

# 15 RADIOAKTIVE STOFFE IN ABWASSER, KLÄRSCHLAMM UND ABFÄLLEN

P. Hofmann, K. Schmidt, C. Wittwer

Bundesamt für Strahlenschutz

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

## Radioaktive Stoffe in Abfällen

Abfälle fallen bei vielen häuslichen, kommunalen und gewerblichen einschließlich industriellen Tätigkeiten an. Bevor ein Teil dieser Abfälle auf einer Deponie gelagert werden kann, muss aus abfallrechtlicher Sicht geprüft werden, ob eine vorherige Behandlung (z. B. thermische Verwertung von Hausmüll, Kompostierung organischer Abfälle) oder eine Rückführung der Stoffe (z. B. Bauschutt, Glas, Metallschrott) oder einzelner Bestandteile in den Stoffkreislauf möglich ist. Demnach schließt in diesem Kontext der Begriff „Abfälle“ sowohl die Abfälle zur Beseitigung als auch die wiederzuverwertenden Reststoffe gemäß Kreislaufwirtschaftsgesetz mit ein. Bei der Überwachung der Umweltradioaktivität durch die amtlichen Messstellen der Länder (§ 162 StrlSchG) werden nur solche Abfälle berücksichtigt, die von radioökologischer Bedeutung sein können. In diesem Zusammenhang werden entsprechend des Routinemessprogramms (nach AVV-IMIS) in Deutschland Proben folgender Medien untersucht:

- Sickerwasser und oberflächennahes Grundwasser von Hausmülldeponien,
- Asche, Schlacke, feste und flüssige Rückstände aus Rauchgasreinigungen von Verbrennungsanlagen für Klärschlamm und Hausmüll sowie
- in den Handel gelangender Kompost aus Kompostierungsanlagen.

Im Wesentlichen werden an diesen Medien gamma-spektrometrische Untersuchungen ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{40}\text{K}$ ) vorgenommen. Im Sickerwasser und in oberflächennahem Grundwasser von Deponien wird darüber hinaus auch Tritium bestimmt.

Tabellen mit Messwerten von  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{131}\text{I}$  und Tritium ( $^3\text{H}$ ) in den überwachten Medien sind exemplarisch für das Jahr 2017 im Jahresbericht „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung“ des BMU [50] enthalten.

Tritium im Sickerwasser bzw. oberflächennahem Grundwasser von Hausmülldeponien stammt vorwiegend aus Altlasten der Uhren- und Gerätefertigung. Die Konzentrationsbereiche von Tritium in den untersuchten Proben lagen in den Jahren 2017 bis 2019 zwischen 0,88 und 430 Bq/l, die

Mediane bei 18 bzw. 20 Bq/l. In 38 % der untersuchten Proben von Hausmülldeponien wurden in den Berichtsjahren 2017 bis 2019  $^{137}\text{Cs}$  nachgewiesen. Die Aktivitätskonzentrationen lagen zwischen 0,0028 Bq/l und 0,2 Bq/l; die Größenordnung der berechneten Mediane blieb mit <0,047 Bq/l (2017), 0,043 Bq/l (2018) und <0,036 Bq/l (2019) relativ unverändert.

In einem Teil der Abfall- und Reststoffproben konnte das in der Nuklearmedizin angewandte Nuklid  $^{131}\text{I}$ , vereinzelt auch  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  und  $^{111}\text{In}$ , nachgewiesen werden. Für  $^{131}\text{I}$  reichen die Messwerte beispielsweise für das Medium Flugasche/Filterstaub von 0,37 Bq/kg TM bis 310 Bq/kg TM in den Jahren 2017 bis 2019. Die dazugehörigen Mediane sind jedoch vergleichbar niedrig und stabil mit <1,1 Bq/kg TM bzw. <1,2 Bq/kg TM. Für die spezifischen Aktivitäten des natürlich vorkommenden Nuklids  $^{40}\text{K}$  wurden in diesem Zeitraum für Flugasche/Filterstaub Messwerte im Bereich von 260 Bq/kg TM bis 6200 Bq/kg TM übermittelt.

Für  $^{60}\text{Co}$  liegen die Aktivitätskonzentrationen in den Abfall- und Reststoffproben mit einer Ausnahme ausschließlich unterhalb der geforderten Nachweisgrenze von 5 Bq/kg TM. In einer Reststoffprobe aus der Verbrennungsanlage Mannheim wurde ein tatsächlicher Messwert für  $^{60}\text{Co}$  mit 0,24 Bq/kg TM und einer Nachweisgrenze von 0,30 Bq/kg TM im Berichtsjahr 2018 gefunden.

Der Gehalt von  $^{137}\text{Cs}$  in Reststoffen und Abfällen stammt weiterhin im Wesentlichen aus dem Fallout nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl im Jahr 1986. Dies kommt, wie auch bei Klärschlamm, durch höhere Werte östlich bzw. südlich der Linie Radolfzell – Eichstätt – Regensburg – Zwiesel im Vergleich zur übrigen Bundesrepublik Deutschland zum Ausdruck. Da eine regionale Abhängigkeit auf Grund der geringen Menge an Datenpunkten im südlichen Raum jedoch nicht valide zu stützen ist, werden in der Auswertung nur die Daten des gesamten Bundesgebietes betrachtet. Die Mediane für Flugasche/Filterstaub aus Verbrennungsanlagen lagen in den Jahren 2017, 2018 und 2019 bei 16 Bq/kg TM, 17 Bq/kg TM und 14 Bq/kg TM. Für eine Probe aus dem Berichtsjahr 2019 wurde ein Messwert für das kurzlebige  $^{134}\text{Cs}$  mit

1,21 Bq/kg TM und einer Nachweisgrenze von 0,63 Bq/kg TM übermittle. Ursachen für das singuläre Auftreten konnten in Rücksprache mit der zuständigen Messstelle nicht gefunden werden.

Die Untersuchung des Kompostes ergab für  $^{137}\text{Cs}$  spezifische Aktivitäten zwischen 1,3 Bq/kg TM und 34 Bq/kg TM in dem zu betrachtenden Berichtszeitraum. Zur radiologischen Beurteilung des Kompostes aus Kompostierungsanlagen ist anzumerken, dass dieser im Gegensatz zur landwirtschaftlichen Nutzung des Klärschlammes vorzugsweise im Gartenbaubereich (Gärtnereien, Baumschulen, Parkanlagen usw.) verwendet wird. Inwiefern dieser zusätzlich aufgebrauchte Kompost zu einer signifikanten Erhöhung der  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität führt, hängt von unterschiedlichen Faktoren ab. Die Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 47 Strahlenschutzverordnung (2001) gibt unabhängig von Bodentyp und Pflanze einen Transferfaktor für  $^{137}\text{Cs}$  von 0,05 an. Vorausgesetzt, eine Pflanze würde auf einem Boden nur bestehend aus dem maximal mit  $^{137}\text{Cs}$  angereicherten Kompost von 34 Bq/kg TM angepflanzt werden, so würde das nach § 47 StrlSchV zu einer Aktivitätskonzentration in der Pflanze von bis zu 1,7 Bq/kg FM führen. Berechnet man die Dosis anhand der maximal aufgenommenen Aktivitätskonzentration von 1,7 Bq/kg FM in der Pflanze (Annahme: Wurzelgemüse, Kartoffel, Säfte, mittlere Verzehrswerte) für die Altersgruppe <1 a und den Erwachsenen (>17 a) würde man Werte von 3,2  $\mu\text{Sv/a}$  und 3,6  $\mu\text{Sv/a}$  erhalten, welche um Größenordnungen unterhalb des Dosisgrenzwertes von 1 mSv/a liegen. Somit würde die Nutzung des Kompostes bzw. der Verzehr des angebauten Produktes keine gesundheitliche Gefährdung für die Bevölkerung darstellen.

### Radioaktive Stoffe in Abwasser und Klärschlamm

Im Rahmen der Überwachung der Umweltradioaktivität nach dem StrlSchG werden gereinigte kommunale Abwässer (Klarwässer) aus den Abläufen der Kläranlagen und die bei der biologischen Abwasserreinigung in Kläranlagen anfallenden Klärschlämme untersucht. Die Messwerte für Klärschlämme beziehen sich dabei vorzugsweise auf konditionierte oder stabilisierte Schlämme in der Form, in der sie die Kläranlagen verlassen bzw. in die Klärschlammverbrennung gegeben werden, z. B. auf teilentwässerte Schlämme oder Faulschlämme. Abwässer und Klärschlämme sind radioökologisch von besonderer Bedeutung, da sich in der Umwelt befindliche künstliche und natürliche Radionuklide dort sehr stark anreichern können. Das Routinemessprogramm sieht die

Überwachung von etwa 90 Abwasserreinigungsanlagen in Deutschland vor. Vorwiegend erfolgen gammaspektrometrische Untersuchungen ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ). Darüber hinaus werden über radiochemische Verfahren die Aktivitäten von  $^{90}\text{Sr}$  sowie Plutonium- und Uranisotopen bestimmt.

In Tabelle 15.1 sind die ausgewerteten Daten der amtlichen Messstellen der Bundesrepublik Deutschland für die Berichtsjahre 2017 bis 2019 zusammengestellt ( $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  sowie  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$ ). Angegeben werden jeweils die Gesamtanzahl der untersuchten Proben, die Anzahl der untersuchten Proben mit dem Ergebnis kleiner Nachweisgrenze (NWG) sowie der kleinste und größte bestimmte tatsächliche Messwert. Um einen besseren Überblick über die Entwicklung der Datenlage zu erhalten, ist zusätzlich der für jedes Berichtsjahr berechnete nuklidspezifische Median in der Tabelle dokumentiert. Für dessen Kalkulation wird das Ergebnis kleiner Nachweisgrenze gleichrangig mit dem Zahlenwert der Nachweisgrenze wie ein tatsächlicher Messwert berücksichtigt. Für die Daten aus dem Jahr 2017 wird zusätzlich auf den bereits veröffentlichten Jahresbericht „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung“ des BMU [50] verwiesen.

Die Radionuklide  $^{40}\text{K}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$  sind natürliche Bestandteile des Bodens und damit geogenen Ursprungs. Die Gehalte in Abwasser und Klärschlamm variieren in Abhängigkeit von regionalen geologischen Gegebenheiten. Die ermittelten Aktivitätskonzentrationen bzw. spezifischen Aktivitäten von  $^{40}\text{K}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$  aus den Jahren 2017 und 2019 sind miteinander vergleichbar und stimmen auch mit den Ergebnissen der vorangegangenen Jahre gut überein.

In einem Teil der Abwasser- und Klärschlammproben wurden Anwendernuklide, wie das hauptsächlich in der Nuklearmedizin eingesetzte  $^{131}\text{I}$ , festgestellt, in Einzelfällen auch  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{111}\text{In}$  und  $^{177}\text{Lu}$ . Die Messwerte für  $^{131}\text{I}$  im Klärschlamm lagen in dem zu betrachtenden Berichtszeitraum zwischen 0,53 Bq/kg TM und 3400 Bq/kg TM; die Mediane sind mit 23 Bq/kg TM bzw. 24 Bq/kg TM vergleichbar. In vereinzelt Klärschlammproben der Anlagen Hamburg-Köhlbrandhöft, Arnsberg und München I wurden im Berichtszeitraum 2017 bis 2019 auch Messwerte für die Plutoniumisotope  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{239/240}\text{Pu}$  übermittle. Der höchste Plutoniummesswert im zu betrachtenden Berichtszeitraum wurde in einer Klärschlammprobe der Anlage München I mit 1,2 Bq/kg TM für  $^{239/240}\text{Pu}$  bestimmt.

Von den während der Zeit der atmosphärischen Kernwaffenversuche von 1945 bis etwa 1980 und des Kernkraftwerkkunfalls in Tschernobyl 1986 mit dem Fallout in die Umwelt gelangten Spalt- und Aktivierungsprodukten sind in den Abwässern und Klärschlämmen nur noch die langlebigen Leptonuklide  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  nachweisbar. Das kurzlebige Cäsiumisotop  $^{134}\text{Cs}$  (Halbwertszeit ca. 2 Jahre) war bis 2010 dagegen nicht mehr nachzuweisen. Infolge der Havarien mehrerer Reaktoren des Atomkraftwerks in Fukushima Daiichi im Jahr 2011 wurden in einigen wenigen Klärschlammproben auch wieder Spuren von  $^{134}\text{Cs}$  nachgewiesen (Maximalwert 2011: 1,4 Bq/kg TM). Mit einer Ausnahme im Berichtsjahr 2018 wurde allerdings in allen anderen Jahren seit 2012 kein  $^{134}\text{Cs}$  mehr in Klärschlammproben bestimmt.

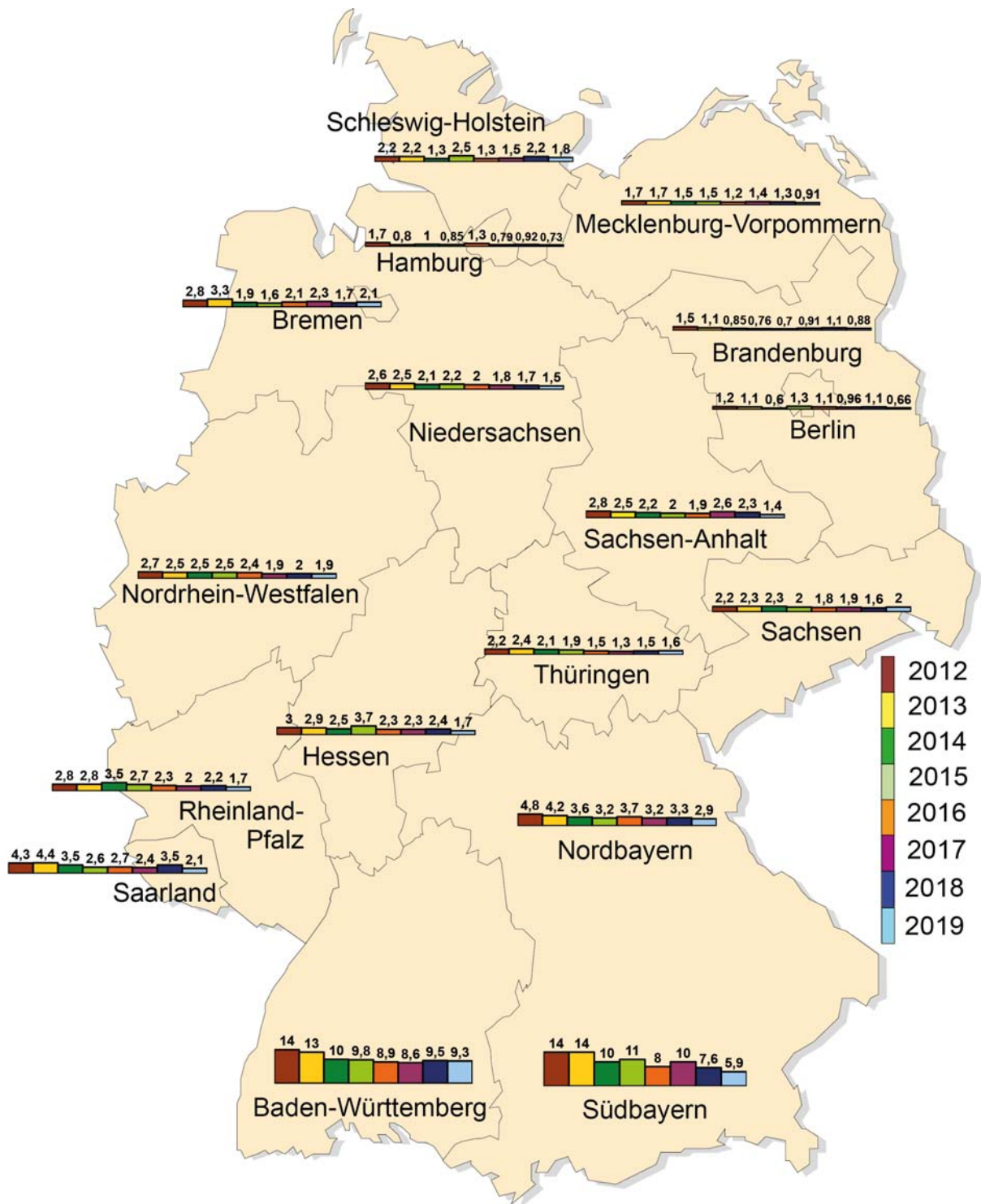
Im Berichtszeitraum 2017 bis 2019 lagen im Abwasser die Aktivitätskonzentrationen von  $^{137}\text{Cs}$  zu 99 % unterhalb der bei den Messungen erreichten Nachweisgrenzen. Als Nachweisgrenze im Abwasser werden im Routinemessprogramm 0,1 Bq/l bezogen auf  $^{60}\text{Co}$  gefordert. Die wenigen für  $^{137}\text{Cs}$  ermittelten Messwerte lagen in den zu betrachtenden Berichtsjahren zwischen 0,0015 Bq/l und 0,065 Bq/l. In ca. 50 % der Abwasserproben wurde  $^{90}\text{Sr}$  nachgewiesen. Alle übermittelten Messwerte liegen aber unter der geforderten Nachweisgrenze für die  $^{90}\text{Sr}$ -Bestimmung von 0,1 Bq/l des Routinemessprogramms.

In den untersuchten Klärschlämmen variiert die Höhe der  $^{137}\text{Cs}$ -Kontamination auf Grund des regional unterschiedlichen Eintrags deutlich. Als Folge von starken Niederschlägen Anfang Mai 1986 östlich bzw. südlich der Linie Radolfzell – Eichstätt – Regensburg – Zwiesel treten in diesen Gebieten auch heute die höchsten spezifischen Aktivitäten auf. Gemäß dieser Trennlinie sind die Werte in der Tabelle 15.1 für die nördliche und die südliche Bundesrepublik zusätzlich aufgeschlüsselt. Die Maximalwerte der spezifischen Aktivitäten (Jahresmittelwerte) zeigten 2017 bis 2019 – wie in den Vorjahren – die Klärschlämme aus der Kläranlage Tannheim (Baden-Württemberg) mit 23 Bq/kg TM, 31 Bq/kg TM und 21 Bq/kg TM, wobei es festzu-

halten gilt, dass im Jahr 2000 der Jahresmittelwert für  $^{137}\text{Cs}$  in dieser Kläranlage noch 140 Bq/kg TM betrug.

Der zeitliche Verlauf der Jahresmittelwerte für die  $^{137}\text{Cs}$ -Gehalte der Klärschlämme der einzelnen Bundesländer (Jahresmittelwerte) seit 2012 ist in Abbildung 15.1 dargestellt. Die bisherige Tendenz zur Abnahme der Kontamination der Klärschlämme ist nur noch schwach ausgeprägt. Diese Entwicklung ist auch in den höher kontaminierten Gebieten wie z. B. im südlichen Bayern zu erkennen. Lag im Jahr 1988 der  $^{137}\text{Cs}$ -Jahresmittelwert noch bei 970 Bq/kg TM, so schwanken die spezifischen Aktivitäten im Klärschlamm seit 2007 zwischen 6 Bq/kg TM und 20 Bq/kg TM. Auf Grund dieses inzwischen erreichten sehr niedrigen Niveaus der spezifischen Aktivität der Klärschlämme sind die zu beobachtenden Schwankungen hauptsächlich durch die messtechnisch bedingten Unsicherheiten und die natürliche Heterogenität der Proben erklärbar.

Zur Einordnung und Bewertung der ermittelten Klärschlammkontamination kann die landwirtschaftliche Nutzung der Klärschlämme betrachtet werden. Wird z. B. Klärschlamm mit einer spezifischen Aktivität von etwa 31 Bq/kg TM (höchster Jahresmittelwert der Kläranlage Tannheim in den zu betrachtenden Berichtsjahren 2017 bis 2019) in einer Menge von 0,5 kg auf einer Fläche von einem Quadratmeter innerhalb von drei Jahren (Werte gemäß Klärschlammverordnung) ausgebracht, entspricht dies einer mittleren jährlichen Aktivitätszufuhr von etwa  $5 \text{ Bq/m}^2$   $^{137}\text{Cs}$ . Dies bedeutet bei einer für das Einzugsgebiet entsprechenden Kläranlage typischerweise vorhandenen Flächenkontamination von ca.  $15000 \text{ Bq/m}^2$   $^{137}\text{Cs}$  eine jährliche Aktivitätszufuhr in den Boden von weniger als 0,05 %. Hierbei ist aber anzumerken, dass eine solche Aufstockung des  $^{137}\text{Cs}$ -Inventars durch den radioaktiven Zerfall des bereits im Boden befindlichen Inventars in der Höhe von 2,3 % pro Jahr um ein Vielfaches kompensiert wird.



Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz

Abbildung 15.1  
 Der zeitliche Verlauf der Kontamination von Klärschlamm mit  $^{137}\text{Cs}$  in Bq/kg Trockenmasse  
 (Ländermittelwerte)

**Tabelle 15.1**  
**Allgemeine Überwachung von Abwasser und Klärschlamm 2017 - 2019**

Land	Nuklid	Anzahl		Minimalwert <sup>1</sup>	Maximalwert <sup>1</sup>	Median <sup>1</sup>		
		gesamt	<NWG			2017	2018	2019
		2017-2019				2017	2018	2019
<b>Abwasser aus Kläranlagen, Ablauf (Bq/l)</b>								
Deutschland gesamt	<sup>40</sup> K	1153	490	0,14	8,3	<0,81	<0,9	0,93
	<sup>60</sup> Co	1153	1153	-	-	<0,026	<0,032	<0,032
	<sup>131</sup> I	1029	676	0,0066	1,8	<0,085	0,092	<0,099
	<sup>137</sup> Cs	1153	1147	0,0015	0,065	<0,022	<0,032	<0,03
	<sup>90</sup> Sr	210	106	0,0008	0,098	0,0064	<0,0098	0,0079
	<sup>234</sup> U	197	75	5,7E-05	0,079	<0,0043	<0,0044	0,0047
	<sup>235</sup> U	202	172	1,5E-05	0,0032	0,0011	<0,001	<0,002
	<sup>238</sup> U	198	76	3,3E-05	0,57	<0,0035	0,0035	<0,0036
<b>Klärschlamm (Bq/kg TM)</b>								
Deutschland gesamt	<sup>40</sup> K	1085	17	23	1600	120	120	120
	<sup>60</sup> Co	1084	1084	-	-	<0,78	<0,7	<0,58
	<sup>131</sup> I	1007	123	0,53	3400	23	24	24
	<sup>137</sup> Cs	1085	269	0,27	37	1,7	1,6	1,6
	<sup>90</sup> Sr	187	28	0,4	5,2	<1,1	1,2	1,2
	<sup>234</sup> U	179	0	4,7	280	39	26	44
	<sup>235</sup> U	227	48	0,29	20	2,0	2,4	2,1
	<sup>238</sup> U	231	0	4,1	250	39	37	39
Deutschland (Nord <sup>2</sup> )	<sup>60</sup> Co	991	991	-	-	<0,77	<0,65	<0,55
	<sup>137</sup> Cs	992	267	0,27	33	1,5	1,5	1,5
	<sup>90</sup> Sr	179	27	0,4	5,2	1,1	1,2	1,2
Deutschland (Süd <sup>3</sup> )	<sup>60</sup> Co	93	93	-	-	<1,3	<1,4	<0,92
	<sup>137</sup> Cs	93	2	1,4	37	11	7,7	7,4
	<sup>90</sup> Sr	8	1	0,55	22,4	2,7	3,6	2,2

- 1) Der angegebene Median berücksichtigt das Messergebnis „<NWG“ so, als wäre ein tatsächlicher Messwert gleich der NWG erhalten worden.
- 2) nördlich bzw. westlich der Linie Radolfzell-Eichstätt-Regensburg-Zwiesel
- 3) östlich bzw. südlich der Linie Radolfzell-Eichstätt-Regensburg-Zwiesel