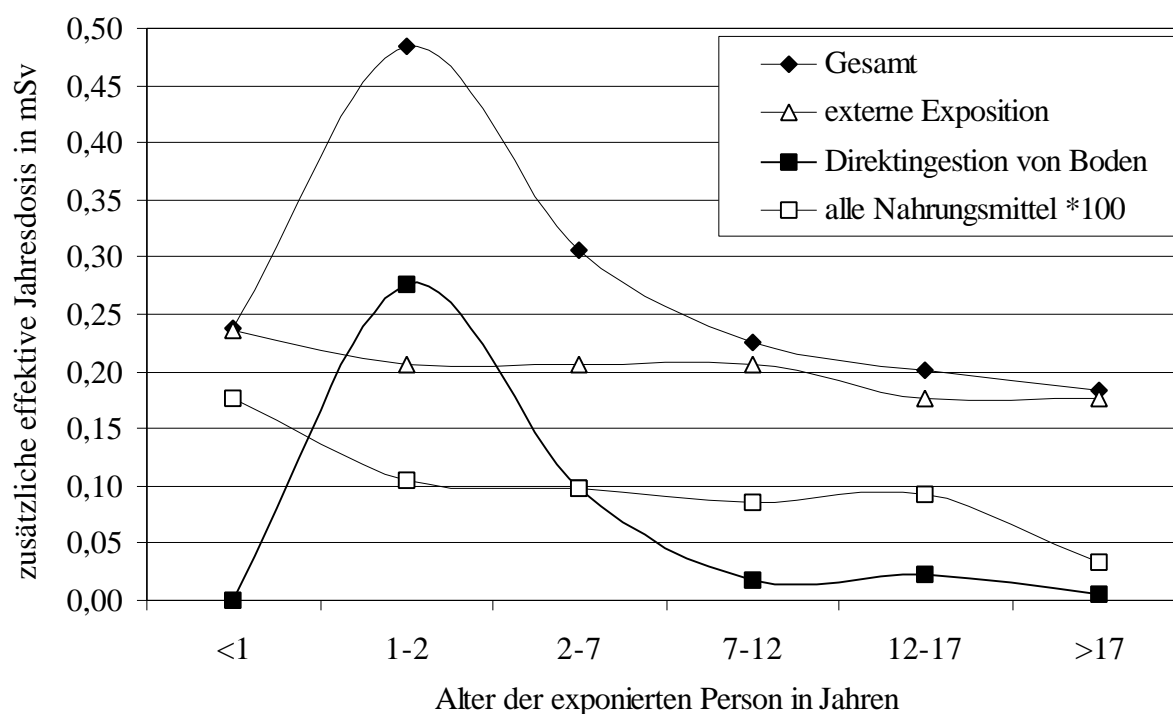


Abb. 4: Maximalwerte der zusätzlichen jährlichen effektiven Dosis in mSv.

#### 4 Schlussfolgerungen

Die der vorgestellten Studie zugrundeliegende Modellierung beinhaltet konservative Annahmen, die über eine realistische Berechnung der bergbaubedingten zusätzlichen Jahresdosis hinausgehen. So nimmt die Berechnungsgrundlage Bergbau eine Aufenthaltszeit in den zu untersuchenden Gebieten von 2000 h pro Jahr an, was in diesem Fall entlang der Lippe innerhalb des eingedeichten Bereiches sicherlich als konservativ anzusehen ist. Des Weiteren liegt der geogene Untergrund in Nordrhein-Westfalen nach [6] etwas höher als die in dieser Studie verwendeten niedersächsischen Daten, so dass der bergbaubedingte Einfluss wohl eher überschätzt wird. Zudem nimmt die Berechnungsgrundlage Bergbau einen Verzehranteil von 25% aus lokalem Anbau an – ein Wert, der in diesem Fall entlang des schmalen Lippeufers als zu hoch anzusehen ist.

Trotz dieser konservativen Annahmen ergab die Modellierung für Menschen, die auf einem dem Erwartungswert entsprechenden homogenen Gebiet leben, eine bergbaubedingte zusätzliche Strahlenexposition von unter 0,17 mSv (1- bis 2-jährige 0,25 mSv) und für Menschen, die auf einem der maximalen zusätzlichen Exposition entsprechenden homogenen Gebiet leben, eine zusätzliche Strahlenexposition von maximal 0,3 mSv (1- bis 2-jährige 0,5 mSv).

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass ein Einfluss des Steinkohlebergbaus auf den Gehalt an natürlichen Radionukliden am Lippeufer zwar eindeutig nachweisbar ist, die daraus resultierende Strahlenexposition aber weit unterhalb der Schwankungsbreite der natürlichen Strahlenexposition in Deutschland liegt und damit nicht zu einer relevanten Erhöhung der Strahlenexposition der Bevölkerung führt.

## 5 Literatur

- [1] Verordnung für die Umsetzung von EURATOM-Richtlinien zum Strahlenschutz, Bundesgesetzblatt Nr. 38 am 20.07.2001, Artikel 1 „Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung-StrlSchV).
- [2] Richtlinie 96/29/EURATOM des Rates vom 13. Mai 1996 zur Festlegung der grundlegenden Sicherheitsnormen für den Schutz der Gesundheit der Arbeitskräfte und der Bevölkerung gegen die Gefahren ionisierender Strahlungen, ABl. EG vom 29.6.1996, L159/1.
- [3] Karte des Rheinisch-Westfälischen Steinkohlebezirks, 1:10000, Hrsg.: Westfälische Berggesellschaftskasse zu Bochum unter Mitarbeit der Marktscheidereien und Vermessungsämter ergänzt durch die Daten des Lippeverbandes.
- [4] Richtlinie für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz, Teil I: Messprogramm für den Normalbetrieb (Routinemessprogramm), GMBL. 45, Nr. 32 vom 26.09., 1994, S. 930.
- [5] Messanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen – Loseblattsammlung. Herausgeber: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Verlag: Gustav Fischer, Stuttgart, 1992.
- [6] Kemski, J.; Klingel, R. und Siehl, A. „Die terrestrische Strahlung durch natürliche radioaktive Elemente“. In Siehl, A., „Umweltradioaktivität“. Ernst & Sohn Verlag, S. 82
- [7] Biesold, H.; Kindt, A. und Ettenhuber, E. „Untersuchung bergbaulicher Hinterlassenschaften“, atw 41, (1996), 98-102.
- [8] Berechnungsgrundlagen zur Ermittlung der Strahlenexposition infolge bergbaulicher Umweltradioaktivität (Berechnungsgrundlage Bergbau), Stand 30.07.1999.
- [9] Schmid, S. „Untersuchungen zur Radionuklidbelastung von Oberflächenwässern, Sedimenten und Böden als Folge des Steinkohlebergbaus im Ruhr-Revier“, Inaugural-Dissertation, Universität Essen, Fachbereich Bio- und Geowissenschaften, Landschaftsarchitektur, Februar 2001.



J.-W. Vahlbruch, R. Sachse, S. Harb, D. Jakob, R. Michel,  
W.-U. Müller, J. Schabronath, D. Düputell,

## **Untersuchungen zur Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide aus dem Steinkohlebergbau in der Vorflut**

in : R. Michel, M. Täschner, A. Bayer (Hrsg.) Praxis des  
Strahlenschutzes: - Messen, Modellieren, Dokumentieren -,  
Tagungsband der 34. Jahrestagung des Fachverbandes für  
Strahlenschutz e.V., Kloster Seeon, 21. - 25. April 2002, TÜV-  
Verlag, Köln (2002) 227 - 234.