

13 RADIONUKLIDE IN ABWASSER UND KLÄRSCHLAMM - EINE AUSWERTUNG VON DATEN DER IMIS-DATENBANK

R. Gellermann¹, P. Hofmann², C. Scholtysik², V. Ustohalova³

¹Nuclear Control & Consulting GmbH (NCC)

²Bundesamt für Strahlenschutz

³Öko-Institut e. V.

Leitstelle für Trinkwasser, Grundwasser, Abwasser, Klärschlamm, Abfälle und Abwasser aus kerntechnischen Anlagen (Leitstelle H)

Einleitung

Das Bundesamt für Strahlenschutz als Zentralstelle des Bundes sammelt nach § 163 StrlSchG die in den Ländern erhobenen Daten zu Radionukliden im Abwasser und Klärschlamm. Die Ergebnisse zu den nach AVV IMIS berichtspflichtigen Radionukliden werden von der zuständigen Leitstelle aufbereitet und in den Jahresberichten „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung“ (BfS/BMUV) zusammengefasst. Eine übergreifende Auswertung der vollständigen Datensätze über einen längeren Zeitraum erfolgte bisher nicht. In einem Forschungsvorhaben, das Grundlagen für die Weiterentwicklung der Messprogramme erarbeiten sollte, wurden alle erhaltenen Ergebnisse, die bei der Untersuchung von Abwasser- und Klärschlammproben im Zeitraum 01.01.2016 bis 31.12.2022 gewonnen wurden, ausgewertet.

Die Messprogramme nach der AVV IMIS sind darauf ausgelegt, messtechnische Kapazitäten und analytische Routinen vorzuhalten, um bei Ereignissen, die erhebliche nachteilige Auswirkungen auf Menschen, die Umwelt oder Sachgüter zur Folge haben können (Notfälle im Sinne des § 5 Abs. 26 StrlSchG) datenbasierte Entscheidungen treffen zu können. Für diesen Zweck enthält die AVV IMIS ein spezielles Messprogramm „Störfall-/Intensivbetrieb“. Da in diesem Messprogramm die Anforderungen hinsichtlich der Anzahl der zu messenden Proben in einem festgelegten Zeitraum und die zu erreichenden Nachweisgrenzen sich vom „Normal-/Routinebetrieb“ unterscheiden, werden Übungen für die zuständigen Behörden des Bundes und die Messstellen der Bundesländer in regelmäßigen Abständen angeboten. Mehr als 90 % der im Rahmen von IMIS ausgeführten Messungen werden allerdings im Messprogramm „Normal-/Routinebetrieb“ realisiert. Ergänzend werden von einigen Bundesländern weitere Untersuchungen vorgenommen und an IMIS gemeldet. Die im Weiteren vorgestellten Ergebnisse basieren auf den Daten der Messprogramme „Normal-/Routinebetrieb“ und der ergänzenden Messprogramme „Land“.

Grundlagen der Datenauswertung

Bei der Auswertung wurden drei Gruppen von Radionukliden genauer betrachtet:

- Natürlich vorkommende Radionuklide Be-7, K-40 sowie Radionuklide der U-238- und Th-232-Zerfallsreihe. Im Abwasser darüber hinaus auch Tritium (H-3).
- Medizinisch genutzte Radionuklide, Tc-99m, In-111, I-131, Lu-177.
- Radionuklide der Fallouts der früheren Kernwaffentests sowie des Nuklearunfalls von Tschornobyl: Sr-90, Cs-137, Pu-238, Pu-239/40.

Vor allem im Abwasser, in dem die Aktivität einzelner Radionuklide in einem Probenvolumen deutlich kleiner ist als bei einem gleichen Probenvolumen Klärschlamm, konnten vielfach nur Messergebnisse unter der Erkennungsgrenze festgestellt werden. Der Anteil der Messwerte über der Erkennungsgrenze an den Datensätzen der einzelnen Analysenergebnisse im Abwasser ist in Abbildung 13.1 dargestellt. Das Diagramm zeigt, dass für viele Radionuklide aus dem hier betrachteten Zeitraum von 7 Jahren weniger als 100 Datensätze vorliegen und nur für einige Radionuklide mehr als 50 % Messergebnisse existieren, so dass Medianwerte über den ganzen Datensatz berechnet werden können.

Beim Klärschlamm ist die Messbarkeit wesentlich besser. Der Anteil der Messwerte an den Datensätzen bei den meisten hier betrachteten Radionukliden liegt über 80 %. Ausnahmen sind vor allem die Plutoniumisotope mit weniger als 10 % und In-111 mit 16 %.

Eine Auswertung der Datensätze, bei denen die Ergebnisse unter der Erkennungsgrenze lagen, zeigte allerdings, dass die Erkennungsgrenzen teilweise die häufig gemessenen Aktivitätskonzentrationen überstiegen oder zumindest die gleiche Größenordnung hatten. Eine Auswertung, bei der diese Ergebnisse mit „Null“ berücksichtigt werden, verzerrten die berechneten Kennziffern hin zu niedrigen Werten. Aus diesem Grund wur-

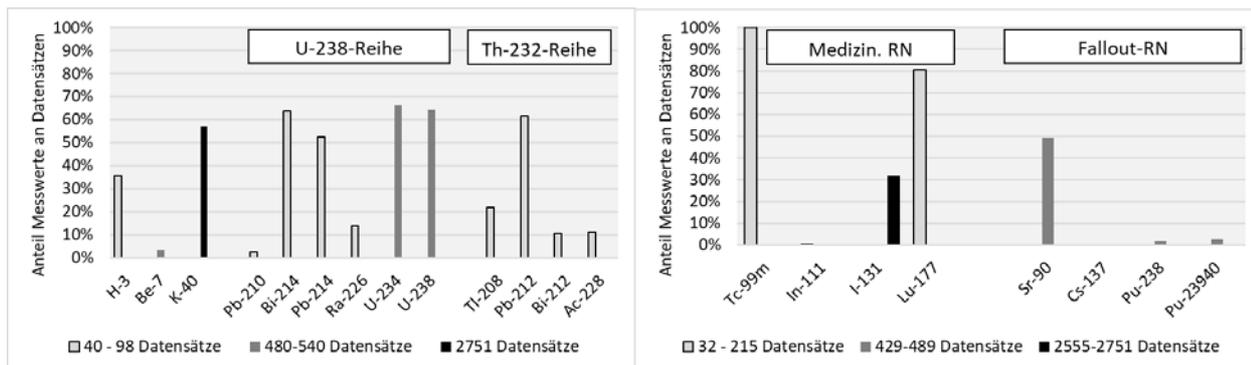


Abbildung 13.1

Anteile der Datensätze aus den Abwasseruntersuchungen mit Messwerten über der Erkennungsgrenze. Die Signatur der Balken charakterisiert die Anzahl der ausgewerteten Datensätze im Betrachtungszeitraum 2016-2022.

den für die Ermittlung statistischer Kennziffern die ausgewiesenen Messwerte genutzt. Das kann in einigen Fällen zu Überschätzungen der tatsächlichen mittleren Werte führen.

Ergebnisse - natürliche Radionuklide

Die Wertebereiche der messtechnisch erfassten natürlich vorkommenden Radionuklide im Abwasser und Klärschlamm sind in den Diagrammen der Abbildung 13.2 als Box-Whisker-Plots dargestellt. Radionuklide der Zerfallsreihen, für die im Abwasser nur wenige, nicht aussagekräftige Messwerte vorliegen, sind ohne Wertebereiche in den Diagrammen angegeben.

Der Wertebereich für Tritium (H-3) beruht auf Messergebnissen von sehr wenigen Kläranlagen. Der Medianwert liegt etwas höher als die Tritiumkonzentration des Niederschlags.

Die Aktivitätskonzentrationen des kosmogenen Radionuklids Be-7 sind im Abwasser deutlich geringer als die des primordialen K-40, im Klärschlamm besitzen beide Radionuklide ähnliche spezifische Aktivitäten. Die unterschiedlich gute Löslichkeit des Alkalielements Kalium und des Erdalkalielelements Beryllium im Wasser führen zu dieser Verteilung.

Der Medianwert von K-40 im Abwasser von 0,73 Bq/l kann weitgehend durch die menschlichen Ausscheidungen von ca. 4 Gramm Kalium (ca. 125 Bq K-40) pro Tag und einem durchschnittlichen täglichen Wasserverbrauch von 120 Liter je Einwohner erklärt werden.

Bei den Radionukliden der Zerfallsreihen sind deutliche Ungleichgewichte in den beiden Reihen feststellbar. Im Abwasser liegen die U-238-Konzentrationen im Bereich von 3 mBq/l und damit in ähnlicher Größe wie beim U-238 im Trinkwasser

in Deutschland [26]. Im Unterschied dazu sind die Aktivitätskonzentrationen der Zerfallsprodukte des Ra-226 im Abwasser ca. eine Größenordnung höher. Da diese Radionuklide kurzlebig sind, können sie nur aus dem Zerfall von Ra-226 im Abwasser stammen.

Im Klärschlamm sind demgegenüber die Uranaktivitäten in Relation zu Ra-226 und seinen kurzlebigen Zerfallsprodukten Pb-214 und Bi-214 deutlich erhöht. Eine Ursache könnte die Mitfällung von Uran bei der Phosphatfällung im Abwasser sein.

Die besonders niedrigen spezifischen Aktivitäten von Pb-214 und Bi-214 sind zum einen ein Ergebnis der Abwasserbehandlung, bei der das Edelgas Rn-222 durch die Belüftung des Abwassers in die Atmosphäre übertritt. Dadurch sind die Rn-222 Folgeprodukte Pb-214 und Bi-214 im Klärschlamm stark gegen Ra-226 abgereichert. Da die natürlichen Radionuklide nicht im Fokus der Messroutinen der Länder stehen und keine dezidierten Berichtspflichten existieren, wird eine zügige Probenverarbeitung angestrebt und das Nachwachsen der Rn-222 Folgeprodukte nicht abgewartet.

Pb-210, das langlebige Zerfallsprodukt von Ra-226, weist im Klärschlamm in Relation zu U-238 und Ra-226 deutlich höhere spezifische Aktivitäten auf. Ursache ist die Deposition des in der Atmosphäre aus dem Zerfall von Rn-222 entstehenden Pb-210.

In der Th-232-Zerfallsreihe wurden praktisch nur kurzlebige Zerfallsprodukte von längerlebigen Vorgängern gamma-spektrometrisch bestimmt. Ac-228 (Halbwertszeit $T_{1/2} = 6$ h) steht im Gleichgewicht mit Ra-228 ($T_{1/2} = 5,7$ a). Für Pb-212, Bi-212 und Tl-208 kann im Abwasser von einem

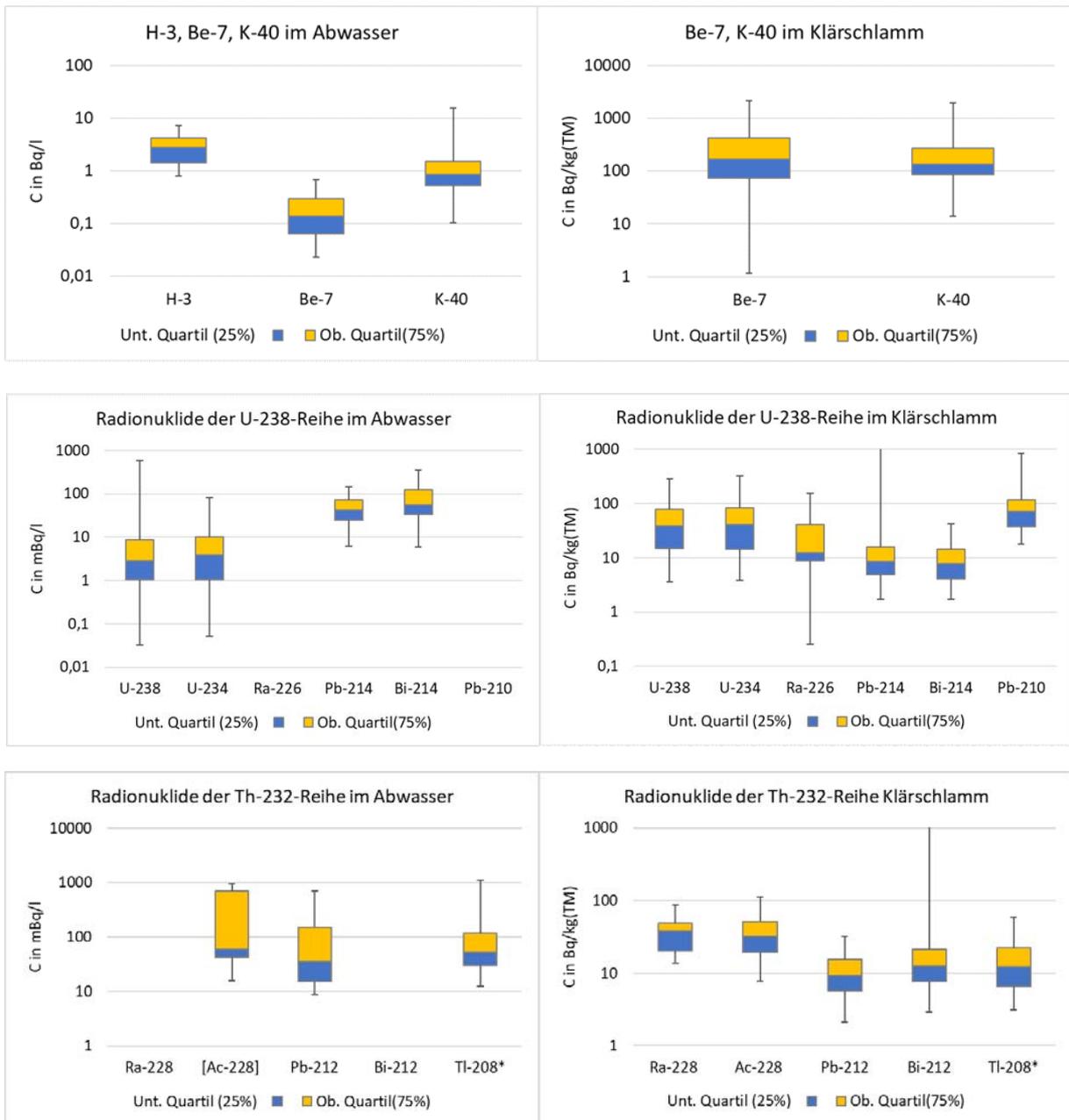


Abbildung 13.2

Box-Whisker-Plots der natürlich vorkommenden Radionuklide im Abwasser und Klärschlamm. Für die in den Diagrammen zum Abwasser fehlenden Radionuklide Ra-226, Ra-228, und Bi-212 liegen keine oder zu wenige Daten für eine statistisch repräsentative Angabe vor. Tl-208* - mit dem Verzweigungsanteil von 36 % normierter Messwert. Man beachte die unterschiedlichen Einheiten der Messergebnisse.

Gleichgewicht mit Ra-224 ($T_{1/2} = 3,6$ d), im Klärschlamm von einem Gleichgewicht mit Th-228 ($T_{1/2} = 1,9$ a) ausgegangen werden. Vor allem im Klärschlamm zeigt sich ein deutlicher Unterschied in der spezifischen Aktivität von Ra-228 (Ac-228) und Th-228 (Pb-212, Bi-212, Th-208*), der aufgrund der geringen Löslichkeit von Thorium im Wasser plausibel ist.

Ergebnisse – nuklearmedizinische Radionuklide

Nuklearmedizinische Radionuklide gelangen vor allem durch die Ausscheidungen entlassener Patienten in das Abwasser und darüber in die Kläranlagen. Die im Abwasser und Klärschlamm nachweisbaren und im IMIS-Programm analysierten nuklearmedizinisch genutzten Radionuklide sind sämtlich kurzlebig, mit Halbwertszeiten von 6 h bei Tc-99m, 2,8 d beim In-111, 8 d beim I-131 und 6,6 d beim Lu-177. Aufgrund dieser kurzen Halb-

wertszeiten werden die Analysenergebnisse einer Messung stets auf den Probennahmezeitpunkt bezogen.

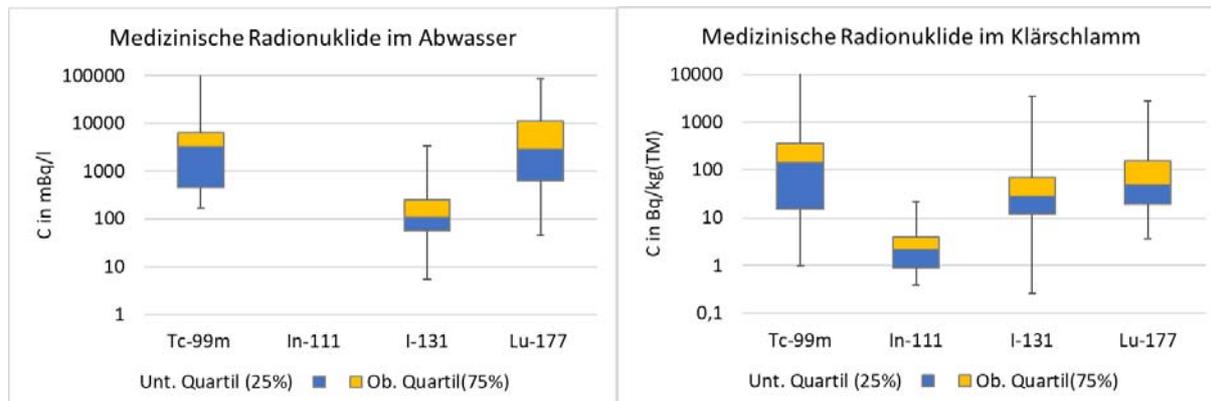


Abbildung 13.3

Box-Whisker-Plots der nuklearmedizinisch genutzten Radionuklide im Abwasser und Klärschlamm. Für In-111 gibt es keine Messergebnisse im Abwasser. Die Maximalwerte von Tc-99m liegen höher als die Maximalwerte der Ordinate. Man beachte die unterschiedlichen Einheiten der Messergebnisse im Abwasser und im Klärschlamm.

Die im Abwasser gemessenen Aktivitätskonzentrationen (s. Abbildung 13.3) reflektieren zum einen die applizierten Aktivitäten, zum anderen die diagnostische oder therapeutische Wirksamkeit. Die aus diesen Radionukliden resultierende Exposition von Beschäftigten in den Kläranlagen liegt deutlich unter der Geringfügigkeitsschwelle von $10 \mu\text{Sv}$ im Kalenderjahr [48].

Ergebnisse – Radionuklide des Fallouts

Die bei Kernwaffentests und dem Reaktorunfall von Tschornobyl freigesetzten und danach in Deutschland auf den Böden abgelagerten Radionuklide Sr-90, Cs-137, Pu-238 und Pu-239/Pu-240 (abgekürzt: Pu23940) sind Teil der allgemeinen

Umweltradioaktivität. Im Abwasser wird insbesondere Sr-90 häufig gemessen und auch detektiert. Bei gammaspektrometrischen Messungen wird Cs-137 zumeist mit ausgewertet, allerdings werden kaum Messergebnisse über der Erkennungsgrenze gefunden. Ähnliches gilt für die Plutoniumisotope, die zwar nicht so häufig wie Cs-137 analysiert werden, bei denen aber auch vielfach nur die Erkennungsgrenzen angegeben werden können. Von daher sind die in Abbildung 13.4 für Abwasser dargestellten Wertebereiche außer beim Sr-90 als überschätzend für die deutschlandweiten Mittelwerte zu interpretieren.

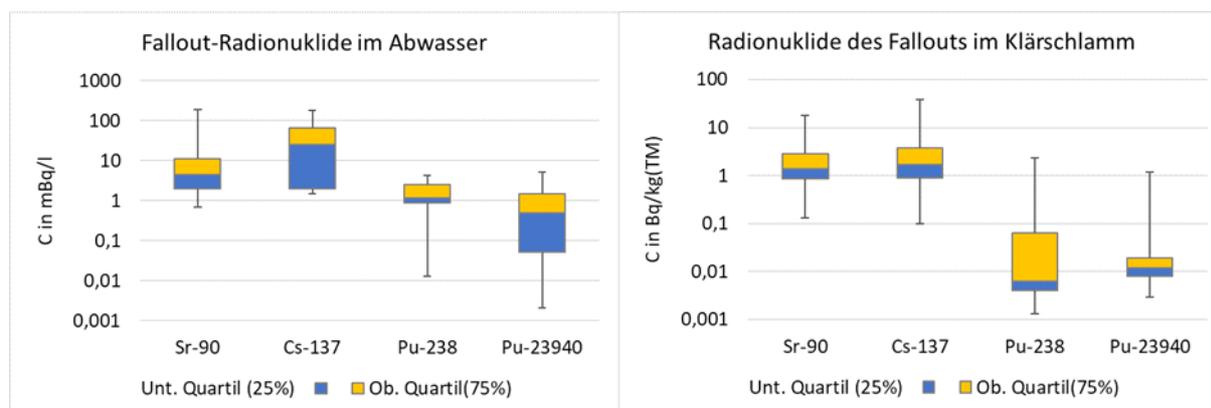


Abbildung 13.4

Box-Whisker-Plots der Radionuklide des Fallouts im Abwasser und Klärschlamm. Man beachte die unterschiedlichen Einheiten der Messergebnisse im Abwasser und im Klärschlamm

Im Klärschlamm ist die Messbarkeit der Radionuklide des Fallouts deutlich besser. Die in Abbildung 13.4 gezeigten Wertebereiche geben die derzeitige Kontamination des Klärschlammes mit den genannten Radionukliden wieder.

Schlussfolgerungen

Abwasser und Klärschlamm sind geeignete Medien, um den Eintrag von künstlichen Radionukliden in radiologischen Notfällen aber auch in der Routine durch Entwicklungen in Medizin und Forschung abzubilden und zu verfolgen. Die im Abwasser vorkommenden natürlichen Radionuklide werden durch die Prozesse der Abwasserreini-

gung teilweise in den Klärschlamm übertragen. Durch die Auswertung der im Rahmen von IMIS ermittelten Daten konnten für Abwasser und Klärschlamm die Wertebereiche von natürlich vorkommenden Radionukliden, von nuklearmedizinisch genutzten Radionukliden sowie Radionukliden, die in der Vergangenheit aus dem Fallout von Kernwaffentests und dem Reaktorunfall in Tschornobyl stammen, eingegrenzt und präzisiert werden. Durch diese Auswertung wurden Grundlagen geschaffen, mit denen die Messprogramme weiterentwickelt und die Qualitätssicherung verbessert werden können.