



Bundesamt
für Strahlenschutz

Ressortforschungsberichte zum Strahlenschutz

Radioaktivität in Klärschlamm - Erfassung des aktuellen Forschungsstandes unter Einbindung der Messdaten der IMIS-Datenbank

Vorhaben 3622S52530

Öko-Institut e.V.

Dr.-Ing. Veronika Ustohalova

Dr. Rainer Gellermann (Nuclear Control & Consulting GmbH)

Alexandra Müller (Nuclear Control & Consulting GmbH)

Das Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Klimaschutz,
Naturschutz und nukleare Sicherheit (BMUKN) und im Auftrag des Bundesamtes für
Strahlenschutz (BfS) durchgeführt.

Dieser Band enthält einen Ergebnisbericht eines vom Bundesamt für Strahlenschutz im Rahmen der Ressortforschung des BMUKN (Ressortforschungsplan) in Auftrag gegebenen Untersuchungsvorhabens. Verantwortlich für den Inhalt sind allein die Autoren. Das BfS übernimmt keine Gewähr für die Richtigkeit, die Genauigkeit und Vollständigkeit der Angaben sowie die Beachtung privater Rechte Dritter. Der Auftraggeber behält sich alle Rechte vor. Insbesondere darf dieser Bericht nur mit seiner Zustimmung ganz oder teilweise vervielfältigt werden.

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

Impressum

Bundesamt für Strahlenschutz
Postfach 10 01 49
38201 Salzgitter

Tel.: +49 30 18333-0
Fax: +49 30 18333-1885
E-Mail: ePost@bfs.de
De-Mail: epost@bfs.de-mail.de

www.bfs.de

BfS-RESFOR-271/26

Bitte beziehen Sie sich beim Zitieren dieses Dokumentes immer auf folgende URN:
[urn:nbn:de:0221-2026092162666](https://nbn-resolving.org/urn:nbn:de:0221-2026092162666)

Salzgitter, September 2026

Radioaktivität in Klärschlamm - Erfassung des aktuellen Forschungsstandes unter Einbindung der Messdaten der IMIS- Datenbank: Abschlussbericht

Darmstadt, 23.07.2024

Autorinnen und Autoren

Dr.-Ing. Veronika Ustohalova
Öko-Institut e.V.

Dr. Rainer Gellermann
Nuclear Control & Consulting GmbH (NCC)

Alexandra Müller
Nuclear Control & Consulting GmbH (NCC)

Kontakt

www.oeko.de

Geschäftsstelle Freiburg

Postfach 17 71
79017 Freiburg

Hausadresse

Merzhauser Straße 173
79100 Freiburg
Telefon +49 761 45295-0

Büro Berlin

Borkumstraße 2
13189 Berlin
Telefon +49 30 405085-0

Büro Darmstadt

Rheinstraße 95
64295 Darmstadt
Telefon +49 6151 8191-0

Partner



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

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	9
Tabellenverzeichnis	13
Abkürzungsverzeichnis	17
1 Einleitung	21
2 Grundlagen I: Informationsquellen und Methodik der Recherche	22
2.1 Methodik	22
2.1.1 Quellen	22
2.1.2 Liste der Stichworte und Plattformen	23
2.2 Struktur der Datenbank in EndNote und einzelne Quellen im Überblick	23
2.2.1 Aufbau der Datenbankstruktur	23
2.2.2 Nationales Regelwerk	26
2.2.3 Internationale Richtlinien und Empfehlungen	27
2.2.4 Internationale Messprogramme	28
2.2.5 Nationale Messprogramme und Daten-Archive des BfS, Berichte BfS und BMUV, Fachverband für Strahlenschutz	34
2.2.6 Forschung	34
2.2.6.1 Nationale Forschung	35
2.2.6.2 Internationale Forschung	37
2.2.7 Literatur zu Tschernobyl und Fukushima	37
2.2.8 Radionuklide im medizinischen Bereich und NORM	39
3 Grundlagen II: Klärwerkstechnik in Deutschland	40
3.1 Abwasser	40
3.2 Prozesse der Abwasserreinigung	41
3.2.1 Allgemeines	41
3.2.2 Technische Verfahren der kommunalen Entwässerung	45
3.2.3 Reinigungsstufe 1: Mechanische Reinigung	45
3.2.4 Reinigungsstufe 2: Biologische Reinigung	46
3.2.5 Reinigungsstufe 3: Chemische Reinigung zur Phosphatelimination	47
3.2.6 Zusätzliche Reinigungsverfahren	48
3.2.6.1 Aktivkohle	48

3.2.6.2	Filter vor Einleitung	48
3.2.7	Schlammbehandlung	48
3.2.8	Naturnahe Nachbehandlung	49
3.3	Radionuklidumverteilung bei Prozessen in Kläranlagen	49
3.4	Hauptmassenströme in Kläranlagen	51
3.5	Klärschlammentsorgung	53
4	Fokus der Recherchen: relevante Radionuklide	55
4.1	Natürliche Radionuklide	55
4.2	Radionuklide aus medizinischen Anwendungen in Diagnostik und Therapie	57
4.3	Radionuklide in Forschungseinrichtungen und Laboren	58
4.4	Atmosphärischer Fallout durch kerntechnische Unfälle oder Kernwaffenversuche	59
4.5	Bei den Recherchen besonders beachtete Radionuklide	59
5	Rechercheergebnisse zur Radioaktivität im Abwasser und Klärschlamm nach den Unfällen in Tschernobyl und Fukushima	61
5.1	Zusammenfassende Darstellung der recherchierten Publikationen	61
5.2	Tschernobyl	65
5.3	Fukushima	71
5.4	Eingang in internationale Richtlinien	75
5.5	Schlussfolgerungen	75
6	Rechercheergebnisse zur Radioaktivität im Abwasser und Klärschlamm aus medizinischen Anwendungen	77
6.1	Zusammenfassende Darstellung der recherchierten Publikationen zu Radionukliden aus medizinischen Anwendungen	77
6.2	Nationale Forschung	82
6.2.1	Projekt TransAqua und Publikationen	84
6.3	Internationale Forschung	87
6.3.1	Modellierung des Radionuklidtransfers in der Kläranlage und Dosisabschätzung	87
6.3.2	Messungen der Freisetzungen von Radiopharmaka in das Abwassersystem und Dosisabschätzung	92
6.3.3	Weitere Arbeiten	103
6.4	Schlussfolgerungen	105
7	Auswertung von IMIS-Daten	107
7.1	Zur Rolle der IMIS-Daten	107

7.2	Im Rahmen des IMIS-Programms bestimmte Radionuklide	107
7.3	Angaben zum Datensatz	111
7.4	Auswertung der Gesamtdaten Abwasser	113
7.5	Auswertung der Gesamtdaten Klärschlamm	117
7.6	Radionuklidspezifische Messwerte und Nachweisgrenzen bei Abwasser	119
7.6.1	Messverfahren	119
7.6.2	Probenahmeart	123
7.6.3	Analyse von Nachweisgrenzen (Radionuklide mit weniger als 3% Messwerten)	124
7.6.4	Nachweis- und Erkennungsgrenzen	130
7.6.5	Nuklearmedizinisch genutzte Radionuklide	132
7.6.6	Radionuklide des Fallouts	136
7.6.7	Natürlich vorkommende Radionuklide	138
7.7	Radionuklidspezifische Messwerte und Nachweisgrenzen bei Klärschlamm	147
7.7.1	Messverfahren	147
7.7.2	Probenahmeart	149
7.7.3	Analyse von Nachweisgrenzen (Radionuklide mit weniger als 3% Messwerten)	150
7.7.4	Nachweis- und Erkennungsgrenzen	155
7.7.5	Nuklearmedizinisch genutzte Radionuklide	156
7.7.6	Radionuklide des Fallouts	158
7.7.7	Natürlich vorkommende Radionuklide	159
7.8	Weitergehende Auswertungen Abwasser	164
7.8.1	Messstellenbezogene Auswertungen	164
7.8.2	Ortsbezogene Auswertungen	167
7.8.3	Zeitreihen	175
7.9	Weitergehende Auswertungen Klärschlamm	177
7.9.1	Ortsbezogene Auswertungen	177
7.9.2	Zeitreihen	186
7.9.3	Verteilungsverhältnisse und Korrelationen	188
7.9.4	Selten gemessene Radionuklide	193
8	Auswertung der Ergebnisse bezüglich medizinischer Radionuklide und Dosisberechnung	196
8.1	Applizierte Aktivitäten	196
8.2	Berechnung von Dosiswerten: Modellansatz	201

8.2.1	Modellkonzept	201
8.2.2	Modellannahmen	202
8.2.3	Modellergebnisse	203
9	Ausblick auf zukünftige Labor- und Modellierungsarbeiten	205
9.1	Ausblick und Empfehlungen zu Laborarbeiten und Qualitätssicherung	205
9.1.1	Ausblick und Empfehlungen zu Laborarbeiten	206
9.1.2	Qualitätssicherung	207
9.2	Ausblick und Empfehlungen zu Modellierungsarbeiten	211
10	Anhang	214
	Anhang I. Tabellen zur Auswertung der IMIS-Datenbank	214
	Anhang II. Übersicht über nuklearmedizinisch genutzte Radionuklide	242
	Anhang III. Dosisabschätzungen	245
	Literaturverzeichnis	256

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 3-1: Genereller Aufbau einer dreistufigen Kläranlage	44
Abbildung 3-2: Einwohnerbezogenen Jahresmengen an Abwasser und darin enthaltenes häusliches und betriebliches Schmutzwasser	51
Abbildung 3-3: Zukünftige Entsorgungswege für Klärschlamm aus Kläranlagen über 50.000 EW	54
Abbildung 6-1: Blockdiagramm des Klärwerks Bremen-Seehausen	87
Abbildung 6-2: Prozentuelle Anteile des verabreichten und in das Abwassersystem freigesetzten I-131	98
Abbildung 7-1: Zusammenhang zwischen Anteil der Messwerte an der Gesamtzahl der Messungen in den drei unterschiedlichen Messprogrammen und dem Verhältnis des Mittelwertes der Messwerte zum Mittelwert der Nachweisgrenzen (NWG)	117
Abbildung 7-2: Zusammenhang zwischen Anteil der Messwerte über der Erkennungsgrenze an der Gesamtzahl der Messungen in den drei Messprogrammen und dem Verhältnis des Mittelwertes der Messwerte zum Mittelwert der Nachweisgrenze (NWG)	119
Abbildung 7-3: Häufigkeitsverteilungen der Lagerzeit der Proben vor der Messung bei den drei Messprogrammen in den Messprogrammen „Normal-/Routinebetrieb“ „Land“ und „Störfall-/Intensivbetrieb“	122
Abbildung 7-4: Häufigkeitsverteilungen der Lagerzeit der Proben vor der Messung bei den Messverfahren Gammaskpektrometrie (G1), Alphaskpektrometrie (A1) und Betaskpektrometrie (BS) in den Messprogrammen „Normal-/Routinebetrieb“ und „Land“	123
Abbildung 7-5: Häufigkeitsverteilungen von Nachweisgrenzen (NWG) für häufig ausgewiesene Radionuklide, für die keine Messwerte ausgewiesen sind.	125
Abbildung 7-6: Häufigkeitsverteilungen von Nachweisgrenzen (NWG) und Messwerten (MW) für Radionuklide, für die nur wenige Messwerte ausgewiesen sind.	127
Abbildung 7-7: Zusammenhänge zwischen Nachweisgrenzen und Lagerzeit der Proben vor der Messung.	129
Abbildung 7-8: Verhältnis von Nachweisgrenzen für Messungen im Störfall-/Intensivbetrieb bzw. im Landesmessprogramm mit denen im Normal-/Routinebetrieb	132
Abbildung 7-9: Häufigkeitsverteilungen von Messwerten (MW) und Nachweisgrenzen (NWG) von nuklearmedizinisch genutzten Radionukliden im Abwasser in den drei Messprogrammen	133
Abbildung 7-10: Box-Whisker-Plot der Messwerte von nuklearmedizinischen Radionukliden im Abwasser (N – Normal-/Routinebetrieb; SF – Störfall-/Intensivbetrieb)	136

Abbildung 7-11: Häufigkeitsverteilungen von Messwerten (MW) und Nachweisgrenzen (NWG) von Fallout-Radionukliden im Abwasser in den unterschiedlichen Messprogrammen. Kürzel hinter den Nuklidsymbolen stehen für die Messverfahren. Erläuterungen s. Textteil	137
Abbildung 7-12: Häufigkeitsverteilungen der Messwerte (MW) und Nachweisgrenzen (NWG) für H-3 und K-40 im Abwasser bei unterschiedlichen Messprogrammen	139
Abbildung 7-13: Häufigkeitsverteilungen der Messwerte (MW) und Nachweisgrenzen (NWG) für Radionuklide der U-238 Zerfallsreihe (Ra-226 und seine Tochternuklide sowie U-238) in den unterschiedlichen Messprogrammen. Kürzel hinter dem Nuklidsymbol geben Analyseverfahren an.	141
Abbildung 7-14: Box-Whisker-Plot der Messwerte von Radionukliden der U-238 -Zerfallsreihe im Abwasser (N – Normal-/Routinebetrieb)	143
Abbildung 7-15: Häufigkeitsverteilungen der Messwerte (MW) und Nachweisgrenzen (NWG) für Radionuklide der Th-232 Zerfallsreihe in den unterschiedlichen Messprogrammen. Nuklidsymbole in Klammern geben die durch die Messwerte erfassten Vorgängernuklide an.	144
Abbildung 7-16: Box-Whisker-Plot der Messwerte von Radionukliden der Th-232-Zerfallsreihe im Abwasser (N – Normal-/Routinebetrieb)	145
Abbildung 7-17: Histogramm der Aktivitätsverhältnisse U-235/U-238 im Abwasser. Nur Daten aus Normal-/Routinebetrieb. X-Achse bis 10% linear, danach logarithmisch geteilt.	146
Abbildung 7-18: Häufigkeitsverteilungen der Lagerzeit der Proben vor der Messung bei den drei Messprogrammen	149
Abbildung 7-19: Häufigkeitsverteilungen der Lagerzeit der Proben vor der Messung bei den Messverfahren Gammaskpektrometrie (G1) und Alphaskpektrometrie (A1) in den Messprogramm Normal-/Routinebetrieb und „Land“	149
Abbildung 7-20: Häufigkeitsverteilungen von Nachweisgrenzen für Radionuklide, für die bei Klärschlamm keine oder maximal 3% Messwerte ausgewiesen sind	151
Abbildung 7-21: Häufigkeitsverteilungen von Nachweisgrenzen (NWG) und Messwerten (MW) im Normal-/Routinebetrieb für Pu-239/40	152
Abbildung 7-22: Häufigkeitsverteilungen von Nachweisgrenzen (NWG) und Messwerten (MW) für nuklearmedizinisch genutzte Radionuklide in den unterschiedlichen Messprogrammen	154
Abbildung 7-23: Zusammenhänge zwischen Nachweisgrenzen und Lagerzeit der Proben vor der Messung. Die Angaben nach dem Nuklidkürzel sind die zugehörigen Werte der Halbwertszeit	155
Abbildung 7-24: Messwerte von Pb-214 und Bi-214 an gleichzeitig entnommenen Proben	163
Abbildung 7-25: Messwerte von Pb-212 und Bi-212 an gleichzeitig entnommenen Proben	164
Abbildung 7-26: Aus den Messdaten errechnete messstellenbezogenen Mittelwerte von I-131, Lu-177 und Sr-90. Abszisse: Messstellennummer aus IMIS	166

Abbildung 7-27: Aus den Messdaten errechnete messstellenbezogenen Mittelwerte von K- 40 und U-238. Abszisse: Messstellennummer aus IMIS	167
Abbildung 7-28: Mittelwerte der gemessenen I-131-Konzentrationen im Abwasser einzelner Kläranlagen	169
Abbildung 7-29: Mittelwerte der gemessenen K-40-Konzentrationen im Abwasser einzelner Kläranlagen	171
Abbildung 7-30: Mittelwerte der gemessenen Sr-90-Konzentrationen im Abwasser einzelner Kläranlagen	172
Abbildung 7-31: Mittelwerte der gemessenen Lu-177-Konzentrationen in einzelnen Kläranlagen	173
Abbildung 7-32: Medianwerte der Datensätze und Mittelwerte der gemessenen U-238-Konzentrationen in einzelnen Kläranlagen	174
Abbildung 7-33: Zeitreihen von H-3, K-40 und U-238 im Abwasser. Messprogramm Normal-/Routinebetrieb oder „Land“	175
Abbildung 7-34: Zeitreihen von Sr-90, I-131 und Lu-177	176
Abbildung 7-35: Mittelwerte der gemessenen spezifischen Aktivitäten von I-131 im Klärschlamm einzelner Kläranlagen. Erläuterung zu „Tannheim“ s. Textteil	178
Abbildung 7-36: Mittelwerte der gemessenen spezifischen Aktivitäten von Lu-177 im Klärschlamm einzelner Kläranlagen. Hellblaue Balken: nur 1 Messwert	179
Abbildung 7-37: Mittelwerte der gemessenen spezifischen Aktivitäten von Sr-90 im Klärschlamm einzelner Kläranlagen	180
Abbildung 7-38: Mittelwerte der gemessenen spezifischen Aktivitäten von Cs-137 im Klärschlamm einzelner Kläranlagen	181
Abbildung 7-39: Wertebereiche (Min – Mittel – Max) von K-40 im Klärschlamm von Kläranlagen der Bundesländer. Blau: „Nord“; braun: „Süd“	183
Abbildung 7-40: Mittelwerte von Be-7 im Klärschlamm einzelner Kläranlagen	183
Abbildung 7-41: Mittelwerte der gemessenen spezifischen Aktivitäten von K-40 im Klärschlamm einzelner Kläranlagen	184
Abbildung 7-42: Mittelwerte der gemessenen spezifischen Aktivitäten von U-238 im Klärschlamm einzelner Kläranlagen	185
Abbildung 7-43: Zeitreihen I-131 und Lu-177 im Klärschlamm.	187
Abbildung 7-44: Zeitreihen Cs-137 und Sr-90 im Klärschlamm.	187
Abbildung 7-45: Zeitreihen von Be-7 und U-238 im Klärschlamm.	188

Abbildung 7-46: Zusammenhang zwischen mittleren Werten der Aktivität im Klärschlamm und im Abwasser von einzelnen Kläranlagen.	191
Abbildung 7-47: Korrelation von Sr-90 und Cs-137 in Klärschlamm und Böden	192
Abbildung 7-48: Zusammenhänge von I-131 mit Be-7 und Cs-137 mit Be-7 im Klärschlamm	193
Abbildung 8-1: Applizierte Aktivität nuklearmedizinischer Radionuklide in der Schweiz. Radionuklide mit mehr als 0,5 TBq Gesamtaktivität	197
Abbildung 8-2: Applizierte Aktivität nuklearmedizinischer Radionuklide in der Schweiz. Radionuklide mit weniger als 0,5 TBq applizierter Gesamtaktivität.	198
Abbildung 9-1: Kenngrößen zur Charakterisierung der Spreizung der Daten von I-131, Lu-177 und K-40 im Klärschlamm von vier Klärwerken der Berliner Wasserbetriebe	210

Tabellenverzeichnis

Tabelle 2-1: Screenshot Ausschnitt EndNote-Datenbank	24
Tabelle 2-2: Aktuelle Struktur der EndNote-Datenbank	25
Tabelle 2-3: Statistische Kennziffern von spezifischen Aktivitäten im Klärschlamm in den USA. ND – Nicht nachgewiesen. Daten aus (ISCORS 2003)	31
Tabelle 3-1: Zu überwachende Anlagen und Relevanz von Radionukliden im Abwasser nach (AbwV, 2022)	40
Tabelle 3-2: Jahresabwassermengen im Jahr 2019	42
Tabelle 3-3: Anzahl der Kläranlagen mit dort betriebenen Prozessen der Abwasserbehandlung, Jahresbezug: 2019	43
Tabelle 3-4: Generelle Prozesse in Kläranlagen	44
Tabelle 3-5: Charakterisierung des stofflichen Verhaltens von chemischen Elementen in wässrigen Lösungen mit Feststoffen. K_r^{Se} und T_{Anl} aus (AVV, 2020)	50
Tabelle 3-6: Zeitliche Entwicklung der Anzahl der öffentlichen Abwasserbehandlungsanlagen und der behandelten Jahresabwassermengen seit 2007	51
Tabelle 3-7: Spezifische Klärschlamm-mengen je angeschlossenem Einwohner E	52
Tabelle 3-8: Größenklassen der öffentlichen Abwasserbehandlungsanlagen und behandelte Jahresabwassermengen im Jahr 2010	53
Tabelle 3-9: Technische Verfahren zur Abwasserreinigung in den öffentlichen Abwasserbehandlungsanlagen (Bezug: 2019)	53
Tabelle 4-1: Natürlich vorkommenden Radionuklide und Bewertung (HWZ nach (StrlSchV, 2021))	55
Tabelle 4-2: Zahl der Genehmigungen nach § 7 StrlSchV (Stand: 31.12.2018) (Datenquelle: BMU 2020 – Jahresbericht Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung 2018)	58
Tabelle 4-3: Aktivität von eingeführten Radionuklide in GBq	59
Tabelle 4-4: Für die Recherchen besonders zu beachtende Radionuklide	60
Tabelle 5-1: Messwerte der spezifischen Aktivität von I-131 und Cs-137 in Klärschlammproben	66
Tabelle 6-1: Vergleich einzelner Retentionsfaktoren	96
Tabelle 6-2: Rückhaltung von medizinischen Radionukliden im Klärschlamm: vergleichende Auswertung von Daten	102

Tabelle 7-1: In der Datenbank IMIS aufgeführte Radionuklide, die bei der Überwachung von Klärschlamm und Abwasser nur im Messregime Störfall-/Intensivbetrieb bestimmt wurden (ausgewerteter Zeitraum 2016 – 2022)	109
Tabelle 7-2: Für die vertiefende Auswertung geeignete Radionuklide mit Anzahl der zugehörigen Datensätze in den drei unterschiedlichen Messregimen	110
Tabelle 7-3: Übersicht über die aus IMIS extrahierten Datensätze	112
Tabelle 7-4: Abfragedaten der IMIS-Recherche	112
Tabelle 7-5: Ausreißerwerte der Nachweisgrenzen bei Abwasseranalysen	114
Tabelle 7-6: Liste der Messwerte < 0,4 NWG bei Abwasseranalysen	115
Tabelle 7-7: Zusammenstellung der Messanleitungen für Radionuklide im Abwasser im Rahmen der IMIS-Messprogramme RMP (Routinemessprogramm) und IMP (Störfall-/Intensivmessprogramm)	120
Tabelle 7-8: Zusammenstellung der Radionuklide im Abwasser, die ausschließlich mit einem Messverfahren bestimmt wurden. * - Radionuklid wurde einmal mit anderen Verfahren (IMIS: S4) bestimmt	121
Tabelle 7-9: Zusammenstellung aller Radionuklide, die mit mehreren Messverfahren bestimmt wurden	121
Tabelle 7-10: Anzahl der Proben aus unterschiedlichen Probenarten sowie zugehörige statistische Kenngrößen normiert auf den gesamten Datensatz für den Parameter K-40	124
Tabelle 7-11: Anzahl der Proben aus unterschiedlichen Probenarten sowie zugehörige statistische Kenngrößen normiert auf den gesamten Datensatz für den Parameter I-131	124
Tabelle 7-12: Radionuklide mit Messwerten < 80% der Nachweisgrenze im Normal-/Routinebetrieb	131
Tabelle 7-13: Statistische Kennziffern der Datensätze von nuklearmedizinisch genutzten Radionukliden im Abwasser. Messprogramm: Normal-/Routinebetrieb	135
Tabelle 7-14: Statistische Kennziffern der Datensätze von Fallout-Radionukliden im Abwasser. Messprogramm: Normal-/Routinebetrieb	138
Tabelle 7-15: Statistische Kennziffern der Datensätze von H-3, K-40 und U-Isotopen im Abwasser. Messprogramm: Normal-/Routinebetrieb	140
Tabelle 7-16: Statistische Kennziffern der Datensätze von Radionukliden der natürlichen Zerfallsreihen im Abwasser. Messprogramm: Normal-/Routinebetrieb	142
Tabelle 7-17: Zusammenstellung der Messanleitungen für Radionuklide im Klärschlamm im Rahmen der IMIS-Messprogramme RMP (Normal-/Routinemessprogramm) und IMP (Störfall-/Intensivmessprogramm)	147

Tabelle 7-18: Zusammenstellung der Radionuklide und der zu ihrer Bestimmung verwendeten Messverfahren bei Klärschlamm	148
Tabelle 7-19: Bewertung von Nachweisgrenzen ausgewählter Radionuklide	153
Tabelle 7-20: Radionuklide mit Messdaten als Anzahl Messwerte (MW) unter 80% der Nachweisgrenze (NWG) im Klärschlamm im Messregime Normal-/Routinebetrieb	156
Tabelle 7-21: Statistische Kennziffern der Messwerte des Klärschlammes von nuklearmedizinisch genutzten Radionukliden: Normal-/Routinemessprogramm und „Land“ (N), Störfall-/Intensivmessprogramm (SF)	157
Tabelle 7-22: Statistische Kennziffern der Messwerte von Fallout-Radionukliden im Klärschlamm: Normal-/Routinemessprogramm und „Land“ (N), Störfall-/Intensivmessprogramm (SF)	159
Tabelle 7-23: Statistische Kennziffern der Datensätze von K-40 und Uran-Isotopen im Klärschlamm. Messprogramme Normal-/Routinebetrieb und „Land“	160
Tabelle 7-24: Statistische Kennziffern der Datensätze von Radionukliden aus der U-238 Zerfallsreihe im Klärschlamm. Messprogramme Normal-/Routinebetrieb und „Land“	161
Tabelle 7-25: Statistische Kennziffern der Datensätze von Radionukliden der Th-232-Zerfallsreihe. Messprogramme Normal-/Routinebetrieb und „Land“	162
Tabelle 7-26: Jahresmittelwerte I-131 im Abwasser großer norddeutscher Kläranlagen	170
Tabelle 7-27: Statistische Kennziffern von nuklearmedizinischen und Fallout-Radionukliden im Klärschlamm errechnet aus Mittelwerten der Kläranlagen	177
Tabelle 7-28: Statistische Kennziffern von natürlich vorkommenden Radionukliden im Klärschlamm errechnet aus Mittelwerten der Kläranlagen	182
Tabelle 7-29: Statistische Kennziffern von U-238 im Klärschlamm errechnet aus Mittelwerten der Kläranlagen	186
Tabelle 7-30: Aus statistischen Kenngrößen berechnete K_r^{Se} -Werte für Konzentrationsverhältnisse Klärschlamm / Abwasser für auswertbare Radionuklide	190
Tabelle 7-31: Aus Konzentrationsverhältnissen Klärschlamm / Abwasser berechnete Anteile der über Klärschlamm ausgetragenen Aktivität J_r^{KS} Werte)	191
Tabelle 7-32: Ergebnisse einer alphaspektrometrischen Analyse einer Klärschlammprobe vom 16.08.2016	195
Tabelle 8-1: Applizierte I-131-Aktivität in Deutschland in 2002	197
Tabelle 8-2: Einleitungen von nuklearmedizinischen Radionukliden in Südaustralien	200
Tabelle 8-3: Dosiswerte für nuklearmedizinische Radionuklide im Normalbetrieb	204
Tabelle 8-4: Dosiswerte für nuklearmedizinische Radionuklide im Ereignisfall	204
Tabelle 8-5: Dosiswerte für Radionuklide aus dem Fallout im Normalbetrieb	205

Tabelle 8-6: Dosiswerte für Radionuklide aus dem Fallout im Ereignisfall	205
Tabelle 9-1: Technische Kenngrößen der vier im IMIS-Programm beprobten Kläranlagen der Berliner Wasserbetriebe	208
Tabelle 9-2: Mittlere spezifische Aktivitäten von I-131, Lu-177 und K-40 der vier im IMIS-Programm beprobten Kläranlagen der Berliner Wasserbetriebe	209
Tabelle 10-1: Übersicht über alle an den Proben der Jahre 2016 bis 2022 im Abwasser bestimmten Radionuklide bzw. radioaktivitätsbezogene Parameter	214
Tabelle 10-2: Übersicht Radionuklide mit Anzahl der Messungen und der Messwerte (Abwasser)	216
Tabelle 10-3: Übersicht Radionuklide mit Anzahl der Messungen und der Messwerte (Klärschlamm)	220
Tabelle 10-4: Übersicht Messregime und Anzahl der Messwerte	224
Tabelle 10-5: Radionuklide und Anzahl der Messungen	228
Tabelle 10-6: Übersicht über alle an den Proben der Jahre 2016 bis 2022 im Klärschlamm bestimmten Radionuklide	232
Tabelle 10-7: Anzahl der Datensätze N, davon n mit Messergebnis und Mittelwerte (MW) von natürlich vorkommenden Radionukliden im Abwasser	236
Tabelle 10-8: Anzahl der Datensätze N, davon n mit Messergebnis und Mittelwerte (MW) von Fallout-Radionukliden im Abwasser	238
Tabelle 10-9: Anzahl der Datensätze N, davon n mit Messergebnis und Mittelwerte (MW) von nuklearmedizinischen Radionukliden	240
Tabelle 10-10: Reaktorproduzierte Radionuklide	242
Tabelle 10-11: Zyklotron-Radioisotope	243
Tabelle 10-12: Berechnung der äußeren Exposition im Normalbetrieb	245
Tabelle 10-13: Berechnung der Inhalationsdosis im Normalbetrieb. Leere Felder: Keine Daten vorhanden	248
Tabelle 10-14: Berechnung der äußeren Exposition im Ereignisfall	251
Tabelle 10-15: Berechnung der Inhalationsdosis im Ereignisfall	253

Abkürzungsverzeichnis

Symbol / Abkürzung	Bedeutung
A1	Alphaspektrometrie
AbwV	Abwasserverordnung
AbfKlärV	Verordnung über die Verwertung von Klärschlamm, Klärschlammgemisch und Klärschlammkompost
AEI	Aluminiumchlorohydrat extractable iodine
AKU	Arbeitskreis Umweltüberwachung (Fachverbandes für Strahlenschutz e.V.)
AMS	Accelerator Mass Spectrometry (Beschleuniger-Massenspektrometrie)
ANoPI	Allgemeiner Notfallplan des Bundes/Radiologisches Notfallmanagement
AP	Messanleitung H-U/Pu/Am-AWASS-01 / Pu-Bestimmung oder Aktivierungsprodukt
ASRF	Sekundärer Belebtschlamm-Retentionsfaktor
ATV	Abwassertechnischen Vereinigung
AU	Messanleitung H-U/Pu/Am-AWASS-01 / U-Bestimmung
AVV	Allgemeine Verwaltungsvorschrift
AVV-IMIS	Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Integrierten Mess- und Informationssystem zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt (IMIS) nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz
BAG	Bundesamt für Gesundheit Schweiz
BEI	Bentonite extractable iodine
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
BMA	Kläranlagen im Großraum Barcelona (BMA)
BMBF	Bundesministerium für Bildung und Forschung
BMU	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (bis 2013)
BMU	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit (2017-2021)
BMUB	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (2013-2017)
BMUV	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz (seit 2021)
BOD ₅ / BSB ₅	Biochemischer Sauerstoffbedarf (biochemical oxygen demand) innerhalb von 5 Tagen
BS	Betaspektrometrie
BSB	Biochemischer Sauerstoffbedarf

Symbol / Abkürzung	Bedeutung
BX	Messanaleitung H-Sr-89/Sr-90-AWASS-02 / Sr-Schnellbestimmung
CaD	Iod-Ganzkörperdiagnostiken
CaT	Iod-Anwendungen bei den Iod-Schilddrüsen-Karzinomen
COD/CSE	Chemischer Sauerstoffbedarf
DSR	Dose-Source-Ratios
EA	Environment Agency of United Kingdom
EAWAG	Eidgenössische Anstalt für Wasserversorgung, Abwasserreinigung und Gewässerschutz
EGU	European Geosciences Union
EGW	Einwohnergleichwerte
EKG	Erkennungsgrenze
EPA	U.S. Environmental Protection Agency
EW	Einwohnerwerte
EGW	Einwohnergleichwert
FDG	Fluordesoxyglukose
G1	Gammastrahlungsmessung
GENESIS	Gemeinsames Neues Statistisches Informations-System
Geomittel	Geometrisches Mittel
Gk	Größenklasse
HWZ	Halbwertszeit
IAEA	International Atomic Energy Agency
ICP-MS	Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma)
ICRP	International Commission on Radiological Protection
IMIS	Integriertes Mess- und Informationssystem zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt
IMIS-ZustV	Verordnung über die Zuständigkeiten von Bundesbehörden im integrierten Mess- und Informationssystem für die Überwachung der Umweltradioaktivität nach dem Strahlenschutzgesetz
IMP	Störfall-/Intensivmessprogramm
ISCORS	Interagency Steering Committee on Radiation Standards USA
LSC	Liquid scintillation counting
MIBG	Metaiodbenzylguanidin

Symbol / Abkürzung	Bedeutung
MST	Messstelle
MW	Mittelwert
ND	Nicht nachgewiesen
NMD	Nuklearmedizinische Diagnostik
NORM / TENORM	Naturally occurring radioactive material
NRW	Nordrhein-Westfalen
NWG	Nachweisgrenze
OSPAR	(OSlo/PARis) Völkerrechtlicher Vertrag zum Schutz der Nordsee und Nordatlantik
PET-CT	Positronenemissionstomographie/Computertomographie
POTWs	Publicly owned treatment works
PRRT	Peptide Receptor Radionuclide Therapy
PSRF	Primärer Rückhaltefaktor der primären Ablagerung
REI	Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen
RESRAD	residual Iodine
RI	residual Iodine
RMP	Routinemessprogramm
RSK	Reaktorsicherheitskommission
SEFM	La Sociedad Española de Física Médica
SHMÚ	Slovenský hydrometeorologický ústav (Slowakisches hydrometeorologisches Institut)
SIRT	Selektive Interne Radiotherapie
SÚJB	Státní úřad pro jadernou bezpečnost (Atomaufsichtsbehörde Tschechien)
SRF	Gesamtschlammrückhaltefaktor
SSK	Strahlenschutzkommission
StrlSchG	Strahlenschutzgesetz
StrlSchV	Strahlenschutzverordnung
STABW	Standardabweichung
TAT	Targeted Alpha-particle Therapy
TM	(Klärschlamm)Trockenmasse
TrinkwV	Trinkwasserverordnung

Symbol / Abkürzung	Bedeutung
UNSCEAR	United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation
WPCP	Stony Brook Water Pollution Control Plant

1 Einleitung

Das Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) ist im Rahmen seiner Leitstellenaufgaben nach § 161 Abs. 1 Nr. 2 und 3 Strahlenschutzgesetz (StrlSchG, (StrlSchG, 2022)) in Verbindung mit § 1 Abs. 2 Nr. 2 IMIS-Zuständigkeitsverordnung (IMIS-ZustV, (IMIS-ZustV, 2017)) für die Überwachung der Umweltradioaktivität der Medien Trinkwasser, Grundwasser, Abwasser, Klärschlamm und Abfälle zuständig. Bezüglich dieser Umweltmedien haben sich beim Klärschlamm in den letzten 20 Jahren neue wissenschaftliche Erkenntnisse ergeben. Ziel dieses Vorhabens ist es daher, den aktuellen nationalen und internationalen Stand hinsichtlich der Betrachtung der Radioaktivität im Klärschlamm umfassend zu recherchieren und abzubilden.

Der Stand des Wissens sollte ausgewertet und hinsichtlich der nötigen Weiterentwicklung der Messprogramme zur Überwachung der Umweltradioaktivität in Klärschlamm bewertet werden. Ausgehend von den dabei gewonnenen Erkenntnissen sollen Forschungsschwerpunkte für zukünftige Labor- und Modellierungsarbeiten abgeleitet und in einem Konzept beschrieben und konkret begründet werden. Für einen zukünftigen Klärschlamm-Ringvergleich der Leitstelle sind die aktuellen Regelungen für die Laborarbeit und den Versand von Klärschlammproben zusammenzustellen und es sind geeignete Kooperationspartner für die Probengewinnung zu benennen.

In Kapitel 2 werden die generelle Vorgehensweise bei der Recherche und die Struktur der daraus entstandenen Literaturdatenbank in EndNote sowie deren Nutzung bei der Auswertung der Literaturquellen erläutert. Weiterhin war es erforderlich, die in Deutschland aktuelle Technik der Abwasserbehandlung zu beschreiben, weil sich die Recherche an den Fachbegriffen und der Kenntnis der Prozesse orientiert (Kapitel 3). Im Kapitel 4 erfolgt dann eine Vorauswertung im Hinblick auf die relevanten Radionuklide im Abwasser und Klärschlamm, auf welche die Recherche fokussierte. Im Grundsatz ist die Abwasserbehandlungstechnik in den meisten Industrieländern Europas und weltweit ähnlich konzipiert und daher auch für die internationale Recherche mit den entsprechenden sprachlichen Äquivalenten verwendbar. Darüber hinaus bauen die Betrachtungen im Rahmen der nachfolgenden Arbeitsschritte auf dieser Beschreibung auf. In den Kapiteln 5 und 6 werden die Rechercheergebnisse zur Radioaktivität im Abwasser und Klärschlamm nach den Unfällen in Tschernobyl und Fukushima sowie zur Radioaktivität im Abwasser und Klärschlamm aus medizinischen Anwendungen vorgestellt. Ein wesentlicher Bestandteil der Recherche sind die Inhalte der Messdaten des bundesweiten integrierten Mess- und Informationssystems zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt (IMIS). Das Kapitel 7 wertet IMIS-Daten als Basis für die Weiterentwicklung der Messprogramme aus. Im Kapitel 8 werden die Auswertungen der IMIS-Daten mit den Literaturrecherchen bezüglich medizinischer Radionuklide zusammengeführt und Dosisbetrachtungen angestellt. Kapitel 9 leitet aus den Ergebnissen der Recherchen und Datenanalysen Empfehlungen zur Weiterentwicklung der Messprogrammen ab und gibt Hinweise in Bezug auf zukünftige Labor- und Modellierungsarbeiten.

VERMERK: Die Sicherung der Datenbank EndNote erfolgte während der Bearbeitung lokal und auf dem Server des Öko-Instituts sowie über EndNote-Online. Beim Abschluss des Projektes wurde die Datenbank in EndNote-Online an das BfS übermittelt. Sofern die Texte der zitierten Quellen kostenfrei zur Verfügung stehen, wurden sie in die EndNote-Datenbank eingepflegt. Im Fall von kostenpflichtigen Publikationen wurde der Zitation jeweils die frei verfügbare Zusammenfassung beigelegt.

2 Grundlagen I: Informationsquellen und Methodik der Recherche

2.1 Methodik

2.1.1 Quellen

In die Recherche wurden gemäß Angebot folgende Informationsquellen einbezogen:

- Das ATV-Merkblatt M 267 des ATV-Regelwerks (ATV-M267, 1995) einschließlich des dort angehängten Literaturverzeichnisses (inkl. Literatur zum Unfall in Tschernobyl),
- Archive des Bundesamts für Strahlenschutz und die Messdaten der Ländermessstellen des IMIS,
- internationale Veröffentlichungen, darunter auch internationale Studien zu den Reaktorunfällen in Fukushima und in Tschernobyl,
- Ergebnisse des BMBF Verbundprojekts TransAqua,
- Nationale und internationale Richtlinien/Leitlinien/Empfehlungen und Gesetze über die Webseiten
 - der national und international zuständigen Behörden oder relevanten Gremien wie dem Fachverband für Strahlenschutz oder die Strahlenschutzkommission des BMUV,
 - der Europäischen Kommission,
 - der International Atomic Energy Agency IAEA,
- das BfS mit Ergebnisberichten aus Forschungsvorhaben mit verwandten Themen sowie die IMIS-Datenbank des BfS.

Hinsichtlich der internationalen Literatur konzentrierte sich die Recherche auf den englisch- und deutschsprachigen Raum. Darüber hinaus wurden aufgrund der vorhandenen Sprachkenntnisse (Frau Ustohalova) auch die tschechischen und slowakischen Quellen gesichtet. Die recherchierten Informationsquellen wurden ausgewertet hinsichtlich der Schwerpunkte zu

- allgemeinem Vorkommen von in Kapitel 2 identifizierten Radionukliden im Abwasser und im Klärschlamm,
- Vorkommen von nuklearmedizinisch genutzten Radionukliden in Abwasser und im Klärschlamm,
- wissenschaftlichen Erkenntnissen zum Eintrag von Radionukliden in Abwasser und Kläranlagen aus den Reaktorunglücken in Tschernobyl in Fukushima,
- den daraus resultierenden regulatorischen Maßnahmen beider nuklearer Unfälle.

Die Recherche wurde zwar breit angelegt durchgeführt, parallel erfolgte aber ein Aussortieren der Arbeiten nach Relevanz. Die Recherche hat keinen Anspruch auf Vollständigkeit, es wurde jedoch angestrebt, den wesentlichen Stand des Wissens zu erfassen.

2.1.2 Liste der Stichworte und Plattformen

Es wurde eine Liste der Stichworte in den Sprachen Deutsch, Englisch, Tschechisch und Slowakisch zu den oben genannten Themenbereichen zusammengestellt wie z. B.

- Abwasser, Klärschlamm, Kläranlage,
- sewage sludge, sewage, waste water, sewage treatment plant,
- kaly z čistíren odpadních vod, odpadní vody, čistírna odpadních vod,
- kaly z čističiek odpadových vôd, odpadové vody, čistiareň odpadových vôd usw.

Die Stichworte wurden mit den Vorgaben der im Kapitel 4 identifizierten Radionuklide sowie ggf. mit den Begriffen Fukushima und Tschernobyl kombiniert. Eine weitergehende Einschränkung durch die Vorgabe vielfältigerer Stichworte ist nicht sinnvoll, weil dadurch relevante Publikationen aussortiert werden könnten. Die Suche insbesondere nach nationalen und internationalen Forschungsquellen erfolgte über große Plattformen und Bibliotheken, welche über einen sehr großen Datensatz in den gesuchten Themenbereichen verfügen: PubMed und Elsevier-Plattformen – darunter insbesondere ScienceDirect. Weiterhin wurden laufend Forschungsergebnisse über ResearchGate und Academia abgefragt, welche aufgrund der Mitgliedschaft der Bearbeiter frei zugänglich sind. Parallel wurden Veranstaltungen wie Konferenzen und Workshops ausgewertet oder laufende Vorhaben gescreent sowie die den Projektpartnern bereits bekannten Publikationen einbezogen.

Eine besondere Stellung hat die Recherche in der IMIS-Datenbank des BfS. Die Festlegung der Filter im IMIS-LADA-System zur gezielten Suche relevanter Labordaten und Messwerte wurde zusammen mit der für die IMIS-Datenbank zuständigen Stelle der BfS aufgestellt.

2.2 Struktur der Datenbank in EndNote und einzelne Quellen im Überblick

2.2.1 Aufbau der Datenbankstruktur

Die Datenbank der recherchierten Quellen wurde in die Version EndNote 20 (Windows) implementiert. Bei dem Aufbau der Struktur der Datenbank musste ein Kompromiss zwischen den Möglichkeiten der Software und der erwünschten Struktur der Quellenzuordnung getroffen werden. Gegenüber der Software Citavi bietet EndNote zum Beispiel nur 2 Strukturebenen: die Hauptebene „Group set“, welche jeweils mehrere „Groups“ als unterordnete Strukturebene beinhalten kann. Auch eine Einstufung der Relevanz der Publikationen mit Hilfe einer sichtbaren Markierung nach bestimmten Kriterien ist in EndNote nicht effizient gelöst. In Tabelle 2-2 ist die Struktur der Datenbank mit der Anzahl der Publikationen abgebildet, dokumentiert in Tabelle 2-1 mit Screenshot der EndNote-Datenbank zum 28.06.2024.

Tabelle 2-1: Screenshot Ausschnitt EndNote-Datenbank

All References 215						
Schlussbericht_Entwurf_FINAL_240612_PH_CS_V...						
Recently Added						
Unfiled						
Trash						
MY GROUPS						
RegelwerkNational						
AbwasserKlärschlammTrinkwasser						
SSK						
Strahlenschutz						
ForschungNational						
Allgemein						
Fukushima						
Medizin						
TransAqua						
Tschernobyl						
MessprogrammeNational						
AKU (SSK)						
Allgemein						
BfS-Berichte / IMIS						
BerichterstattungNational						
Allgemein						
Länder						
WEB / Zeitungsartikel						
InternatRichtlinien&Empfehlungen						
EU						
IAEA						
ICRP						
ForschungInternational						
Allgemein						
Fukushima						
Medizin						
NORM						
Tschernobyl						
MessprogrammeInternational						
Australien						
Schweiz						
Slowakei						

Author	Year	Title	Journal	Last Updated	Referen
86/278/EWG	2009	RICHTLINIE DES RATES vom 12. Juni 1986 über ...		16.06.2023	Legal F
91/271/EWG	2008	Richtlinie 91/271/EWG über die Behandlung vo...		20.04.2023	Legal F
AbfKlarV	2017	Verordnung über die Verwertung von Klärschla...		23.04.2023	Legal F
AbwV	2022	Verordnung über Anforderungen an das Einleite...		23.04.2023	Legal F
AbwV	2022	Verordnung über Anforderungen an das Einleite...		05.04.2023	Legal F
AKU	2020	Loseblattsammlung Empfehlungen zur Überwach...	LOSEBLATT...	04.03.2024	Report
Alhajji, E.; Al-Masri, M. S.; Khalily, H.; ...	2016	A Study on Sorption of (226)Ra on Different Cla...	Bull Environ...	18.04.2023	Journal
Andrés, C.; Barquero, R.; Tortosa, R.; N...	2011	131I activity in urine to the sewer system due to...	Health Phys	18.04.2023	Journal
ANoPI	2022	Allgemeiner Notfallplan des Bundes nach § 98 ...		23.04.2023	Legal F
Attallah, M. F.; Hamed, M. M.; El Afifi, ...	2015	Removal of 226Ra and 228Ra from TENORM sl...	J Environ Ra...	18.04.2023	Journal
ATV-M267	1995	Radioaktivität in Abwasser und Klärschlamm - ...		05.04.2023	Legal F
Avila, R.; de la Cruz, I.; Sundell-Berg...	2007	Radiological consequences of radionuclide rele...	SSI Rapport	28.06.2024	Report
AVV	2020	Allgemeine Verwaltungsvorschrift zur Ermittlun...		14.12.2023	Generik
AVV-IMIS	2006	Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Integrier...		13.12.2023	Legal F
BAG	2020	Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der ...		13.12.2023	Generik
BAG	2021	Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der ...		13.12.2023	Generik
BAG	2022	Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der ...		13.12.2023	Generik
Barbosa, N.; Castillo, L. S.; Quimbayo, ...	2022	Discharges of Nuclear Medicine Radioisotopes: ...	Health Phys	16.08.2023	Journal
Barci-Funel, G.; Dalmasso, J.; Magneb, J...	1993	Simultaneous detection of short-lived 201Tl, 99...		05.03.2024	Journal
Barquero, R.; Agulla, M. M.; Ruiz, A.	2008	Liquid discharges from the use of radionuclides...	J Environ Ra...	18.04.2023	Journal
Barquero, R.; Basurto, F.; Nuñez, C.; Est...	2008	Liquid discharges from patients undergoing 13...	J Environ Ra...	18.04.2023	Journal
BDEW	2022	Stellungnahme zum Kommissionsvorschlag für ...	Transparenz...	28.02.2024	Generik
BfS	2009	Strahlenexposition durch natürliche Radionuklid...		18.12.2023	Report
Blanchard, F. A.; Takahashi, I. T.; Alexa...	1976	Biodegradability of [14C]methylcellulose by act...	Appl Enviro...	18.04.2023	Journal
BMU	1997	Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung - J...		30.11.2023	Report
BMU	1998	Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung - J...		30.11.2023	Report
BMU	1999	Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung - J...		30.11.2023	Report
BMU	2000	Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung - J...		30.11.2023	Report
BMU	2001	Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung - J...		30.11.2023	Report

Quelle: EndNote-Einträge der Autoren

Tabelle 2-2: Aktuelle Struktur der EndNote-Datenbank

Hauptgruppe („Group set“)	Untergruppe („Group“)	Anzahl Publikationen
Regelwerk national	Abwasser und Klärschlamm	5
	Strahlenschutzkommission (SSK)	5
	Strahlenschutz	5
Forschung national	Allgemein	11
	Fukushima	1
	Medizin	4
	TransAqua	14
	Tschernobyl	5
Messprogramme National	AKU (SSK): Arbeitskreis Umweltradioaktivität	1
	Allgemein	2
	BfS Umweltberichte / IMIS	28
Berichterstattung National	Allgemein	13
	Länder	2
	Web / Zeitungsartikel	3
Internationale Richtlinien und Empfehlungen	EU	5
	IAEA	5
	ICRP	4
Forschung international	Allgemein	22
	Fukushima	9
	Medizin	29
	NORM	11
	Tschernobyl	6
Messprogramme international	Australien	1
	Schweiz	3
	Slowakei	2
	Tschechien	4
	UK	2
	USA (Bericht EPA zu Dosiskoeffizienten)	3
Sonstige		10

Quelle: Autoren

Die Publikationen wurden standardmäßig mit den Kurzfassungen der Inhalte übernommen. Die Pdf-Dateien mit dem Gesamthalt konnten nur im Fall der öffentlich zugänglichen Quellen importiert werden, da die Zugriffsrechte des Öko-Instituts und des NCC im Fall kostenpflichtiger Plattformen

keine Weitergabe an Dritte erlauben, also in diesem Fall an das BfS. Die vertiefte Auswertung erfolgte unter Einbeziehung der vorhandenen Gesamttexte der Quellen. Nicht alle in der Datenbank eingetragenen Quellen werden bei der hier durchgeführten Auswertung zitiert oder die Inhalte wiedergegeben, da sich die Inhalte im Zuge der weiteren Bearbeitung nicht als besonders relevant herausgestellt haben. Diese Quellen bleiben jedoch Bestandteil der Datenbank, da sie der Demonstration der Behandlung des Themas in den jeweiligen Ländern oder Institutionen dienen.

Für den strukturellen und inhaltlich substanziellen Aufbau der Literaturdatenbank sind die folgenden Rahmenbedingungen in der Literaturrecherche maßgebend:

- Zugriffsmöglichkeit auf vollständige Literaturquelle (innerhalb der Projektlaufzeit),
- Relevanz für das Vorhaben,
- Glaubwürdigkeit/Vertrauenswürdigkeit der Literaturquelle.

2.2.2 Nationales Regelwerk

In dem hier untersuchten Themenbereich ist das nationale ATV Regelwerk Abwasser-Abfall mit dem Merkblatt ATV – M 267 (ATV-M267, 1995) relevant. Im Weiteren sind insbesondere die Verordnung über Anforderungen an das Einleiten von Abwasser in Gewässer (Abwasserverordnung - AbwV (AbwV, 2022)) sowie die Verordnung über die Verwertung von Klärschlamm, Klärschlammgemisch und Klärschlammkompost (Klärschlammverordnung (AbfKlärV, 2017)) zu nennen.

Zu den für den Strahlenschutz relevanten Regelwerksunterlagen – dem Strahlenschutzgesetz (StrlSchG, 2022) und der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV, 2021) – und den konkreten Inhalten wird im Rahmen der weiteren Auswertung Bezug genommen.

AbwV und AbfKlärV

Die grundsätzlichen Inhalte der Abwasserverordnung (AbwV, 2022) werden im Zusammenhang mit der Beschreibung der Klärwerkstechnik im Kapitel 3 behandelt. Die Klärschlammverordnung (AbfKlärV) ist insofern von Bedeutung, da sie mit § 15 die Klärschlammverwertung einschränkt und auch Vorgaben zur Weiterentwicklung der Technik, insbesondere zur Abtrennung von Phosphat enthält (s. Kapitel 3.5).

ATV-Merkblatt und zugehörige Literaturquellen

Das 1995 im Rahmen des ATV - Regelwerks für Abwasser und Abfälle veröffentlichte Merkblatt ATV – M 267 (ATV-M267, 1995) beschreibt die Thematik von Radionukliden in Klärschlamm und nimmt dabei besonderen Bezug auf die radiologische Belastung durch den Reaktorunfall in Tschernobyl. Das Merkblatt gibt einen allgemeinverständlichen Überblick über Radioaktivität und die bis Anfang der 1990er Jahre durchgeführten wissenschaftlichen Untersuchungen von Radionukliden in Abwasser und Klärschlamm. Dabei handelt es sich sowohl um allgemeine Untersuchungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität in Deutschland als auch um solche, die sich gezielt auf die Folgen des Reaktorunfalls in Tschernobyl beziehen. Weil die Unterlage seit 1995 nicht aktualisiert wurde, werden die Folgen des Reaktorunfalls in Fukushima in der Unterlage nicht untersucht.

Obwohl im Merkblatt auch natürlich vorkommende Radionuklide behandelt werden, ist das Merkblatt und die dort beschriebene Überwachung der Radioaktivität von Abwasser und Klärschlamm stark auf Spalt- und Aktivierungsprodukte aus kerntechnischen Anlagen sowie kerntechnisch genutzte Transurane ausgerichtet.

Von Bedeutung für das hier zu bearbeitende Vorhaben sind Angaben zum Verhalten von Radionukliden in Bezug auf ihre Mobilität im Abwasser und ihres Transfers in den Klärschlamm. Die im Merkblatt vorgenommene Einteilung der wichtigsten chemischen Elemente in drei Gruppen mit unterschiedlich hohen Eliminierungsraten kann als Bezug für die Prüfung von Prozessstufen in modernen Kläranlagen herangezogen werden.

Die im Kapitel 6 des Merkblatts aufgeführten radioökologischen Grundlagen zur Abschätzung von Expositionen bei Radioaktivität im Abwasser und Klärschlamm sind eine Grundlage zur Abschätzung von Expositionen.

2.2.3 Internationale Richtlinien und Empfehlungen

Richtlinie des Rates über die Behandlung von kommunalem Abwasser (91/271/EWG)

Die Richtlinie des Rates vom 21. Mai 1991 über die Behandlung von kommunalem Abwasser 91/271/EWG (**91/271/EWG**, 2008) listet grundsätzliche Anforderungen an das Einleiten des Abwassers aus den kommunalen Abwasserbehandlungsanlagen auf und benennt dabei Parameter wie biochemischer und chemischer Sauerstoffbedarf oder suspendierte Schwebstoffe, Phosphor und Stickstoff insgesamt. Es werden hier keine weiteren Restriktionen aufgeführt.

Das deutsche Regelwerk der (AbfKlärV, 2017) ist gegenüber der Richtlinie des Rates vom 12. Juni 1986 über den Schutz der Umwelt und insbesondere der Böden im Zusammenhang mit der Verwendung von Klärschlamm in der Landwirtschaft (86/278/EWG) deutlich restriktiver, da es die Verwendung von Klärschlamm in der Landwirtschaft deutlich einschränkt (§ 15 AbfKlärV Beschränkung der Klärschlammverwertung).

Die Richtlinie 91/271/EWG wird gegenwärtig überarbeitet. Die Neufassung sieht einen besseren Schutz der Umwelt und Gesundheit vor (s. (BDEW, 2022)). Die Kommission möchte die vierte Reinigungsstufe bis 31.12.2035 verpflichtend für alle Kläranlagen größer oder gleich 100.000 EW einführen. Der Fokus wird u.a. auf die kontinuierliche Abwasserüberwachung (Artikel 17) von Krankheitserregern und Einführung der erweiterten Herstellerverantwortung (Artikel 9 und 10) gelegt.

ICRP

- ICRP Publication 94: Release of patients after therapy with unsealed radionuclides (ICRP, 2004) und ICRP Publication 140: Radiological Protection in Therapy with Radiopharmaceuticals (ICRP, 2019)

Die ICRP (2004) geht davon aus, dass die in moderne Abwassersysteme eingeleiteten Radionuklide zu Dosen für das Personal der Kläranlage sowie der Öffentlichkeit führen, die weit unter den Dosisgrenzwerten liegen. Eine Lagerung der Ausscheidungen eines Patienten sei nicht erforderlich. Die ICRP führt dazu auf, dass hinsichtlich der Aktivität Tc-99m die Freisetzungen in die Umwelt aus

den Ausscheidungen nuklearmedizinischer Patienten dominieren, aber aufgrund der kurzen Halbwertszeit von Tc-99m keine radiologischen Auswirkungen haben. Die (hinsichtlich der Aktivität) zweitgrößte Freisetzung als Folge nuklearmedizinischer Anwendungen, I-131, kann in der Umwelt nachgewiesen werden, habe aber keine messbaren radiologischen Auswirkungen. Die ICRP (2019) weist in Ergänzung zu (ICRP, 2004) darauf hin, dass radioaktive Abfälle für kurzlebige medizinische Isotope bis zu ihrem vollständigen Zerfall geeignet gelagert werden sollten. Auch wenn eine Lagerung der Ausscheidungen eines Patienten nicht erforderlich ist, könnten jedoch örtliche Beschränkungen für die Ableitung der Aktivität gelten. Sobald ein Patient aus dem Krankenhaus entlassen wurde, sollte die ausgeschiedene Radioaktivität so gering sein, dass sie über die häusliche Toilette entsorgt werden kann, ohne dass Dosisgrenzwerte für Personen der Bevölkerung erreicht werden.

- First ICRP Symposium on the International System of Radiological Protection, October 2011 (ICRP, 2011)

Das erste Symposium der ICRP zum internationalen System des Strahlenschutzes behandelt unter anderem das Thema des Strahlenschutzes in der NORM-Industrie. Dabei wurde das Thema der NORM-Anreicherung in Schlämmen und anderen Abfallmedien diskutiert.

IAEA

- Release of patients after radionuclide therapy / with contributions from the International Commission on Radiological Protection. Safety report No. 63 (IAEA, 2009)

Die IAEA-Publikation bringt die Aufgaben der Aufsichtsbehörden der verschiedenen Länder in Zusammenhang mit deren Aufgabe, die relevanten Grenzwerte festzulegen, darunter auch die maximale Aktivität im Abwasser aus den Krankenhäusern. Die IAEA veröffentlicht auch Ergebnisse der Messprogramme zur Radioaktivität im Abwasser und Klärschlamm in einzelnen Ländern ((z. B. (Vanek et al., 2014)).

- Die IAEA befasst sich in (IAEA, 1994) mit den Optionen der Strahlenbehandlung von Wasser und Abwässern, welche zur Desinfektionszwecken und Wasseraufbereitung angewendet werden sollte. Aufgrund der insgesamt angestrebten Vermeidung der radiologischen Belastung und des vorsichtigen Umgangs mit den Anwendungen ist dieser Themenbereich eher von zweitrangiger Bedeutung. Eine neuere Publikation (Hossain et al., 2018) befasst sich mit der Bestrahlung von Abwasser mit Elektronenstrahlen als einem Schlüssel zu nachhaltigen intelligenten grünen Städten (Smart Cities). In dem Review werden Beispiele der Abwasser- und Klärschlammbehandlung aus Indien, Japan, Saudi-Arabien und Brasilien genannt.

2.2.4 Internationale Messprogramme

Parallel zur Auswertung der nationalen Messprogramme wurden die internationalen Überwachungsprogramme recherchiert. In die EndNote Datenbank wurden die Jahresberichte zur Überwachung der Umweltradioaktivität aus der Schweiz, dem Vereinigten Königreich, den Vereinigten Staaten, Tschechien und der Slowakei implementiert, einige dieser Quellen werden durch die IAEA gesammelt und veröffentlicht, diese wurden beispielhaft in die Datenbank übernommen. Der Umfang der Messprogramme wird im Folgenden kurz beschrieben, diese

Beschreibung dient dem Überblick über die Überwachung der Radioaktivität in anderen Ländern. Einige Erkenntnisse der Überwachung der Umweltradioaktivität aus dem Vereinigten Königreich ((Punt, Millward, et al., 2007), (Punt, Wood, et al., 2007)) und aus der Schweiz (BAG, 2020, 2021, 2022) werden im Kapitel 6.3 und 8.1 vorgestellt. Die Inhalte der Messkampagnen in Jahre 2003 und 2004 aus Vereinigten Staaten (ISCORS, 2003, 2004) sind in diesem Kapitel weiter unten präsentiert.

Schweiz

Die Überwachung der ionisierenden Strahlung sowie der Radioaktivität in der Umwelt ist in der Schweiz ein gesetzlich verankerter Auftrag des schweizerischen Bundesamts für Gesundheit (BAG). Die Berichterstattung berücksichtigt künstliche und natürliche Radionuklide in allen Umweltmedien wie Luft, Niederschlag, Gewässer, Boden, Gras sowie in den Lebensmitteln. Das BAG koordiniert auch ein Programm zur Probenahme und Messung der Radioaktivität (Gammastrahler und Tritium) von Abwässern aus Kläranlagen. Dabei werden die sich ergebenden Dosen der Bevölkerung zusammengefasst, die Dosimetrie der beruflich strahlenexponierten Personen ist Gegenstand eines separaten Berichtes. Die ausgewählten Jahresberichte des BAG (BAG, 2020, 2021, 2022) sind in die Auswertung zu medizinischen Radionukliden im Kapitel 8 eingeflossen.

Vereinigtes Königreich

Für die Überwachung und Bewertung radioaktiver Quellen in der Umwelt ist im Vereinigten Königreich die Environment Agency (EA) zuständig. Die EA hat zwei Forschungsvorhaben in Auftrag gegeben, um die radiologischen Auswirkungen der genehmigten Ableitungen flüssiger radioaktiver Abfälle in die Kanalisation zu untersuchen. Der erste Vorhabensteil befasste sich mit Laborexperimenten zum Verhalten ausgewählter Radionuklide während der Abwasserbehandlung; darauf basierend sollten robuste Schlammrückhaltefaktoren für das Initial Assessment Tool der EA – Tabellenkalkulationsmodell zur Bewertung der radiologischen Auswirkungen von Ableitungen in die Kanalisation – ermittelt werden (Punt, Millward, et al., 2007). Der zweite Teil (Punt, Wood, et al., 2007) wurde im Zuge eines Antrags auf erhöhte Jod-131-Ableitungen des Royal Marsden Hospital in Südwest-London in Auftrag gegeben. Beide Arbeiten werden im Kapitel 6.3 als Beispiele der Überwachung und Forschung im Bereich der Umweltradioaktivität im Vereinigten Königreich vorgestellt.

Tschechische Republik

Für die radiologische Überwachung der Umweltmedien in der Tschechischen Republik ist das Staatliche Amt für nukleare Sicherheit (Státní úřad pro jadernou bezpečnost, SUJB) verantwortlich¹. Die Recherche zeigte, dass während z. B. in der Schweiz das BAG in seinen Jahresberichten zu Umweltradioaktivität und Strahlendosen einen umfangreichen Überblick über die Beprobung und messtechnische Überwachung wiedergibt, verweisen die öffentlich zugänglichen tschechischen Berichte des SUJB zu Überwachung der Umweltradioaktivität (Národní program monitorování, in EndNote beispielhaft implementiert (SUJB, 2018) und (SUJB, 2021)), lediglich auf tabellarische

¹ <https://www.sujb.cz/npm>

Darstellungen einzelner überwachter Bereiche mit der Beprobung und Analytikart. Die Werte und deren Zuordnung sind daher zum Zweck einer vergleichenden Darstellung schwierig auffindbar und eine weitergehende Auswertung zeigte sich als nicht zielführend. Ansonsten scheinen die Inhalte und überwachten Umweltkompartimente des Messprogramms mit der Schweiz vergleichbar zu sein.

Slowakische Republik

In der Slowakischen Republik ist für das Messnetz der radiologischen Überwachung das Amt für öffentliche Gesundheit der Slowakischen Republik zuständig. Die slowakischen Jahresberichte zum Monitoring mit der Datenauswertung (Záverečné ročné správy radiačného monitoringu) werden von dem Slowakischen hydrometeorologischen Institut (Slovenský hydrometeorologický ústav (SHMÚ)) veröffentlicht². Der letzte Jahresbericht vom Jahr 2022 wurde in EndNote beispielhaft implementiert (SHMÚ, 2022). Das Messprogramm ist inhaltlich sowohl mit dem Tschechischen als auch mit dem Schweizerischen vergleichbar. Es wurde hier keine weitergehende Auswertung umgesetzt.

IAEA als Quelle der Messprogramme

Im Internet sind Berichte zu ausgewählten Themen aus den genannten Ländern – also auch zum Thema der radiologischen Überwachung von Klärschlamm aus Kläranlagen – auf den Webseiten der IAEA zu finden, wie z. B. (Vanek et al., 2014) zu gammaspektrometrischen Analysen von Proben des Klärschlammes aus der Kläranlage in der Stadt Zvolen. (In der Datenbank EndNote beispielhaft eingepflegt.)

Vereinigte Staaten

In den Vereinigten Staaten ist die Environmental Protection Agency (EPA) zuständig. deren unterordnetes Organ, die Interagency Steering Committee on Radiation Standards (ISCORS), zusammengesetzt aus mehreren Bundes- und Staatsbehörden, soll den Konsens über akzeptable Strahlenrisiken für die Öffentlichkeit und die Arbeitnehmer sowie einheitliche Risikoansätze bei der Festlegung und Umsetzung von Normen für den Schutz vor ionisierender Strahlung fördern. ISCORS führt umfangreiche Messprogramme durch, wobei die Berichterstattung über die Messkampagnen und die Ergebnisse in dezidierter Form öffentlich zugänglich sind.

ISCORS hat in zwei Studien (ISCORS, 2003, 2004) Radionuklide im Klärschlamm untersucht und bewertet.

Eine landesweite Untersuchung von Klärschlämmen erbrachte die in Tabelle 2-3 zusammengefassten statistischen Kennziffern von spezifischen Aktivitäten im Klärschlamm öffentlicher Abwasserbehandlungsanlagen (publicly owned treatment works – POTWs) in den USA. Die Werte der spezifischen Aktivität wurden aus den in (ISCORS, 2003) in der Einheit pCi/g angegebenen Werten mit dem Faktor $1 \text{ pCi/g} = 37 \text{ Bq/kg}$ umgerechnet. Alle Angaben sind gemäß den Erläuterungen in (ISCORS, 2003) auf den Probenahmezeitpunkt bezogen.

² <https://www.shmu.sk/sk/?page=265#!>

Die Daten der Tabelle 2-3 können für Vergleiche und Bewertungen der IMIS-Messergebnisse genutzt werden.

Tabelle 2-3: Statistische Kennziffern von spezifischen Aktivitäten im Klärschlamm in den USA. ND – Nicht nachgewiesen. Daten aus (ISCORS 2003)

Radionuklid	Minimum (Bq/kg)	Median (Bq/kg)	95. Perzentil (Bq/kg)	Maximum (Bq/kg)	Anzahl Messwerte / Anzahl Messungen
Alpha	ND	259	1258	5069	309/311
Beta	62,9	481	1258	3441	311/311
Am-241	ND	ND	ND	92,5	10/311
Be-7	ND	44,4	333	814	263/311
Bi-212	ND	ND	48,1	481	101/311
Bi-214	ND	11,1	85,1	592	238/311
C-14*	ND	ND	37	111	63/158
Ce-141	ND	ND	ND	0,592	1/311
Co-57	ND	ND	ND	9,62	6/311
Co-60	ND	ND	ND	188,7	13/311
Cr-51	ND	ND	ND	129,5	6/311
Cs-134	ND	ND	ND	1,48	1/311
Cs-137	ND	ND	4,07	133,2	133/311
Eu-154	ND	ND	ND	777	1/311
Fe-59	ND	ND	ND	14,8	1/311
H-3*	ND	11,1	185	296	111/158
I-125	ND	ND	ND	1480	11/311
I-131	ND	66,6	1887	31080	246/311
In-111	ND	ND	1,48	133,2	19/311
K-40	ND	148	444	962	308/311
La-138	ND	ND	ND	2,59	1/311
Pa-234m	ND	ND	259	999	80/311
Pb-210	ND	ND	148	481	135/311
Pb-212	ND	16,28	70,3	555	303/311
Pb-214	ND	11,47	96,2	629	253/311
Pu-238	ND	0,37	2,59	7,03	75/92
Pu-239	ND	0,111	1,48	4,44	68/92
Ra-223	ND	ND	ND	3,33	2/311
Ra-224	ND	ND	33,3	444	47/311
Ra-226	ND	74	481	1739	289/311
Ra-228	ND	30,34	188,7	1406	271/311
Rn-219	ND	ND	ND	ND	0/311
Sm-153	ND	ND	ND	999	1/311
Sr-89	ND	12,95	740	2590	68/98
Sr-90	ND	3,7	37	347,8	64/98
Th-227	ND	ND	3,7	18,5	49/207
Th-228	2,59	22,385	151,7	333	92/92
Th-230	3,33	12,58	37	62,9	92/92
Th-232	0,74	7,4	22,2	59,2	92/92
Th-234	ND	22,2	247,9	851	191/311
Tl-201	ND	ND	1702	8917	151/311
Tl-202	ND	ND	19,61	42,92	73/311
Tl-208	ND	2,59	35,52	177,6	180/311
U-234	6,66	72,15	629	1628	92/92
U-235	ND	ND	16,65	114,7	112/311
U-238	6,66	51,8	444	962	92/92
Zn-65	ND	ND	ND	2,22	1/311

* Werte bezogen auf Feuchtmasse/Originalmasse

Datenquelle: (ISCORS, 2003); Umrechnung: Autoren

Auf der Grundlage der Messbefunde wurden probabilistischen Modellierungen der Dosis mit dem Modellcodes RESRAD³ unter dem Einsatz von RESRAD-OFFSITE und RESRAD BUILD ausgeführt. Die Vorgehensweisen und Ergebnisse dieser Modelluntersuchungen sind in (ISCORS, 2004) beschrieben.

Untersucht wurden die sieben Szenarien:

- Exposition vor Ort
 - Bewohner eines Hauses, das auf einem ehemaligen landwirtschaftlichen Feld gebaut wurde, auf dem Klärschlamm ausgebracht wurde.
 - Erholungssuchende in einem Park, in dem Klärschlamm zur Bodensanierung verwendet wurde
- Exposition auf benachbartem Gelände
 - Einwohner einer Stadt in der Nähe einer Kläranlage
 - Nachbarn einer Mülldeponie, die Klärschlamm oder Asche enthält
 - Anwohner einer in Betrieb befindlichen Klärschlammverbrennungsanlage
- Berufliche Exposition
 - Arbeiter, die Geräte zur Ausbringung von Klärschlamm auf landwirtschaftliche Flächen bedienen
 - Arbeiter in einer Kläranlage, die an der Probenahme, dem Transport oder der Verladung von Klärschlamm beteiligt sind

Für diese Szenarien wurden Dosisfaktoren (Dose-Source-Ratios, DSR), d.h. Dosiswerte bezogen auf eine Einheitsaktivität (ISCORS, 2004): mrem/y per pCi/g) berechnet.

Mit den Daten der 95. Perzentile aus (ISCORS, 2003) und den DSRs ergaben sich die höchsten Dosiswerte von über 1 mSv/Jahr (100 mrem/Jahr) für Bewohner eines Hauses, das auf einem Boden steht, auf dem 50 oder 100 Jahre lang Klärschlamm ausgebracht wurde (Szenario 1). Ein wesentlicher Anteil dieser Dosis resultiert aus Modellannahmen zur Inhalation von Radon in Innenräumen. Die zweithöchsten Dosen wurden für die Beschäftigten der Kläranlage berechnet, die an der Schlammverladung beteiligt sind (Szenario 7). Hier lag der berechnete Maximalwert bei 0,7 mSv/Jahr (70 mrem/Jahr), wobei auch hier die Dosis vom Radon einen wesentlichen Beitrag liefert.

³ <https://resrad.evs.anl.gov/>: Die Programmreihe RESRAD wurde am Argonne National Laboratory entwickelt, um die potenzielle Strahlenexposition von Menschen und Biota durch die Umweltkontamination von RESidual RADioactive materials zu analysieren. Die Codes verwenden eine Pfadanalyse, um die Strahlenexposition und die damit verbundenen Risiken zu bewerten und um Sanierungskriterien oder zulässige Grenzwerte für Radionuklidkonzentrationen im kontaminierten Ausgangsmittel abzuleiten.

Die Dosen für Anwohner der Verbrennungsanlage (Szenario 5), in der Klärschlamm 50 Jahre verbrannt wurde, lagen dagegen unter 0,1 mSv/Jahr (10 mrem/Jahr). Ähnliches gilt für einen Arbeiter, der Schlamm auf eine Bodenfläche ausbringt, auf der bereits 50 Jahre lang Klärschlamm ausgebracht wurde (Szenario 6).

Die Dosen für Freizeitnutzer (Szenario 2), die Einwohner einer zur Kläranlage nahe gelegenen Stadt (Szenario 3), und die Nachbarn einer Mülldeponie (Szenario 4) waren alle geringfügig.

Als grundlegende Schlussfolgerungen aus den Ergebnissen der Dosismodellierung werden in (ISCORS, 2004) genannt:

- Keines der Szenarien zeigt ein signifikantes Risiko für die öffentliche Gesundheit. Die Szenarien mit den größten potenziell kritischen Gruppen – die nahe gelegene Stadt und die Verbrennungsanlage – weisen geringe geschätzte Dosen auf.
- Wenn die landwirtschaftliche Bodenausbringung lange Zeit erfolgt, besteht das Potenzial für eine künftige Strahlenbelastung vor allem durch Radon.
- In bestimmten Fällen mit sehr hohen spezifischen Aktivitäten (z. B. Werte über dem 95. Perzentil) besteht die Möglichkeit einer lokalen Strahlenexposition.
- Innerhalb der Kläranlage ist bei der Probenahme und dem Transport nur eine geringe Exposition zu erwarten. Nur wenn sich die Arbeiter in einem Raum mit großen Schlamm-mengen aufhalten (z. B. bei der Lagerung oder Verladung), besteht die Möglichkeit einer erheblichen Exposition, vor allem durch Radon.

Bezüglich der Modellierung wird in (ISCORS, 2004) festgestellt:

- Die Expositionsszenarien sind konservativ; außerdem handelt es sich bei den oben genannten Dosen um obere Perzentilwerte.
- Die Dosen für Szenario 1 wären bei 50- oder 100-jähriger jährlicher Ausbringung signifikant, aber nur sehr wenige landwirtschaftliche Betriebe im Land haben bisher Klärschlamm auch nur 20 Jahre lang verwendet.
- Hohe Dosen sind im Allgemeinen auf den Radonpfad in Innenräumen zurückzuführen. Sowohl für Anwohner als auch für Arbeiter in der Kläranlage kann die Radonexposition durch den Einsatz leicht verfügbarer Radontest- und -minderungstechnologien deutlich verringert werden.
- Die zur Modellierung verwendeten RESRAD-Codes wurde in einer Vielzahl von behördlichen Analysen der Strahlenexposition in der Umwelt eingesetzt und werden ständig weiterentwickelt und verbessert. Wenn der in (ISCORS, 2004) beschriebene Ansatz bei der Analyse eines bestimmten Standorts angewandt wird, können die Szenarien nützliche Anhaltspunkte liefern. Es ist jedoch wahrscheinlich, dass sich einige standortspezifische Bedingungen erheblich von den für diese Szenarien angenommenen unterscheiden und die Verwendung anderer Parameterwerte und Verteilungen erfordern.

2.2.5 Nationale Messprogramme und Daten-Archive des BfS, Berichte BfS und BMUV, Fachverband für Strahlenschutz

Jahresberichte „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung“ und IMIS

Die nationalen Jahresberichte sind in der EndNote Datenbank eingepflegt. Die Auswertung erfolgt im Zusammenhang mit der Recherche der IMIS-Datenbank (vgl. Kapitel 5). Fester Bestandteil der Jahresberichte „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung“ war ein Grundlagenteil. Um die Übersichtlichkeit zu erhöhen, erscheint seit 2020 getrennt vom jährlich aktualisierten Jahresbericht ein separater Bericht „Grundlagen zur Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung in Deutschland (Grundlagenbericht)“ (BMUV, 2021), welcher ebenfalls in die EndNote-Datenbank eingearbeitet wurde.

Arbeitskreis Umweltüberwachung AKU

Eine wesentliche Quelle über die Messverfahren zur Ermittlung der Umweltradioaktivität ist die Loseblattsammlung des Arbeitskreises Umweltüberwachung AKU des Fachverbandes für Strahlenschutz FS-78-15-AKU⁴ (AKU, 2020): Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität. Die von den Messstellen verwendeten Messverfahren beruhen auf (AKU, 2020) bzw. den Messanleitungen des BMU (s. Tabelle 7-7).

2.2.6 Forschung

Die Quellen der nationalen und internationalen Forschung sind in EndNote jeweils einem Group Set zugeordnet: „ForschungNational“ bzw. „ForschungInternational“. Beide Group Sets werden in identische Groups (mit Ausnahme von TransAqua und NORM) gegliedert (vgl. Kapitel 2.2.1):

- Allgemein
- Fukushima
- Medizin
- NORM (nur „ForschungInternational“)
- Tschernobyl
- TransAqua (nur „ForschungNational“)

⁴ AKU befasst sich mit der Überwachung der Strahlenexposition in der Umgebung kerntechnischer Anlagen sowie der Ermittlung der Umweltradioaktivität und fördert die Vereinheitlichung und Optimierung von Konzepten und Messverfahren. Der AKU ist gleichzeitig Normenausschuss für "Umweltmessungen" der DKE.

2.2.6.1 Nationale Forschung

Projekt TransAqua

Das BMBF-Verbundprojekt TransAqua „Transfer von Radionukliden in aquatischen Ökosystemen“ hatte zum Ziel, die Expositions- und Dosisabschätzung für den Menschen bei Strahlenexpositionen durch aquatische Ökosysteme zu optimieren. Es wurden durch eine Kooperation zwischen Einrichtungen der Helmholtz-Gemeinschaft und verschiedenen Hochschulen in den Jahren 2013 bis 2017 in 5 Teilprojekten mit insgesamt 15 Arbeitspaketen Aspekte des Eintrages, des Transportes und der Ausbreitung von Radionukliden in Oberflächen-, Grund-, Tiefen-, Trink- und Abwässer sowie in fluviale und limnische Sedimente, des Transfers an Grenzflächen in biologisches Material und in die Nahrungskette bis hin zu biokinetischen Stoffwechselmodellen der Radionuklide im Menschen betrachtet (Institut für Strahlenschutz, 2018). Aus den gewonnenen Erkenntnissen sollten Maßnahmen bei Störfällen kerntechnischer Anlagen, radiologischen Unfällen oder zur Sanierung von Altlasten abgeleitet werden.

Nicht alle Arbeiten, die im Rahmen des Verbundprojektes durchgeführt wurden, sind für das hier zu bearbeitende Vorhaben von Bedeutung. Als relevant werden die Untersuchungen im Teilprojekt 4 (Kontaminierte Wässer) in den Arbeitspaketen

- AP4.1 (Teilprojekts H des BMBF-Verbundprojekts TransAqua): Bestimmung und Modellierung der Partitionierung von künstlichen und natürlichen Radionukliden in Klärschlamm und Abwasser (bearbeitet von der Universität Bremen (Fischer et al., 2017)) und
- AP4.2: Abschätzung der radiologischen Auswirkungen von Nuklearunfällen auf die städtische Trinkwasserversorgung und Stadtentwässerung (bearbeitet vom Helmholtz Zentrum München, dem damaligen Institut für Strahlenschutz, (Institut für Strahlenschutz, 2018)).

erachtet.

Die Zielstellung des Arbeitspaketes AP4.1 war, die Partitionierung von Radionukliden, die in Klärschlämmen und im Zu- und Ablauf einer Kläranlage detektiert wurden, und die zugrundeliegenden Prozesse im Abwasser zu untersuchen sowie mit Hilfe eines chemischen Speziationscodes entsprechende Modelle zu entwickeln. Es war vorgesehen, insbesondere I-131 und Cs-137, die nach kerntechnischen Unfällen als Leitnuklide gammaspektrometrisch gemessen werden, als Tracer zu verwenden, um Stoffflussprozesse zu untersuchen. Aus den unterschiedlichen chemisch-physikalischen Eigenschaften der Radionuklide sollten zusätzliche Informationen gewonnen werden. Das entwickelte Modell sollte die Möglichkeit bieten, Eingangsparameter für genauere Berechnungen von Strahlendosen der Bevölkerung in und im Umfeld von Kläranlagen abzuschätzen.

Im Arbeitspaket AP4.2 sollten Radionuklidtransport-Vorgänge von der Deposition nach einem hypothetischen Nuklearunfall über den Eintrag in Gewässer, eine anschließende Verteilung in Wasserversorgungsnetzen und Kanalsystemen und eine potenzielle Akkumulation in der Nahrungskette nachvollzogen und modelliert werden, um die Strahlendosen der Bevölkerung aus der städtischen Trinkwasserversorgung und der Stadtentwässerung nach einer Freisetzung von Radionukliden in die Umwelt abschätzen zu können. In den zu betrachtenden Szenarien war vorgesehen, die Radionuklide I-131 und Cs-137 zu modellieren.

Alle Publikationen aus dem TransAqua sind in die EndNote-Datenbank eingearbeitet.

Weitere Publikationen der nationalen Forschung und Fachliteratur

Im Folgenden werden die Publikationen im Überblick mit dem gesamten Inhalt der Zitation aufgelistet (siehe auch Literaturverzeichnis) wie sie in der EndNote-Datenbank den einzelnen Groups zugeordnet sind.

• Allgemein

- (Kirchner et al., 2009) Kirchner, G., Steiner, M., & Zähringer, M. (2009). A new approach to estimate nuclide ratios from measurements with activities close to background. *Journal of Environmental Radioactivity*, 100(6), 484-488. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jenvrad>
- (S. Abelmann et al., 1993) Abelmann, S., Bünger, T., Rühle, H. & Viertel, H. (1993). Materialienband 1990 zur Radioaktivität in Trinkwasser, Grundwasser, Abwasser, Klärschlamm, Reststoffen und Abfällen zum Jahresbericht "Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung". *WaBolu-Heft 5/1993, Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene des Bundesgesundheitsamtes Berlin*.
- (LfU, 2007) Ermittlung von Arbeitsfeldern mit erhöhten Expositionen durch natürliche Radioisotope und von überwachungsbedürftigen Rückständen - Rückstände aus der Trinkwasseraufbereitung - Teil I, UmweltSpezial.
- (LfU, 2008) Abschlussbericht Ermittlung von Arbeitsfeldern mit erhöhten Expositionen durch natürliche Radioisotope und von überwachungsbedürftigen Rückständen – Rückstände aus der Trinkwasseraufbereitung, Teil, I UmweltSpezial.

Im Rahmen des Vorhabens zu den erhöhten Expositionen durch natürliche Radioisotope und von überwachungsbedürftigen Rückständen aus der Trinkwasseraufbereitung wurden u.a. die Rückspülschlämme aus Wasserwerken auf die Inhalte der natürlichen Radionuklide untersucht und die radiologische Relevanz im Hinblick auf die Belastung des Personals der Wasseraufbereitung sowie der Kläranlagen ermittelt. Es lässt sich feststellen, dass der Dekontaminierungseffekt für natürliche Radionuklide bei der Aufbereitung der Rohwässer gering ist und in der Reihenfolge Pb-210, Ra-226, Po-210, Thoriumisotope und Uranisotope abnimmt. Rückstände mit erhöhtem Radionuklidgehalt entstehen bei zwei der gängigen Aufbereitungsverfahren des Trinkwassers: Bei der "Entmanganung und Enteisenung" sowie bei der "Entsäuerung". Die Rückspülschlämme werden in der Abwasserbehandlung, Land- und Forstwirtschaft sowie Baustoffindustrie verwertet. Dabei entsteht nirgends eine unzulässig hohe Strahlenexposition.

• Fukushima

- Fischer, H. W., & Yokoo, Y. (2014). Preliminary comparison of radioisotope concentration in sewage sludge after the Fukushima and Chernobyl accidents. *European Geosciences Union General Assembly 2014, EGU 2014; Energy Procedia 59 (2014) 256 – 262*. <https://doi.org/10.1016/j.egypro.2014.10.375>

• Medizin

- (Fischer et al., 2009) Fischer, H. W., Ulbrich, S., Pittauerová, D., & Hettwig, B. (2009). Medical radioisotopes in the environment - following the pathway from patient to river sediment. *J Environ Radioact*, 100(12), 1079-1085. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2009.05.002>
- (Hormann & Fischer, 2018) Hormann, V., & Fischer, H. W. (2018). A Simple Compartment Model for the Dynamical Behavior of Medically Derived (¹³¹I) in a Municipal Wastewater Treatment Plant. *Environ Sci Technol*, 52(16), 9235-9242. <https://doi.org/10.1021/acs.est.8b01553>
- Tschernobyl
 - (Gans et al., 1991) Gans, I., Abelmann, S., Bünger, Th., Fusban, H.-U., Rühle, H., Rughöft, S., Viertel, H. (1991): Langfristige Auswirkung des Reaktorunfalls in Tschernobyl auf Abwasser und Klärschlamm in der Bundesrepublik Deutschland, *Korrespondenz Abwasser* 38, 711-721, 1991
 - (Gans et al., 1986) Gans, I., Rühle, H., Bünger, Th. und Beckmann, D. (1986): Radioaktivitätsüberwachung von Abwasser und Klärschlamm unter besonderer Berücksichtigung des Reaktorunfalls in Tschernobyl, *Bundesgesundheitsblatt* 29, 305-314, 1986
 - (Imhoff et al., 1988) Klaus, R. I., Paul, K. & Friedrich, D. (1988). Investigations on the concentration of radionuclides in sewage sludges of Ruhrverband wastewater treatment plants 1960 through to 1986. *Water Research*, 22(8), 1059-1067. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0043-1354\(88\)90155-8](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0043-1354(88)90155-8)
 - (SSK, 1988) Der Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Hrsg.): Radionuklide in Wasser-Schwebstoff-Sediment-Systemen und Abschätzung der Strahlenexposition, Veröffentlichungen der Strahlenschutzkommission - Band 9, Gustav Fischer Verlag Stuttgart New York, 1988
 - (SSK, 1998) Der Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Hrsg.): Auswirkungen des Reaktorunfalls in Tschernobyl auf die Bundesrepublik Deutschland, Veröffentlichungen der Strahlenschutzkommission - Band 7, Gustav Fischer Verlag Stuttgart New York, 1998

2.2.6.2 Internationale Forschung

Der Überblick der Publikationen ist auch hier mit dem gesamten Inhalt der Zitation aufgelistet (siehe auch Literaturverzeichnis) wie sie in der EndNote-Datenbank den einzelnen Groups zugeordnet sind.

2.2.7 Literatur zu Tschernobyl und Fukushima

- Tschernobyl
 - (Barci-Funel et al., 1993) Barci-Funel, G., Dalmasso, J., Magneb. J., & Ardisson, G. (1993). Simultaneous detection of short-lived ²⁰¹Tl, ⁹⁹Tcm and ¹³¹I isotopes in sewage sludge using low energy photon spectrometry. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0048-9697\(93\)90057-D](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0048-9697(93)90057-D)

- (Gallego, 2006) Gallego, E. (2006) MUD: a Model to investigate the migration of ¹³⁷Cs in the Urban environment and Drainage and sewage treatment systems. J Environ Radioact, 85(2-3), 247-264. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2004.10.017
- (Goossens et al., 1989) Goossens, R., Delville, A., Genot, J., Halleux, R., & Masschelein, W. J. (1989). Removal of the typical isotopes of the chernobyl Fallout by conventional water treatment. Water Research, 23(6), 693-697. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0043-1354\(89\)90201-7](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0043-1354(89)90201-7)
- (Kavtukha et al., 1999) Kavtukha, G. A., Basharin, A. V., Vishnevskaya, A. A., Ivanskiĭ, I., Skurat, V. V., Shiriaeva, N. M., & Stankevich, L. A. (1999). Radioecological condition of cleansing structures on the territory contaminated with radionuclides as a result of the accident on the Chernobyl Nuclear Power Station and the problems handling with the forming precipitates of sewage in republic Belarus]. Radiats Biol Radioecol, 39(5), 514-520. (Radioékológicheskoe sostoianie ochistnykh sooruzheniĭ na territorii, zagriaznennoĭ radionuklidami v rezul'tate avarii na ChAES, i problemy obrashcheniia s obrazuiushchimisya osadkami stochnykh vod v respublike Belarus'.) Pubmed-ID: 10576020
- (Steinhäusler et al., 1988) Steinhäusler, F., Hofmann, W., Daschil, F., & Reubel, B. (1988). Chernobyl and its radiological and socio-economic consequences for the province of Salzburg, Australia. Environment International, 14(2), 91-111. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0160-4120\(88\)90085-2](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0160-4120(88)90085-2)
- (Zannoni et al., 2019) Zannoni, D., Cantaluppi, C., Ceccotto, F., Giacetti, W., & Lovisetto, B. (2019). Human and environmental factors affecting the activity of (¹³¹)I and (¹³⁷)Cs in urban wastewater: A case study. J Environ Radioact, 198, 135-146. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.12.026>
- Fukushima
 - (Kamei-Ishikawa et al., 2013) Kamei-Ishikawa, N., Ito, A., Tagami, K., & Umita, T. (2013). Fate of radiocesium in sewage treatment process released by the nuclear accident at Fukushima. Chemosphere, 93(4), 689-694. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2013.06.012>
 - (Kosaka et al., 2012) Kosaka, K., Asami, M., Kobashigawa, N., Ohkubo, K., Terada, H., Kishida, N., & Akiba, M. (2012). Removal of radioactive iodine and cesium in water purification processes after an explosion at a nuclear power plant due to the Great East Japan Earthquake. Water Res, 46(14), 4397-4404. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2012.05.055>
 - (Kozai et al., 2021) Kozai, N., Sato, J., Osugi, T., Shimoyama, I., Sekine, Y., Sakamoto, F., & Ohnuki, T. (2021). Sewage sludge ash contaminated with radiocesium: Solidification with alkaline-reacted metakaolinite (geopolymer) and Portland cement. J Hazard Mater, 416, 125965. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2021.125965>
 - (Pratama, Yoneda, et al., 2018) Pratama, M. A., Yoneda, M., Yamashiki, Y., Shimada, Y., Matsui, Y. (2018). Modeling and identifying the sources of radiocesium contamination in separate sewerage systems. Science of The Total Environment, 622-623, 1098-1108. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.12.046>

- (Parajuli et al., 2013) Parajuli, D., Tanaka, H., Hakuta, Y., Minami, K., Fukuda, S., Umeoka, K., Kamimura, R., Hayashi, Y., Ouchi, M., & Kawamoto, T. (2013). Dealing with the aftermath of Fukushima Daiichi nuclear accident: decontamination of radioactive cesium enriched ash. *Environ Sci Technol*, 47(8), 3800-3806. <https://doi.org/10.1021/es303467n>
- (Pratama, Takahara, et al., 2018) Pratama, M. A., Takahara, S., Munakata, M., & Yoneda, M. (2018). Estimation of radiocesium dietary intake from time series data of radiocesium concentrations in sewer sludge. *Environ Int*, 115, 196-204. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2018.03.009>
- (Shiota et al., 2015) Shiota, K., Takaoka, M., Fujimori, T., Oshita, K., & Terada, Y. (2015). Cesium Speciation in Dust from Municipal Solid Waste and Sewage Sludge Incineration by Synchrotron Radiation Micro-X-ray Analysis. *Anal Chem*, 87(22), 11249-11254. <https://doi.org/10.1021/acs.analchem.5b03298>
- (Tsushima, 2017) Tsushima, I. (2017). Behavior of radioactive materials and safety stock of contaminated sludge. *J Environ Sci Health A Tox Hazard Subst Environ Eng*, 52(2), 158-165. <https://doi.org/10.1080/10934529.2016.1240486>

2.2.8 Radionuklide im medizinischen Bereich und NORM

Die Problematik der Radionuklide im Abwasser und Klärschlamm aus dem medizinischen Bereich wird generell intensiv untersucht, in der EndNote-Datenbank sind als Repräsentanten der Trends in der Forschung 35 Publikationen eingearbeitet. Im Wesentlichen liegt der Fokus der Forschung auf I-131 (19 Publikationen). Im Weiteren sind in den recherchierten Publikationen Arbeiten insbesondere zu den Radionukliden Tc-99m, Cs-134, Cs-137, Tl-201, Ga-67 oder In-111 vorhanden. Die ausführliche Auswertung mit der Darstellung der Arbeiten erfolgt im Kapitel 6.

Im Hinblick auf den Ausblick auf zukünftige Labor- und Modellierungsarbeiten ist auch der Bereich der NORM-Forschung von Bedeutung, somit werden die relevanten Arbeiten in die Recherche einbezogen und später einige vorgestellt. Alle diese recherchierten Arbeiten sind hier für die Ergänzung des Literaturverzeichnisses eingefügt:

(Alhajji et al., 2016; Attallah et al., 2015; Gandhi et al., 2022; Gellermann, 2009; Jain et al., 2018; Palomo et al., 2010; Wang et al., 2019; Yang et al., 2020; Zeng et al., 2019; Zeng et al., 2018; Zhang et al., 2015)

3 Grundlagen II: Klärwerkstechnik in Deutschland

3.1 Abwasser

Da die Recherchen und Datenanalysen des vorliegenden Berichtes sich im Kern mit Abwasser und den Verhalten von Radionukliden bei Prozessen in Kläranlagen befassen, sind Sachverhalte zu Techniken und Kennziffern der Abwasserreinigung eine nötige Grundlage.

Unter Abwasser werden im Weiteren Ableitungen von Anlagen in Gewässer verstanden, die in Anhang 1 bis Anhang 57 der Abwasserverordnung (AbwV) aufgeführt sind (AbwV, 2022). Mit dieser Verordnung wird die Anforderung von § 57 Abs. 1 Wasserhaushaltsgesetz (BMUV, 2017) präzisiert, nach der Abwassereinleitungen in Gewässer nur zugelassen werden dürfen, wenn ihre Schadstofffracht nach dem Stand der Technik so gering wie möglich ist. Die dabei zu erfassenden Parameter sind in Anlage 1 der AbwV aufgeführt, wobei keine Radionuklide genannt werden.

In Tabelle 3-1 sind die nach (AbwV, 2022) zu überwachenden Anlagen mit einer Bewertung der Relevanz von Radionukliden im Abwasser zusammengefasst.

Tabelle 3-1: Zu überwachende Anlagen und Relevanz von Radionukliden im Abwasser nach (AbwV, 2022)

Anhang Nr.	Ableitungen von Anlagen in Gewässer	Bewertung der Relevanz
Anhang 1	Häusliches und kommunales Abwasser	(A)*
Anhang 7	Fischverarbeitung	(K-40)
Anhang 9	Herstellung von Beschichtungsstoffen und Lackharzen	Im Ausnahmefall NORM
Anhang 17	Herstellung keramischer Erzeugnisse	NORM / Zirkon
Anhang 19	Zellstofferzeugung	(Ra-Scales)
Anhang 22	Chemische Industrie	(abhängig von Prozessen)
Anhang 26	Steine und Erden	(Abhängig von Geologie)
Anhang 27	Behandlung von Abfällen durch chemische und physikalische Verfahren (CP-Anlagen) sowie Altölaufarbeitung	Behandlung von Lagerstättenwasser mit Radium und / oder Pb-210; K-40
Anhang 28	Herstellung von Papier, Karton oder Pappe	(Ra-Scales)
Anhang 29	Eisen- und Stahlerzeugung	Pb-210, Po-210
Anhang 37	Herstellung anorganischer Pigmente	(ggf. NORM, K-40)
Anhang 39	Nichteisenmetallerzeugung	Pb-210, Po-210 in Hüttenprozessen
Anhang 41	Herstellung und Verarbeitung von Glas und künstlichen Mineralfasern	Ggf. NORM, K-40
Anhang 42	Alkalichloridelektrolyse	(K-40)
Anhang 45	Erdölverarbeitung	Ra-226, Ra-228, Pb-210, K-40
Anhang 48	Verwendung bestimmter gefährlicher Stoffe	(Fallabhängig)
Anhang 51	Oberirdische Ablagerung von Abfällen	Deponiewässer: H-3, Medizin. Radionuklide, natürliche Radionuklide

Quelle: Autoren

- (A) *Bereits im Normalbetrieb kommt es durch Einleitungen von Haushalten (mit Ausscheidungen von entlassenen Patienten) aber auch aus Gesundheitseinrichtungen oder Forschungseinrichtungen und Kleingewerbe zum Eintrag von künstlichen und natürlichen Radionukliden. Bei einem Fallout von Radionukliden haben kommunale Kläranlagen durch Sammlung von Regenwasser eine konzentrierende Wirkung auf Radionuklid-Frachten.

Ableitungen aus Strahlenschutzbereichen oder atomrechtlich genehmigten Anlagen wie Kernkraftwerken, die direkt in Gewässer einleiten, wurden in diesem Vorhaben nicht betrachtet. Es ist aber möglich und in den Ableitungsgrenzwerten der Anlage 11 Tabelle 6 StrlSchV (StrlSchV, 2021) berücksichtigt, dass Einleitungen aus Strahlenschutzbereichen in kommunale Abwassersysteme erfolgen und darüber in Kläranlagen gelangen können. Klärschlamm aus der Reinigung von Deponiesickerwasser und Einleitungen aus Abfalldeponien in Oberflächengewässer sind in den Modellen zur Ableitung von Freigabewerten der Anlage 4 StrlSchV grundsätzlich berücksichtigt (SSK, 2024). Allerdings zeigen Praxisbeispiele (R. Gellermann, 2019) dass die dort getroffenen Annahmen im Einzelfall nicht abdeckend sind.

Die wichtigsten Quellen von Radionukliden im Abwasser sind (siehe z. B. (Mohl, 2014)):

- natürliche Radionuklide aus der allgemeinen Umwelt sowie auch aus Prozessen, in denen Materialien mit erhöhter natürlicher Radioaktivität verarbeitet werden,
- medizinische Anwendungen in Diagnostik und Therapie,
- die Verwendung von Radionukliden in Forschungseinrichtungen und Laboren,
- atmosphärischer Fallout durch kerntechnische Unfälle oder Kernwaffenversuche.

3.2 Prozesse der Abwasserreinigung

3.2.1 Allgemeines

Ziel der Abwasserreinigung ist es, alle im Abwasser vorkommenden Schadstoffe aus dem Wasser zu entfernen, um nachteilige Auswirkungen bei der Einleitung in die Gewässer zu vermeiden. In diesem Zusammenhang spielen die im Abwasser vorhandenen Radionuklide bisher keine Rolle. Die StrlSchV sieht zwar im § 168 Abs. 3 StrlSchV eine Mitteilungspflicht vor, wenn die Aktivitätskonzentration im Kubikmeter Wasser von Abwasseranlagen das 60fache der Werte der Anlage 11 Teil D Nummer 2 übersteigt. Da in Anlagen der öffentlichen Abwasserentsorgung eine Überwachung der Radioaktivität (abgesehen von den Messungen des IMIS-Programms, siehe Kapitel 7) nicht stattfindet und die gemäß § 168 Abs. 3 heranzuziehenden Schwellenwerte hoch sind, ist die Radioaktivität des Abwassers bisher eher Forschungsgegenstand als praxisrelevant.

Obwohl die Prozesse der Abwasserreinigung nicht auf die Entfernung von Radionukliden aus dem Abwasser ausgerichtet sind, ist davon auszugehen, dass es bei diesen Prozessen zu einem Übertrag von Radionukliden in den Klärschlamm kommt. Um die radioökologischen Aspekte, die sowohl mit der allgemeinen Radioaktivität im Abwasser als auch möglichen Einträgen von Radionukliden bei ungeplanten Einträgen oder Fallsituationen modellieren zu können, ist es nötig, die relevanten Prozesse zu kennen, die die Radionuklidumverteilung bedingen und die Massenströme in Kläranlagen zu quantifizieren. Da in dieser Arbeit keine speziellen Kläranlagen untersucht werden, werden im Folgenden allgemeine Kenngrößen zusammengestellt, die die

Abwasserbeseitigung sowie den Anfall und die Entsorgung von Klärschlamm in Deutschland charakterisieren.

Daten zum Stichwort „Abwasser“ sind in der öffentlichen Datenbank des Statistischen Bundesamtes (GENESIS-ONLINE, <https://www.destatis.de/DE/Home/inhalt.html>, im Weiteren zitiert als "DeStatis, 2023") im Themenbereich „322 Wasserversorgung und Abwasserentsorgung“ abrufbar. Eine Übersicht über die Abwassermengen, die jährlich in Deutschland in Gewässer eingeleitet werden, enthält Tabelle 3-2. Die größten Mengen stammen aus der nichtöffentlichen Abwasserentsorgung, unter der die Ableitungen aus Bergbau und Gewinnung von Steinen und Erden, dem verarbeitenden Gewerbe und der Energieversorgung zusammengefasst sind. Hier handelt es sich überwiegend um unbehandeltes Abwasser, das z.B. als Kühlwasser anfällt oder als abgeleitetes Grundwasser aus der Entwässerung von Bergbauten. Für die hier zu prüfenden radiologischen Fragen wird dieser Teil des Abwassers nicht betrachtet.

Als Bezugsgröße für die Kapazität von Kläranlagen werden in der Abwassertechnik die „Einwohnerwerte“ (EW) verwendet. Diese Werte werden berechnet aus der Anzahl der angeschlossenen Einwohner (E) + Einwohnergleichwerte (EGW) zum Vergleich von Industrie-einleitungen mit häuslichem Abwasser (1 EGW = 60 g BSB pro Tag). Vom Statistischen Bundesamt werden Kläranlagen mit Kapazitäten von weniger als 50 EW nicht erfasst. Die Kläranlagen mit höherer Kapazität werden in 5 Größenklassen (Gk) eingeteilt, die von der Gk1 (<1000 EW) bis Gk5 (>100.000 EW) reichen und die dazwischen liegenden Zehnerbereiche jeweils in der Mitte teilen (Gk2: 1.000 – 5.000 EW; Gk3 5.000- 10.000 EW, etc.).

Tabelle 3-2: Jahresabwassermengen im Jahr 2019

	Einleitung von Abwasser als		
	behandeltes Abwasser	unbehandeltes Abwasser	ungenutztes Wasser
	in 1000 m³	in 1000 m³	in 1000 m³
Öffentliche Abwasserentsorgung	9 061 983	-	-
Nichtöffentliche Abwasserentsorgung	876 467	11 849 574	1 090 763

Quelle: (DeStatis, 2023d)

Die Anzahl der an die Kläranlagen angeschlossenen Einwohner liegt bei ca. 96% der Gesamtbevölkerung, wobei sehr kleine Anlagen mit weniger als 50 EW vom Statistischen Bundesamt nicht erfasst werden.

Die technologische Klassifikation von Kläranlagen kann entsprechend der eingesetzten Reinigungsstufen erfolgen. Eine Übersicht über die in den 8.891 erfassten Kläranlagen betriebenen Reinigungsstufen enthält Tabelle 3-4.

Tabelle 3-3: Anzahl der Kläranlagen mit dort betriebenen Prozessen der Abwasserbehandlung, Jahresbezug: 2019

	öffentliche Abwasser- behandlungsanlagen	Davon mit								
		ausschließlich mecha- nischer Behandlung	biologischer Behandlung ohne Zusatzverfahren	biologischer Behandlung mit Zusatzverfahren	und zwar mit					
					Nitrifikation	Denitrifikation	Phosphorentfernung	Filtration	Stickstoff- und Phosphorentfern.	gezielter Elimination von Mikro- schadstoffen
Deutschland	8 891	50	2 418	6 423	6 260	5 328	4 335	359	4 001	38
Westdeutsche Flächenländer	6 679	26	1 607	5 046	4 911	4 208	3 580	328	3 303	38
Ostdeutschland ohne Berlin	2 206	24	811	1371	1 343	1 114	749	31	692	-
Stadtstaaten	6	-	-	6	6	6	6	-	6	-

Quelle: (DeStatis, 2023b)

In der Regel erfolgt die Abwasserreinigung in Deutschland in drei Reinigungsstufen, bei denen mechanische, biologische und chemische Verfahren eingesetzt werden. Eine zweistufige Abwasserreinigung mit mechanischer und biologischer Reinigung ist vor allem in älteren und kleineren Kläranlagen zu finden. Eine vierte Reinigungsstufe mit Aktivkohle zur Elimination schwer zu entfernender Substanzen (Mohl, 2014) wurde 2019 in insgesamt 38 Kläranlagen eingesetzt (siehe).

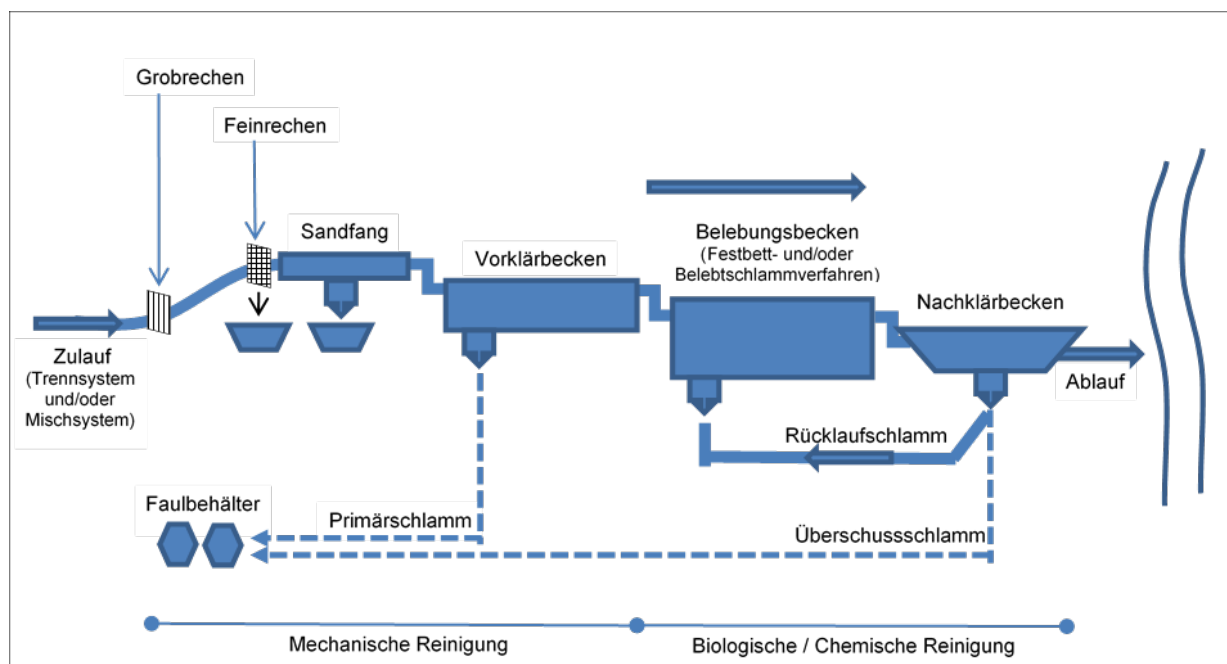
In sind die Verfahrensschritte der Abwasserreinigung übersichtsartig charakterisiert. Tabelle 3-4 visualisiert den allgemeinen Aufbau und die Prozesse in einer Kläranlage. Es sind sowohl in der Tabelle als auch in der Abbildung die generellen Verfahrensschritte und Anlagenteile dargestellt. Der als „Überschussschlamm“ bezeichnete Schlamm wird auch als „Sekundärschlamm“ (der Reinigungsstufe 2), bei einem separaten Anfall in der 3. Reinigungsstufe auch als „Tertiärschlamm“ bezeichnet (Umweltbundesamt, 2018).

Tabelle 3-4: Generelle Prozesse in Kläranlagen

Reinigungsstufe	Anlagen der Reinigungsstufe	Prozess
1. Reinigungsstufe (mechanisch)	1. Rechenanlage	Entfernung grober Verschmutzungen (Laub, Steine, Verbrauchsmaterialien).
	2. Sandfang bzw. Absetzbecken	Entfernung absetzbarer Verunreinigungen (Sand, Steine, Kies). Kombination mit Fettfang möglich.
	3. Vorklärbecken	Entfernung organischer Stoffe (Fäkalien) durch Sedimentation oder aufschwimmen.
2. Reinigungsstufe (biologisch)	1. Belebungsbecken	Abbau biologischer Verunreinigungen und Oxidation anorganischer Stoffe.
	2. Nachklärbecken	Trennung Belebtschlamm vom gereinigten Abwasser.
3. Reinigungsstufe (chemisch)	3. Belebungsbecken / Nachklärbecken	Fällung und Abtrennung von Stickstoff und Phosphaten
4. Reinigungsstufe	(A-Kohle)	Elimination von Mikroschadstoffen

Quelle: (Chemie.de, 2024) - angepasst.

Abbildung 3-1: Genereller Aufbau einer dreistufigen Kläranlage



Quelle: (Chemie.de, 2024), verändert.

3.2.2 Technische Verfahren der kommunalen Entwässerung

Kommunale Kanalisationssysteme haben die Aufgabe, die Entwässerung von Gebäuden und Grundstücken in den Kommunen sicherzustellen. Dabei sind Flutwasser sowie das ggf. in die Kanalisation eindringende Grundwasser (Fremdwasser), das nicht direkt ableit- oder versickerbare Niederschlagswasser und das Schmutzwasser technisch zuverlässig und umweltverträglich abzuleiten.

Die Zuleitung der Abwässer zur Kläranlage kann generell durch zwei verschiedene Methoden erfolgen. Werden Regen- und Schmutzwasser in einem gemeinsamen Kanal zugeleitet, handelt es sich um ein Mischsystem. Beim Trennsystem werden Schmutz- und Regenwasser in unterschiedlichen Leitungen geführt. Schmutzwasser wird der Kläranlage zur Reinigung zugeleitet, gesammeltes Regenwasser wird in ein Gewässer der näheren Umgebung eingeleitet.

Durch biologische Abbauprozesse werden bereits während des Transportweges in der Kanalisation einige organische Stoffe, wie z. B. organische Stickstoffverbindungen und Harnstoff, abgebaut.

Werden Regen- und Schmutzwasser im Mischsystem der Kläranlage zugeleitet, wird die Kläranlage bei Starkregenfällen mit Hilfe eines Auffangbeckens entlastet. In diesen Fällen wird Schmutzwasser in dem Auffangbecken zwischengespeichert und später dem Reinigungsprozess zugeführt. Große Zuflussmengen können zudem durch die Verkürzung der einzelnen Prozessschritte kompensiert werden, so dass die Verweilzeiten der Abwässer in der Kläranlage bei Regenwetter kürzer sind als bei Trockenwetter. Ist die Kanalisation mit voneinander getrennten Regen- und Schmutzwasserkanälen ausgestattet (Trennsystem), erfolgt ein von den Niederschlagsmengen unabhängiger Zufluss.

Das den Kläranlagen zufließende Abwasser wird in der Regel mittels einer Pumpanlage auf das Niveau der Anlage angehoben, um den weiteren Durchlauf der Reinigungsstationen im freien Gefälle zu ermöglichen.

3.2.3 Reinigungsstufe 1: Mechanische Reinigung

In der ersten Reinigungsstufe werden beim Durchfließen der Rechenanlage grobe Feststoffe durch hintereinander geschaltete Rechen mit unterschiedlichen Stababständen (Grob- und Feinrechen) mechanisch gereinigt. Die abgesiebten Materialien werden zu Containern geleitet und anschließend thermisch entsorgt.

Der Rechenanlage ist der Sandfang nachgeschaltet. In diesem Becken setzen sich absetzbare Stoffe am Boden ab. Oftmals wird der Sandfang belüftet, um mit Hilfe einer Wirbelströmung das Absinken der Partikel am Rand des Beckens zu fördern. Die dort verlaufenden Rinnen werden mechanisch geräumt und die Stoffe entfernt. Sofern die mineralischen Bestandteile verwertet werden sollen, erfolgt eine Sandwäsche, in der die Störstoffe von mineralischen Partikeln getrennt werden. Der Sand kann anschließend im Landschafts- oder Straßenbau verwendet werden. Die Störstoffe werden thermisch entsorgt.

Ist der Sandfang mit einem Fett- bzw. Ölfang kombiniert, werden im Sandfang die aufschwimmenden Öle und Fette abgeschöpft und in den Faulbehältern mit dem Klärschlamm vermischt. In anderen Fällen dient das Vorklärbecken als Öl- und Fettabscheider.

Im Vorklärbecken wird die Fließgeschwindigkeit stark abgesenkt, um ein Absetzen von organischen Schmutzstoffen an der Sohle des Beckens zu ermöglichen. Bei dem als Primärschlamm bezeichneten Gemisch handelt es sich hauptsächlich um Fäkalien, welche in einen Trichter am Beckenboden geräumt, eingedickt und zu den Faulbehältern weitergeleitet werden.

Zusammenfassend können bei der mechanischen Reinigung u. a. folgende Verfahren zum Einsatz kommen:

- Siebung: Grob- und Feinrechen - Entfernung großer Partikel, Stoffe,
- Sedimentation: Sandfang, Vorklärbecken - Entfernung absinkbarer Stoffe,
- Abscheidung: Fettfang - Entfernung von Fetten und Ölen.

3.2.4 Reinigungsstufe 2: Biologische Reinigung

In der zweiten Reinigungsstufe fließt das mechanisch vorgereinigte Abwasser in das Belebungsbecken. Das Abwasser ist reich an organischen Kohlenstoffverbindungen, Stickstoffverbindungen und Phosphaten, die durch biologische Prozesse abgebaut werden.

Im ersten Schritt wird im Belebungsbecken durch ausreichend Sauerstoffzufuhr, Zugabe von Bakterien und Durchmischung des Abwassers der mikrobielle Abbau der organischen Bestandteile gefördert. Bakterien adsorbieren die organischen Kohlenstoffverbindungen, nehmen sie als Zellbaustoff auf oder wandeln sie mit Hilfe von Enzymen in Kohlendioxid und Wasser um. Stickstoff liegt meist als Ammonium im Abwasser vor, da organische Stickstoffverbindungen und Harnstoff bereits in der Kanalisation abgebaut wurden. Unter sauerstoffreichen Bedingungen wird bei der Nitrifikation Ammonium zu Nitrit oxidiert und im Anschluss wandeln Bakterien das Nitrit in sauerstoffhaltiges Nitrat um. Der nächste Verfahrensschritt erfolgt unter anaeroben Verhältnissen. Durch die gestoppte Sauerstoffzufuhr und den Sauerstoffverbrauch der Bakterien werden nach kurzer Zeit sauerstofffreie Bedingungen erzeugt. In einigen Kläranlagen existieren für diesen Vorgang separat angelegte Denitrifikationsbecken, die dem Belebungsbecken nachgeschaltet sind. Im Gegensatz dazu unterteilen andere Anlagen das Belebungsbecken in Nitrifikation- und Denitrifikationszonen. Sauerstoff liegt nach der Nitrifikation/Denitrifikation nur noch molekular gebunden vor. Bestimmte Bakterienarten nutzen den gebundenen Sauerstoff für ihre Stoffwechselprozesse. Dabei wird unter Verbrauch des Sauerstoffes Nitrat zu Stickstoff umgewandelt, welcher als Gas in die Atmosphäre entweichen kann.

Bei der biologischen Reinigung werden das Festbett- und das Belebtschlammverfahren unterschieden. Anhand der angewandten Verfahrenstechnik erfolgt die Einteilung der Kläranlagen in zwei Grundtypen. Bei Reinigung der Abwässer im Festbettverfahren erfolgt die Belebung der Mikroorganismen auf einem Festbett (bepflanzter Bodenkörper/Tropfkörper). Das Festbett besteht aus Elementen (z. B. Kunststoff oder Lavaschlacke), die eine hohe spezifische Oberfläche aufweisen und mit einem Biofilm aus Mikroorganismen bewachsen sind. Der für die Abbauprozesse nötige Sauerstoff wird über Membranbelüfter oder Düsenrohre in Gegenstromrichtung zugeführt. In Anlagen, die im Belebtschlammverfahren reinigen, ist die aktive Biomasse nicht auf Trägerkörpern fixiert, sondern schwimmt frei im Belebungsbecken. Eine Kombination beider Verfahrensweisen ist möglich. Üblicherweise reinigen vor allem große Kläranlagen im Belebtschlammverfahren.

Der Belebtschlamm enthält zahlreiche Vertreter der Destruenten-Saprophagen-Nahrungskette (z. B. Bakterien, Algen, Pilze, Ciliaten, Rotatorien- und Nematodenarten).

In Anlagen, in denen eine Eliminierung von Phosphatverbindungen auf biologische Weise erfolgt, ist dem Belebungsbecken ein Anaerobbecken vorgeschaltet. Die hier eingesetzten Bakterien verbrauchen aufgrund des fehlenden Sauerstoffes ihre „Energiereserven“ und nehmen dadurch im nachfolgenden Belebungsbecken unter Sauerstoffzufuhr vermehrt Phosphate als versorgenden Energielieferanten auf.

Im Nachklärbecken ruht das Abwasser für einige Zeit, so dass sich die im Belebtschlammbecken gebildeten schwer löslichen Verbindungen als Belebtschlammflocken am Boden absetzen. Mechanische Räumler reinigen den Boden des Beckens vom angesammelten Schlamm. Teile des Schlammes werden als Rücklaufschlamm zurück ins Belebungsbecken gepumpt, um die vorhandenen Bakterien erneut zu nutzen. Der restliche Schlamm wird als Überschussschlamm eingedickt und in die Faulbehälter verbracht.

Die bei der biologischen Reinigung wirksamen Prozesse sind:

- Biologische Verfahren mit chemischen Reaktionen:
 - Elimination: Anaerobbecken – Eliminierung von Phosphatverbindungen durch O₂-Armut,
 - Oxidation: Belebungsbecken – aerober Abbau organischer Bestandteile zu anorganischen Endprodukten (Festkörper- und/oder Belebtschlammverfahren),
 - Nitrifikation: Belebungsbecken – Umbau der Stickstoffverbindungen durch Mikroorganismen unter O₂-Zufuhr zu Nitrat (NO₃),
 - Denitrifikation: im anaeroben Teil des Belebungsbeckens – durch O₂-Armut wird der Abbau von Kohlenstoffverbindungen mit Hilfe von Nitraten durch Mikroorganismen angeregt. Nitrate werden zu gasförmigem Stickstoff reduziert.
- Mechanische Verfahren:
 - Separation: Nachklärbecken – Entfernung Belebtschlamm aus dem gereinigten Abwasser,
 - Sedimentation: Nachklärbecken – Entfernung absinkbarer Stoffe.

3.2.5 Reinigungsstufe 3: Chemische Reinigung zur Phosphatelimination

Ist die Belastung des Abwassers durch Phosphate sehr stark, wird neben der biologischen Reinigung in der dritten Reinigungsstufe eine Fällung der Phosphate herbeigeführt. Bei der Simultanfällung werden in das Belebungsbecken meist Eisen- und Aluminiumsalze eingebracht, die mit den Phosphaten schwer lösliche Verbindungen eingehen. Diese setzen sich im Nachklärbecken als Flocken ab und können zusammen mit dem Überschussschlamm entfernt werden. Zum Teil laufen die chemischen Prozesse auch als Vor- oder Nachfällung ab.

Die chemische Reinigungsstufe ist durch folgenden Prozess charakterisiert:

- Fällung: Belebungsbecken – Fällung von Phosphationen mit Eisen- und Aluminiumsalzen.

3.2.6 Zusätzliche Reinigungsverfahren

3.2.6.1 Aktivkohle

In einigen Kläranlagen wird Aktivkohle zur Elimination schwer zu entfernender Substanzen eingesetzt (z. B. in den Kläranlagen Böblingen/Sindelfingen, Mannheim, Albstadt, Lautlingen, Ravensburg, Kressbronn, Stockacher Aach, Emmingen-Liptingen, Hechingen, Gütersloh) (Mohl, 2014). Verwendet wird dabei Aktivkohle in Granulat- oder Pulverform, welche in Form eines letzten Verfahrensschrittes als zusätzlicher Filter dienen kann. Es handelt sich um ein adsorptives Verfahren, bei dem aus einer fluiden Phase gelöste Substanzen und Spurenstoffe an der Oberfläche von Festkörpern gebunden und somit aus dem Abwasser entfernt werden. Die Entfernung von Arzneimitteln und organischen Spurenstoffen aus der gelösten Phase wird dadurch begünstigt. Dieses zusätzliche Reinigungsverfahren kann charakterisiert werden als:

- Adsorption: Aktivkohlefilter – Anlagerung Arzneimittel und organischer Spurenstoffe.

3.2.6.2 Filter vor Einleitung

In einigen Kläranlagen wird vor Ableitung des Abwassers in die Vorflut ein weiterer mechanischer Reinigungsschritt ausgeführt. Das Abwasser wird nochmals über Sandfilter geleitet, um kleinste Partikel zu entfernen. Dieses zusätzliche Reinigungsverfahren kann charakterisiert werden als:

- Filtration: Sandfilter – Entfernung von Schwebstoffen und daran gebundenen Spurenstoffen.

3.2.7 Schlammbehandlung

Die in der Kläranlage anfallenden Schlämme werden als Primär- bzw. Überschussschlamm (Rohschlamm) bezeichnet und der Schlammbehandlung zugeführt. Ziel ist es, den Gehalt an organischen Kohlenstoffen weitestgehend zu minimieren und das Volumen zu reduzieren. Daher wird der Schlamm durch Entzug von Wasser eingedickt. Größere Kläranlagen verfügen über Faulbehälter, in die der eingedickte Rohschlamm eingeleitet wird. In den Behältern wird er auf eine Idealtemperatur von 36 – 37 Grad Celsius erwärmt und durch Rührwerke oder Pumpen permanent umgewälzt. Dabei zersetzen Bakterien die organischen Bestandteile des Schlammes. Das entstehende Gas besteht hauptsächlich aus Methan und wird im Faulgasbehälter gesammelt. Es kann in Blockheizkraftwerken in Strom und Wärme umgewandelt werden.

Nach dem Ausfäulungsprozess des Rohschlammes (Verweildauer in den Faulbehältern: bis zu 20 Tage) wird der stabilisierte Klärschlamm – bez. Faulschlamm – entnommen, weiter eingedickt (statische Entwässerung durch Sedimentation) und maschinell entwässert (Zentrifugen, Kammerfilterpresse, Siebbandpresse).

Der Rohschlamm aus Anlagen ohne Faulbehälter wird entweder direkt entwässert und entsorgt oder den Faulbehältern einer anderen Kläranlage zugeführt.

Die bei der Schlammbehandlung wirksamen Prozesse sind:

- Schlammfäulung: Faultürme – anaerober Abbau organischer Bestandteile zu anorganischen Endprodukten.

Da Radionuklide aus dem Klärschlamm bei oder nach der Entsorgung grundsätzlich zu Expositionen führen können, werden die derzeitigen und zukünftig zu erwartenden Wege der Klärschlammentsorgung im Kapitel 3.5 beschrieben.

3.2.8 Naturnahe Nachbehandlung

Der biologischen Reinigungsstufe sind in einigen Kläranlagen Rieselfelder, Mäandersysteme oder Schönungsteiche nachgeschaltet (Ertl & Ginzel, 2000). Diese Anlagen dienen der weiteren Verbesserung der Abwasserqualität. Sie liegen meist außerhalb des Betriebsgeländes und verfügen über keinerlei technische Ausstattungen (Belüftung, Zugabe von Flockungsmitteln, etc.). Die Reinigung des Wassers von Schwebstoffen und die Angleichung der Wasserqualität hinsichtlich Sauerstoffgehalt an den nachfolgenden Vorfluter geschieht durch die lange Verweildauer im natürlichen Teich oder auf Mäanderstrecken. Sie beträgt normalerweise einige Tage, kann bei starkem Niederschlag auch kürzer sein, so dass der Schönungsteich auch als Regenrückhaltebecken dient.

3.3 Radionuklidumverteilung bei Prozessen in Kläranlagen

Die Aktivitätskonzentration im gereinigten Abwasser und die spezifische Aktivität im Klärschlamm sind Ergebnis des Eintrags von Radionukliden und der Wechselwirkungsprozesse in den Kläranlagen selbst. Eine spezifische Analyse der Kläranlagenprozesse und ihrer Wirkung auf die Radionuklidumverteilung übersteigt den Rahmen dieser Arbeit. Da allerdings bei der Überwachung vom Abwasser und Klärschlamm auch die Frage zu beantworten ist, in welcher physikalischen Phase (Abwasser, Klärschlamm, Gas) bestimmte Radionuklide zu erwarten sind, werden die Prozesse im Weiteren daraufhin bewertet, ob sie für bestimmte Radionuklide zu einer Anreicherung, d.h. eine Erhöhung der spezifischen Aktivität führen können. Die zur Modellierung der Radionuklidumverteilung heranzuziehenden Kenngrößen werden genannt.

- Sieben, Filtrieren, Zentrifugieren: Sind für sich unspezifisch bezüglich der Radionuklidumverteilung. Reichern aber Stoffe an, die zuvor durch Sorption oder als Fällungsprodukt in / an die feste Phase übergegangen sind.
- Ausgasen: In den biologischen Reinigungsstufen wird das Abwasser intensiv belüftet. Dabei werden gasförmig vorliegende Radionuklide aus dem Abwasser entfernt. Neben Edelgasen können auch gasförmige Verbindungen von anderen Radionukliden ausgasen. Dazu gehören z.B. C-14 als CO_2 , oder I-131 als Methyliodid (CH_3I) sowie Rn-222.
 - Kenngröße: Ostwald-Koeffizient
- Sorption / Desorption: Als physikalische Wechselwirkung von gelösten Ionen mit (festen und elektrisch negativ geladenen) Oberflächen; besonders ausgeprägt bei Kationen. Nicht oder wenig effektiv bei ungeladenen Atomen oder Molekülen. Sorption nimmt im sauren (und basischen) Milieu ab.
 - Kenngröße: Verteilungskoeffizient fest/gelöst (K_d -Wert, in (AVV, 2020) K_r^{Se} -Wert genannt)

- Fällung / Lösung: Chemische Reaktionen, abhängig vom Reaktionsmilieu (pH, Eh) und Reaktionspartnern. Radium – Fällung als Sulfat; Uran: im neutralen pH-Bereich als 6-wertiges Uran löslich im oxidierenden Milieu, im reduzierenden Milieu 4-wertig und damit (weitgehend) unlöslich.
- Kenngröße: Halbwertszeit für die Anlagerung des Radionuklids r an Schwebstoffe in Oberflächengewässern in s - $T_{Anl,r}$

Ob die Prozesse als „chemisch“ oder „biologisch“ klassifiziert sind, ist für die Radionuklidumverteilung unerheblich. Die Radionuklide sind bei allen Prozessen nur in Spuren- oder Ultraspurenkomponenten vorhanden. Eine Rückwirkung der Radionuklidumverteilung auf die ablaufenden Prozesse ist daher auszuschließen. Eine Übersicht über die chemischen Charakteristika der Elemente, zu denen die in Kläranlagen besonders zu beachtenden Radionuklide gehören, ist in Tabelle 3-5 zusammengestellt.

Die dort aufgeführten Kenngrößen K_r^{Se} und $T_{Anl,r}$ wurden der (AVV, 2020) entnommen. Sie dienen hier nur als Anhaltswerte, da sie nicht repräsentativ für Abwasser sind. Inwieweit die bei der nuklearmedizinischen Applikation verwendeten Trägermoleküle der Radionuklide bei den Ausscheidungen oder Ableitungen noch das Verhalten der Radionuklide beeinflussen, ist derzeit nicht mit Untersuchungsergebnissen belegt. Man kann aber davon ausgehen, dass der Stoffwechsel von Patienten zu einem Abbau komplexer Moleküle führt und die Radionuklide sich im Wesentlichen nach den chemischen Eigenschaften des zugehörigen Elementes verhalten.

Tabelle 3-5: Charakterisierung des stofflichen Verhaltens von chemischen Elementen in wässrigen Lösungen mit Feststoffen. K_r^{Se} und T_{Anl} aus (AVV, 2020)

Element	Chemische Charakteristika	$K_r^{Se}(l \cdot kg^{-1})^*$	$T_{Anl}(d)^{**}$
H	Wertigkeit +1; als Bestandteil des Wassermoleküls keine spezifische Wechselwirkung mit Feststoff; kann in die Luft / Atmosphäre verdunsten.	(entfällt, da Teil des Wassers)	(k.A.)
C	Wertigkeit -4; Hauptbestandteil aller organischen Verbindungen. Abbaubar bis zu CO ₂ .	(k.A.)	(k.A.)
Tc	Neun unterschiedl. Oxid.-zustände (-1 bis +7) möglich. Wichtigste Verbindungen +4, +5, +7	200	0
I	Wertigkeit -1; als Halogen grundsätzlich gut im Wasser löslich.	5.000	1,5
Lu	Lanthanoid. Wertigkeit (in wässrigen Lösungen) +3;	5.000*	1,5***
Sr	Erdalkalimetall. Bildet geringlösliche Sulfate	200	0
Cs	Alkalimetall. Bildet gut lösliche Salze.	5.000	1,5
Ra	Erdalkalimetall (+2); Bildet extrem geringlösliche Sulfate	100	0
U	Als +6-wertiges Uranyl im Wasser löslich, als +4-wertiges Ion im reduzierenden Milieu. Mitfällung mit Phosphat	18.000	2,5

* Konzentrationsfaktor für Schwebstoffe für das Radionuklid r

** Halbwertszeit für die Anlagerung des Radionuklids r an Schwebstoffe in Oberflächengewässern in s

*** Werte von La übertragen

Quelle: Daten: AVV (2020), Chemische Charakteristika: Autoren aus Allgemeinquellen

3.4 Hauptmassenströme in Kläranlagen

Die zeitliche Entwicklung der Anzahl öffentlicher Abwasserbehandlungsanlagen und der behandelten Jahresabwassermengen seit 2007 ist in Tabelle 3-6 zusammengestellt. Es zeigt sich eine deutliche Abnahme der Anzahl der öffentlichen Abwasserbehandlungsanlagen (Kläranlagen). Grund dafür ist nach Angaben von (Durth & Kolvenbach, 2014) vor allem eine Abnahme der Kläranlagen der Größenklasse 2 (1000 – 5000 EW).

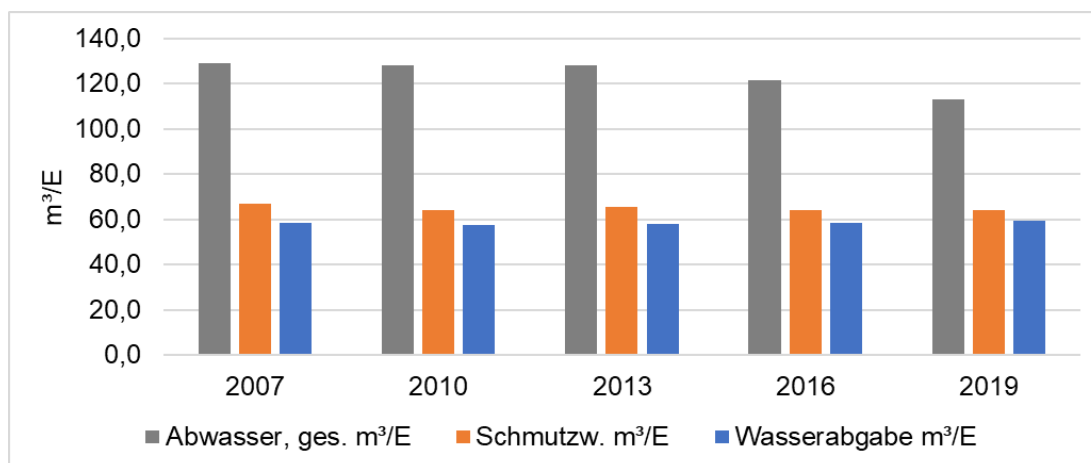
Tabelle 3-6: Zeitliche Entwicklung der Anzahl der öffentlichen Abwasserbehandlungsanlagen und der behandelten Jahresabwassermengen seit 2007

Jahr	Öffentliche Abwasserbehandlungsanlagen Anzahl	Angeschlossene Einwohnerwerte (EW) In Mio.	Angeschlossene Einwohner (E) In Mio.	Jahresabwassermenge In Md. m ³	Davon häusl. u. betrieb. Schmutzwasser In Md. m ³
2007	9741	124,43	78,06	10,06	5,21
2010	9522	119,64	78,09	9,99	5,01
2013	9227	116,86	76,84	9,82	5,02
2016	9030	117,55	79,04	9,58	5,05
2019	8841	115,43	80,01	9,05	5,13

Datenquellen: (DeStatis, 2023b); Daten 2007 und 2010: (Durth & Kolvenbach, 2014)

Die Abwassermengen je angeschlossenem Einwohner (E) sind in Tabelle 3-6 dargestellt. Zum Vergleich sind auch die Werte der Wasserabgabe an Haushalte und Kleingewerbe sowie an gewerbliche und sonstige Abnehmer mit dargestellt. Das Diagramm Abbildung 3-2 zeigt, dass die Jahresabwassermenge seit 2007 leicht abgenommen hat, die Menge des häuslichen und betrieblichen Schmutzwassers aber annähernd gleichgeblieben ist und grob mit der Menge der Wasserabgabe an Haushalte, gewerbliche und sonstige Abnehmer übereinstimmt.

Abbildung 3-2: Einwohnerbezogenen Jahresmengen an Abwasser und darin enthaltenes häusliches und betriebliches Schmutzwasser



Datenquelle: (DeStatis, 2023b); Daten 2007 und 2010: (Durth & Kolvenbach, 2014) Bild: Autoren

Als Bezug für radioökologische Abschätzungen sind in Tabelle 3-7 spezifische Klärschlamm-mengen zusammengestellt. Die bei der Abwasserreinigung anfallende Menge an Klärschlamm-Trockenmasse (TM) beläuft sich auf ca. 190 g/m³. Bezugsgröße für Einwohner ist die Anzahl der an die Kläranlagen angeschlossenen Einwohner (E). Danach ist derzeit mit Klärschlamm-mengen (Trockenmasse, TM) von ca. 21-22 kg je angeschlossenen Einwohner und Jahr zu rechnen. In Kläranlagen der Größenklasse 5 mit 200.000 angeschlossenen Einwohnern (ca. 300.000 EW) muss man daher mit Klärschlamm-mengen von jährlich 4000 Mg bis 4500 Mg (TM) rechnen.

Tabelle 3-7: Spezifische Klärschlamm-mengen je angeschlossenen Einwohner E

Jahr	Einwohner (E) Mio.	Klärschlamm-gesamt Mio. Mg TR	Jahresabwasser-menge Mio. m ³	Spezifische Klärschlamm-mengen in Trockenmasse		
				g TM /m ³	kg TM /(E a)	g TM /(E d)
2021	80,0*	1,718	k.A.	(k.A.)	21	59
2019	80,01	1,740	9047	192	22	60
2010	78,09	1,887	9985	189	24	65
2007	78,06	2,056	10064	204	26	68

* Geschätzt von den Autoren

Quellen Jahresabwasser und Einwohner: (DeStatis, 2023a); Klärschlamm ((DeStatis, 2023f) (DeStatis, 2023e)), Daten 2007 und 2010 (Durth & Kolvenbach, 2014)

In der Veröffentlichung (Durth & Kolvenbach, 2014) wird auch die Struktur der Abwasserentsorgung in Deutschland mit Bezug auf das Jahr 2010 vertiefend ausgewertet. Die in Tabelle 3-8 zusammengestellten Daten zeigen, dass die nach Anzahl meisten Kläranlagen eine Ausbaugröße unter 5000 Einwohnerwerten besitzen. Der Anteil dieser (vielen) Anlagen an der Gesamtmenge an gereinigtem Abwasser ist aber mit ca. 7% klein. In den Abwasserbehandlungsanlagen der Größenklasse 5 wird fast die Hälfte des insgesamt angefallenen kommunalen Abwassers gereinigt (Durth & Kolvenbach, 2014).

Tabelle 3-8: Größenklassen der öffentlichen Abwasserbehandlungsanlagen und behandelte Jahresabwassermengen im Jahr 2010

Größenklasse	Ausbaugröße in EW	Öffentliche Abwasser- behandlungsanlagen		behandelte Jahresabwassermenge	
		Anzahl	%	Mio. m³	%
Gk 1	<1.000	4153	43,1	113	1,1
Gk 2	1.000–5.000	2387	24,8	528	5,3
Gk 3	5.000–10.000	864	9	511	5,1
Gk 4a	10.000 - 50.000	1657	17,2	2740	27,4
Gk 4b	50.000 - 100.000	315	3,3	1373	13,8
Gk 5	>100.000	256	2,7	4722	47,3
Insgesamt 2010		9632	100	9988	100

Quelle: (DeStatis, 2023b), (Durth & Kolvenbach, 2014)

Einen Überblick über die technischen Verfahren zur Abwasserreinigung in den öffentlichen Abwasserbehandlungsanlagen enthält Tabelle 3-9. Bezogen auf die angeschlossene Bevölkerung im Jahr 2019 sind die Daten in Tabelle 3-7 dargestellt. Danach wird das Abwasser von mehr als 95% der Bevölkerung durch Kläranlagen mit biologischer Behandlung und mit zusätzlicher Stickstoff- und Phosphorentfernung gereinigt.

Tabelle 3-9: Technische Verfahren zur Abwasserreinigung in den öffentlichen Abwasserbehandlungsanlagen (Bezug: 2019)

An öffentliche Abwasser- behandlungs- anlagen angeschlossener Anteil der Bevölkerung	davon mit					
	ausschließlich mechanischer Behandlung	biologischer Behandlung ohne Zusatzverfahren	biologischer Behandlung mit Zusatzverfahren	darunter mit		
				ausschließlich Denitrifikation	ausschließlich Phosphor- entfernung	Stickstoff- und Phosphor- entfernung
96,2%	0,0%	1,1%	95,1%	0,0%	0,2%	91,1%

Quelle: (DeStatis, 2023b)

3.5 Klärschlamm Entsorgung

Aufgrund von chemischen Belastungen mit Spurenelementen ist die früher praktizierte landwirtschaftliche Verwertung von Klärschlamm nur noch für kleinere Kläranlagen zulässig (§ 15 AbwKlärV). Als Entsorgungswege für Klärschlamm werden weiterhin genutzt (siehe (DeStatis, 2023c), (Umwelbundesamt, 2018)):

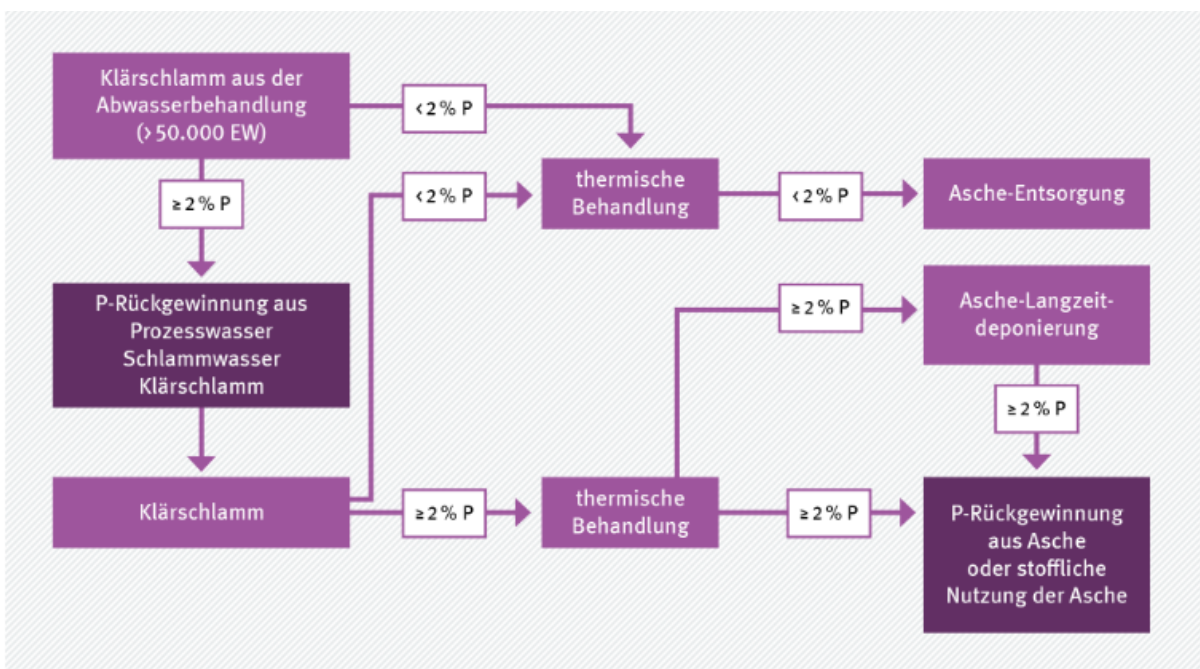
- Verwertung bei landschaftsbaulichen Maßnahmen, Rekultivierung von Böden, ggf. nach Vererdung, Kompostierung in eigenen Anlagen.

- Thermische Behandlung in Kraftwerken, Zementwerken, Abfallverbrennungsanlagen.

Mit der Novellierung der AbwKlärV im Jahr 2017 wurden große Kläranlagen mit Kapazitäten von mehr als 50.000 EW bzw. 100.000 EW verpflichtet, nach einer Übergangsfrist aus Klärschlamm mit mehr als 20 g P je kg Trockenmasse und ggf. auch aus Asche aus der Klärschlammverbrennung den Phosphor rückzugewinnen, um diese Ressource weiter als Dünger nutzen zu können. Die ab 2029 (Anlagen mit über 100.000 EW) bzw. 2032 (Anlagen über 50.000 EW) vorgeschriebenen Entsorgungswege für Klärschlamm sind in Abbildung 3-3 dargestellt.

In diesem Zusammenhang ist darauf hinzuweisen, dass die Rückgewinnung von Phosphat mit Fällungs- und Sorptionsprozessen verbunden ist und es bei diesen Prozessen auch zu Mitanreicherungen von Radionukliden kommen kann. Bekannt ist, dass bei der Produktion von Phosphatdünger das vor allem in sedimentären Phosphaterzen enthaltene Uran mit in den Dünger übertragen wird (IAEA, 2013). Inwieweit die P-Rückgewinnung aus Klärschlamm zu Urananreicherungen oder Anreicherungen anderer Radionuklide führt, kann derzeit nicht hinreichend bewertet werden.

Abbildung 3-3: Zukünftige Entsorgungswege für Klärschlamm aus Kläranlagen über 50.000 EW



Quelle: (Umwelbundesamt, 2018)

4 Fokus der Recherchen: relevante Radionuklide

4.1 Natürliche Radionuklide

Natürliche Radionuklide kommen sowohl als sehr langlebige primordiale Radionuklide, als radiogene Radionuklide in Zerfallsreihen oder als kosmogene Radionuklide vor. Von den primordialen Radionukliden können die extrem langlebigen mit Halbwertszeiten von mehr als 3×10^{10} Jahren (z.B. Lu-176, Re-187, Rb-87, La-138, Sm-147, Pt-190 u.a.) für die Überwachung des Abwassers aus Strahlenschutzgründen außer Acht gelassen werden. Als relevante primordiale Radionuklide verbleiben Th-232 (HWZ $1,41 \times 10^{10}$ a), U-238 ($4,47 \times 10^9$ a), K-40 ($1,25 \times 10^9$ a) und U-235 ($7,04 \times 10^8$ a). Von diesen Radionukliden zerfällt nur K-40 in (zwei) stabile Tochternuklide. Th-232, U-238 und U-235 bilden Zerfallsreihen. Von den radiogenen Radionukliden dieser Zerfallsreihen sind einige sehr kurzlebige Gammastrahler (z. B. Ac-228, Bi-214, Pb-212, Tl-208) messtechnisch bedeutsam. Für die Überwachung des Abwassers sind diese Radionuklide nur insoweit von Bedeutung, als sie für die Bestimmung längerlebiger Radionuklide genutzt werden können. Von den kosmogenen Radionukliden ist Tritium (H-3) im Wasser praktisch stets vorhanden. Auch Radiokohlenstoff (C-14) ist als Bestandteil von Lebewesen in allen Abwässern mit Biomasse vorhanden. Weitere langlebige kosmogene Radionuklide ($T_{1/2} > 100$ a), die in der Atmosphäre gebildet werden und mit dem Niederschlagswasser zur Erdoberfläche gelangen, sind u. a. Be-10, Al-26, Si-32, Cl-36, Ar-39, Kr-81. Alle diese Radionuklide sind als geowissenschaftliche Tracer verwendbar, sind aber für den Strahlenschutz in den natürlicherweise im Wasser vorkommenden Aktivitätskonzentrationen ohne Bedeutung.

Eine Zusammenstellung der ggf. im Abwasser vorhandenen natürlich vorkommenden Radionukliden und eine Bewertung ihrer Relevanz für die strahlenschutzseitige Überwachung von Abwasser enthält Tabelle 4-1. Hinsichtlich der dort aufgeführten Detektion über die Gamma-Spektrometrie von Tochternukliden ist zu beachten, dass eine quantitative Bestimmung ein Aktivitätsgleichgewicht voraussetzt, dessen Einstellung im Einzelfall mehrere Tage (ggf. bis mehrere Wochen) dauern kann, wobei in Abwasserproben nicht uneingeschränkt von einem Aktivitätsgleichgewicht zwischen Mutter- und Tochternukliden ausgegangen werden kann. Da Klärschlamm im Prozess der Abwasserreinigung über längere Zeit gesammelt wird, kann bei Klärschlamm ein Aktivitätsgleichgewicht vom kurzlebigen Tochternukliden mit ihren Vorgängern eher angenommen werden.

Tabelle 4-1: Natürlich vorkommenden Radionuklide und Bewertung (HWZ nach (StrlSchV, 2021))

Radionuklid	Zerfallsart	HWZ	Detektion ¹	Anmerkungen und Bewertung der Relevanz
H-3	Beta	12,4 a	LSC (Liquid scintillation counting)	Bei höheren Konzentrationen als im Niederschlag ein Indikator für anthropogenes H-3. Für Überwachung relevant
Be-7	EC	53,2 d	Gammapektr.	Geringe Relevanz (Qualitätssicherung)
C-14	Beta	5700 a	LSC (Liquid scintillation counting, accelerator mass spectrometry AMS)	Geringe Relevanz, ggf. bei Kläranlagen, in deren Einzugsgebiet C-14 verwendet wird, zu prüfen

Radionuklid	Zerfallsart	HWZ	Detektion ¹	Anmerkungen und Bewertung der Relevanz
K-40	Beta, EC	1,3E+09a	Gammaspektr.	An chemisches Element Kalium gebunden. Radiologisch ohne Bedeutung. Ggf. als Indikator für Versalzungen verwendbar. Bedingt relevant
Po-210	Alpha	138 d	Alphaspektr.	Geringe Relevanz
Pb-210	Beta	22,2 a	Gammaspektr.	Bei Anlagen nach Anhang 27, 29, 45 AbwV ggf. relevant
Ra-223	Alpha	11,4 d	Gammaspektr. (ggf. über Bi-211)	Als natürliches Radionuklid der U-235-Reihe wenig relevant. Nuklearmedizinische Verwendung möglich.
Ra-224	Alpha	3,6 d	Gammaspektr. (auch über Pb-212, Tl-208)	Radionuklid der Th-232-Reihe, wenn Ra-228 bekannt ist, dann in der Regel mit abgedeckt. Wenig relevant
Ra-226	Alpha	1600 a	Gammaspektr., über Pb-214, Bi-214	Indikator für NORM. Bei Anlagen nach Anhang 27, 29, 45 AbwV in jedem Fall relevant.
Ra-228	Beta	5,8 a	Gammaspektr., über Ac-228	Indikator für Th-232 Reihe (NORM). Bei Anlagen nach Anhang 27, 29, 45 AbwV ggf. relevant.
Ac-227	Beta	21,8 a	Gammaspektr., über Th-227	Wenig Vorkenntnisse, sehr hoher Dosiskoeffizient. Als natürliches Radionuklid der U-235-Reihe wenig relevant. Verwendet in Isotopenproduktion für die Nuklearmedizin.
Th-227	Alpha	18,7 d	Gammaspektr.	Thorium im (neutralen) Wasser weitgehend immobil. Als kurzlebiges Radionuklid der U-235-Reihe wenig relevant. Kann im Zusammenhang mit nuklearmedizinischen Anwendungen vorkommen.
Th-228	Alpha	1,9 a	Alphaspektr.; Gammaspektr. über Ra-224, Pb-212, Tl-208	Thorium im (neutralen) Wasser weitgehend immobil. In Abwasser wenig relevant. Ggf. im Klärschlamm relevant als Indikator für NORM.
Th-230	Alpha	75000 a	Alphaspektr.	Wenig Vorkenntnisse, wegen geringer Mobilität eher wenig relevant
Th-232	Alpha	1,4E+10a	Alphaspektr.; ICP-MS	Wegen geringer Mobilität eher wenig relevant
Th-234	Beta	24 d	Gammaspektr.	Geringe Relevanz
U-234	Alpha	2,5E+05a	Alphaspektr., ICP-MS	Bei natürlich vorkommendem Uran an U-238 gekoppelt. Durch U-238-Messungen hinreichend abgedeckt. Wenig relevant
U-235	Alpha	7,0E+08a	Alphaspektr., Gammaspektr.	Bei natürlich vorkommendem Uran an U-238 gekoppelt. Ein vom natürlichen Aktivitätsverhältnis U-235/U-238 von ca. 5% <u>signifikant</u> abweichendes Verhältnis ist ein Indikator für künstlich verändertes Uran. Bedingt relevant
U-238	Alpha	4,5E+09a	Alphaspektr., ICP-MS Gammaspektr. (über Th-234, Pa-234m)	Grundsätzlich mobiles Radionuklid. Indikator für NORM. Relevant.

Quelle: Autoren

4.2 Radionuklide aus medizinischen Anwendungen in Diagnostik und Therapie

In der Medizin werden Radionuklide in der Diagnostik und Therapie eingesetzt. Eine Zusammenstellung von 49 derzeit in der Medizin verwendeten Radionukliden mit Angaben zum Verwendungszweck enthält Anhang II, Tabelle 10-10. Von den dort genannten Verfahren dienen zur Diagnostik:

- Szintigraphien, d.h. mit Gammakameras aufgenommene 2-D-Bilder von den mit Radiopharmaka markierten Organen (Lunge, Herz, Nieren), dem Skelett, von Lymphknoten oder Schilddrüsen,
- Aufnahmen von Geweben mit PET bzw. PET-CT (Positronenemissionstomographie), wobei Positronen emittierenden Radiopharmaka (z.B. F-18, Ga-68) zum Einsatz kommen,
- mittels SPECT-Technik (Single-Photon-Emissionscomputertomographie) aufgenommen 3-D-Aufnahmen,
- als Tracer z.B. zur Analyse von Stoffwechselprozessen eingesetzte Radiopharmaka.

In der Therapie werden Radionuklide palliativ oder kurativ verwendet. Bei der Brachytherapie wird eine Strahlenquelle mit nur geringer Reichweite („brachy“ - kurz) direkt am Tumor platziert. Dies kann sowohl als feste Strahlenquelle (z.B. in Drahtform) oder über mobile Trägermoleküle erfolgen. Die Trägermoleküle haben die Aufgabe, das jeweilige Radionuklid gezielt in den Tumor einzuschleusen. Die Verfahren werden daher auch als „targeted radiotherapy“ bezeichnet. Als Trägermolekül für I-131 dient zumeist Metaiodbenzylguanidin (MIBG). Andere Radionuklide, wie z.B. Lu-177 werden an Eiweißverbindungen gekoppelt (Peptide Receptor Radionuclide Therapy, PRRT). Werden Alphastrahler in einer „targeted radiotherapy“ verwendet, dann ist dafür die Abkürzung TAT (targeted alpha-particle therapy) gebräuchlich. Ein relativ neues Verfahren insbesondere zur Behandlung von Leberkrebs ist die selektive interne Radiotherapie (SIRT), bei der radionuklid-beladene Mikrokügelchen in das Tumorgewebe eingebracht werden.

Radionuklideinträge in das Abwasser sind bei einem regulären Ablauf der nuklearmedizinischen Verfahren vor allem durch Ausscheidungen entlassener Patienten zu erwarten, bei denen für diagnostische oder therapeutische Zwecke Radionuklide über Trägermoleküle in den Stoffwechsel des Körpers eingebracht wurden. Bei Mikrokügelchen sollten die Radionuklide in den Trägerkügelchen (Harzkügelchen) verbleiben.

Die Verwendung längerlebiger Radionuklide zum Herstellen von Präparaten mit kurzlebigen Radionukliden („Abmelken einer Radionuklid-Kuh“) aber auch die Therapie in separaten Behandlungsräumen (Therapiestationen) führen kaum zu Ableitungen, da die Abwässer aus solchen Einheiten in Sammel tanks aufgefangen werden und Ableitungen erst nach hinreichendem Abklingen stattfinden.

Für die Recherchen wurden folgenden nuklearmedizinisch genutzte Radionuklide als besonders wichtig angesehen:

- Tc-99m, I-131, Lu-177

Jedoch zeigte die Recherche, keine nennenswerten Arbeiten zu Lu-177 im Abwasser, vgl. Kapitel 6. Auch zu anderen, derzeit in klinischen Forschungen genutzten Radionukliden, wie Y-90, Ho-166, Ra-223 finden sich kaum Informationen in der Literatur zu Abwasser (siehe Kapitel 6).

Für die Überwachung des Abwassers ist zu beachten, dass es bei der Produktion der Radionuklide zur Mitproduktion von anderen radioaktiven Isotopen des jeweiligen chemischen Elementes kommen kann, die mit den chemischen Verfahren bei der Herstellung der Präparate nicht abgetrennt werden. Solche längerlebigen Radionuklide sind z.B. Lu-177m, Tc-99 sowie I-129. Sowohl Tc-99 (Halbwertszeit $2,15 \times 10^5$ a) als auch I-129 (Halbwertszeit $1,6 \times 10^7$ a) benötigen spezielle Messverfahren, um auf den Umweltniveau messbar zu sein (Nies et al., 2010).

Das Lu-177 für nuklearmedizinische Anwendungen kann auf zwei Wegen hergestellt werden. Der direkte Herstellungsweg basiert auf der Neutronenbestrahlung von Lu-176-Targets und die $^{176}\text{Lu}(n,\gamma)^{177}\text{Lu}$ -Reaktion. Bei dieser Herstellung enthält das Präparat das längerlebige Lu-177m ($T_{1/2} = 160$ d). Wird das Lu-177 über die Reaktion $^{176}\text{Yb}(n,\gamma)^{177}\text{Yb} \rightarrow ^{177}\text{Lu}$ hergestellt, entsteht kein Lu-177m, es ist eine chemische Trennung von Lu-177 von den Yb-176-Targetatomen nötig. Für die Überwachung von Abwasser sollten Messungen von Lu-177m berücksichtigt werden.

4.3 Radionuklide in Forschungseinrichtungen und Laboren

Nach Angaben in (BMUV, 2020a) gab es in Deutschland am 31.12.2018 zusätzlich zu den ca. 2500 Genehmigungen für die (nuklearmedizinische) Anwendung von Radionukliden am Menschen ca. 6400 Genehmigungen für Unternehmen und Einrichtungen in Forschung und Lehre sowie Industrie und gewerbliche Wirtschaft zum Umgang mit radioaktiven Stoffen. Ein Großteil dieser Genehmigungen lässt den Umgang mit offenen radioaktiven Stoffen zu (siehe Tabelle 4-2).

Tabelle 4-2: Zahl der Genehmigungen nach § 7 StrlSchV (Stand: 31.12.2018) (Datenquelle: BMU 2020 – Jahresbericht Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung 2018)

Genehmigungsgegenstand	Anwendung am Menschen	Forschung und Lehre ohne Anwendung am Menschen	Industrie, gewerbliche Wirtschaft	Sonstige (z.B. Behörden)
Umgang mit radioaktiven Stoffen	2468	1793	4629	715
Umgang mit ausschließlich umschlossenen radioaktiven Stoffen	727	655	3475	(k.A.)
Umgang mit offenen radioaktiven Stoffen eingeschlossen	1741	1138	1154	(nicht ermittelbar)

Quelle: Autoren

Angaben zu den in Forschung, Lehre oder Industrie als offene Strahlenquellen gehandhabten Radionuklide sind in den Jahresberichten des BMU/BfS nicht aufgeführt. Es ist aber bekannt, dass vor allem in der biotechnologischen und pharmazeutischen Forschung H-3, C-14, P-32, P-33 und S-35 als Stofftracer für das Verhalten der zugehörigen Elemente in molekular-biologischen Prozessen verwendet werden. In Tabelle 4-3 sind Gesamtaktivitäten aufgeführt, die in den jeweiligen Jahren nach Deutschland eingeführt wurden. Für C-14, P-32, P-33, S-35 ist ein direkter Bezug zu den in Forschung und gewerblicher Wirtschaft verwendeten Aktivitäten als gegeben anzunehmen. Beim Tritium ist ein Großteil der Aktivität auf Konsumgüter zurückzuführen, deren Entsorgung zwar zu erhöhten Tritiumkonzentrationen in Deponiesickerwässer führt, aus denen jedoch keine Einträge in das (kommunale) Abwasser zu erwarten sind.

Tabelle 4-3: Aktivität von eingeführten Radionuklide in GBq

Jahr	H-3	C-14	P-32	P-33	S-35	Referenz
2019	11.804		2.089	360,2	342,2	(BMUV, 2020b)
2018	1.812.675	147,1		804,8		(BMUV, 2019)
2017	9.419	475		196,8		(BMU, 2018)
2013	67.494	722	2.331		336	(BMUB, 2014)

Quelle: s. Spalte Referenz

Ein allgemeiner Eintrag der in Tabelle 4-3 genannten Radionuklide in das kommunale Abwasser ist nicht zu erwarten, da die Verwendung der Radionuklide in offener Form mit Genehmigungen verbunden ist. Obwohl die Genehmigungen Einleitungen in das Abwasser begrenzen, sind in Kommunen, in denen Labors oder Forschungseinrichtungen mit den in Tabelle 4-3 genannten Radionukliden umgehen, auch Einträge in das Abwasser möglich.

4.4 Atmosphärischer Fallout durch kerntechnische Unfälle oder Kernwaffenversuche

Aus kerntechnischen Unfällen mit einem großflächigen Fallout können folgende Radionuklide in die Kanalisation und Kläranlagen gelangen (ANoPI, 2022):

- Kr-85, Xe-133, I-131, Te-132, Cs-134, Cs-137, Mo-99, Zr-95, Ru-103, Ru-106, Ba-140, Ce-141, Ce-144, Sr-89, Sr-90, Np-239, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Pu-241, Cm-242.

Die Edelgase Kr-85, Xe-133 sind für die Überwachung von Abwasser wenig relevant. Von den anderen in (ANoPI, 2022) genannten Radionukliden waren nach dem Tschernobyl-Unfall

- kurzzeitig relevant: I-131, Ru-103, Te-132,
- längerdauernd vorhanden: Cs-137, Sr-90, Cs-134.

4.5 Bei den Recherchen besonders beachtete Radionuklide

Die Zahl der Radionuklide, die als Folge der Verwendung in der Medizin, der Forschung oder als Folge eines früheren oder möglichen Fallouts im Abwasser oder Klärschlamm vorkommen können, ist, wie die vorhergehenden Kapitel gezeigt haben, sehr umfangreich. Nach den bisherigen Erfahrungen sind nuklearmedizinische Radionuklide, die in der natürlichen Umwelt verbreitet vorkommenden Fallout-Nuklide Cs-137 und Sr-90 sowie die natürlich vorkommenden Radionuklide H-3, Be-7, Pb-210, Ra-226, U-238 als Indikatoren von besonderer Bedeutung. In Tabelle 4-4 sind diese Radionuklide kurz charakterisiert.

Tabelle 4-4: Für die Recherchen besonders zu beachtende Radionuklide

Radionuklid	Zerfallsmodus	HWZ	Herkunft*
H-3	β^-	12,3 a	Umwelt (natürlich), Kerntechnik, Konsumgüter (bei Deponien)
Be-7		53 d	Umwelt (natürlich)
Tc-99m	β^-	6 h	Medizin
I-131	β^-	8 d	Medizin, Fallout Fukushima
Lu-177	β^-	6,6 d	Medizin
Lu-177m	β^-	160,3 d	Medizin
Sr-90	β^-	28,8 a	Kerntechnik; Umwelt
Cs-137	β^-	30,0 a	Kerntechnik; Umwelt
Pb-210	β^-	22,2 a	NORM
Ra-226	α	1600 a	NORM
U-238	α	4,5 E+9 a	NORM

*Weitere Arten von lokalen oder regionalen Nuklearereignissen, wie sie im 3. Entwurf des Allgemeinen Notfallplans des Bundes nach § 98 des Strahlenschutzgesetzes (ANoPI, (ANoPI, 2022)) aufgeführt werden, werden hier nicht betrachtet.

Quelle: Autoren

5 Rechercheergebnisse zur Radioaktivität im Abwasser und Klärschlamm nach den Unfällen in Tschernobyl und Fukushima

Das folgende Kapitel gibt einen Überblick über die recherchierten Arbeiten und deren Inhalten zu Untersuchungen der radioaktiven Belastung von Klärschlamm nach dem Unfall in Tschernobyl und Fukushima. Eine überblicksartige Darstellung der Arbeiten hebt die wesentlichen Erkenntnisse hervor und stellt diese, sofern sinnvoll und möglich, vergleichend gegenüber. Eine ausführlichere Beschreibung der Inhalte ist Gegenstand der Kapitel 5.2 und 5.3. Das Unterkapitel 5.4 geht kurz auf die internationalen Regelungen und Empfehlungen zum Umgang mit Klärschlamm hinsichtlich der Entsorgung oder Verwertung ein. Es zeigt sich jedoch, dass die Radioaktivität im Klärschlamm eine unterordnete Bedeutung hat.

Insgesamt machen die Ergebnisse deutlich, dass die Klärschlämme auch 30 Jahre nach dem Unfall von Tschernobyl auf die anhaltende Cs-137-Kontamination reagieren und die Messungen als eine Datenbasis für künftige Überwachungsmaßnahmen nach jedem kerntechnischen Unfall dienen können.

Da der Klärschlamm in Japan grundsätzlich getrocknet und im Nachhinein bei 800°C bis 850°C zur Klärschlammasche verbrannt wird, behandelt die Forschung in Japan vordergründig die Aspekte der Radioaktivität in der Klärschlammasche. Die Inhalte einiger Arbeiten werden hier kurz wiedergegeben, wobei der Fokus auf die Informationen zu nicht verbranntem Klärschlamm – insofern beschrieben – gelegt wird. Weiterhin muss bei der Interpretation der Daten und dem Vergleich mit den Daten aus Japan beachtet werden, dass dort die getrennte Kanalisation im Unterschied zur europäischen gemischten Kanalisation üblich ist.

5.1 Zusammenfassende Darstellung der recherchierten Publikationen

Einige Arbeiten werten neben den Radionukliden aus dem Unfall in Tschernobyl (Cs-137/-134 und I-131) auch die Radionuklide aus, welche aus den medizinischen Behandlungen in Krankenhäusern stammen ((Barci-Funel et al., 1993), (Fischer & Yokoo, 2014), (Zannoni et al., 2019)). Sie bringen die beiden Bereiche, qualitativ oder auch quantitativ, in Zusammenhang. Darüber hinaus wird häufig auch der Bezug zu den Kernwaffentests in den 60er Jahren als wesentliche Quelle der radiologischen Belastung genommen und ein Vergleich (zumeist qualitativ) gemacht ((Imhoff et al., 1988), (Zannoni et al., 2019)).

Eine übersichtliche Darstellung der Messwertbasis aus Deutschland liefert Imhoff et al. (1988) und zeigt, dass unmittelbar nach dem Unfall von Tschernobyl die Radioaktivität in den Klärschlämmen weit über den Werten nach den Kernwaffentests lag, insbesondere wegen des hohen Anteils an kurzlebigen Spaltprodukten, wie I-131. Nach zwei Monaten sank die Radioaktivität auf das Niveau der Werte nach den Kernwaffentests. Bis auf einige wenige Ausnahmen sind die gemessenen Werte der Aktivitäten im Klärschlamm mit den Aktivitäten in den obersten Schichten des Bodens vergleichbar. Für die erste Abschätzung der potenziellen radiologischen Belastung von Schlämmen können also Werte der Bodenanalysen des Einzugsgebietes – wenn verfügbar – genutzt werden. In der Arbeit wurde das Verhältnis der Aktivitätskonzentrationen von Cs-134 und Cs-137 im Schlamm von 0,45 für den Monat Mai 1986 berechnet, welches auf den Fallout aus Tschernobyl klar hindeutete. Weil die Radioaktivität in den Klärschlämmen in einem Zeitraum von 3 oder 4 Monaten nach dem Tschernobyl-Unfall auf nur 10% des Ausgangswertes gesunken ist (dies insbesondere wegen der relativ kurzen Dauer des Fallouts für die langlebigen Radionuklide wie Cs-137), kommen

die Autoren zum Schluss, dass eine Ausbringung von Schlämmen nach einer ausreichend kontrollierten Lagerung und Kontrollmessungen möglich wäre.

Die Publikation (Steinhäusler et al., 1988) behandelt die Umweltauswirkungen des Fallouts nach dem Unfall des Kernkraftwerks Tschernobyl im Bundesland Salzburg in Österreich, das die höchsten Cäsium-Bodenablagerungen in Westeuropa infolge des verstärkten Washouts während des Durchzugs der Fallout-Wolke nach dem Unfall in Tschernobyl verzeichnete. Die Arbeit beschreibt die Kontamination der urbanen Strukturen mit deren Oberflächen, bewertet deren rückhaltende Wirkung, die bei raueren Materialien deutlicher ausgeprägt ist, und führt in dem Zusammenhang auch die ermittelten monatlichen Mittelwerte der spezifischen Cs-137-Aktivität im Klärschlamm aus verschiedenen Kläranlagen des Bundeslandes im Zeitraum von Juni 1986 bis März 1987 auf. Die Ergebnisse zeigen, wie sich die Auswaschung (Run-off) und der Fallout sowie Dekontaminationsmaßnahmen in einem Siedlungsgebiet auf die Kontaminationen im Klärschlamm direkt auswirkten. Insgesamt erlaubt die in der Publikation präsentierte Datenlage eher eine qualitative Bewertung.

Barci-Funel et al. (1993) weist nach, dass Klärschlämme empfindliche Indikatoren für die freigesetzten radioaktiven Stoffe nach einem Fallout oder auch aus der Medizin sind. Es wurden nachweisbar Konzentrationen von Cs-134 und Cs-137 in Südfrankreich gemessen, die aus dem Fallout von Tschernobyl stammen. Die Arbeit ermittelte das für den Fallout aus Tschernobyl typische Verhältnis der Aktivitätskonzentrationen von Cs-134 und Cs-137 von 0,45 im Klärschlamm. Zum Vergleich: für den Fallout in Fukushima lag das Verhältnis Cs-134/ Cs-137 bei 0,82 – 0,90 (Kamei-Ishikawa et al., 2013). Die Autoren diskutieren im Weiteren die radiologische Belastung vom Schlamm aus medizinischen Anwendungen und zeigen in einer vergleichenden Darstellung die Beiträge verschiedener Behandlungsarten.

Mit der Modellierung zur Bewertung der radiologischen Belastung der städtischen Oberflächen und folglich des Abwasserbehandlungssystems nach einem Fallout aus Tschernobyl bzw. Fukushima befassen sich die Publikationen (Gallego, 2006) und (Pratama, Yoneda, et al., 2018). Gallego (2006) stellt die Entwicklung des Modells MUD vor, das aus zwei Teilmodellen besteht: das erste beschreibt das Verhalten der Radionuklide in städtischen Gebieten (radiologische Belastung von Oberflächen und deren Versiegelungsgrade), das zweite die Radionuklidmigration in Entwässerungssystemen (gemischte und getrennte Kanalisation) und Kläranlagen sowie im Klärschlamm. Das Modell bildet die Behandlungsstufen der Kläranlage mit Aufteilung der Cs-137-Fraktionen ab. Es wurde mit Hilfe der Messwerte von Cs-137 im Klärschlamm der Kläranlagen in Lund und in Gävle in Schweden infolge des Tschernobyl-Unfalls validiert. Durch eine Sensitivitätsanalyse konnten die Autoren die wesentlichen Parameter der Radionuklidverbreitung identifizieren, die sich je nach Deposition (nass/trocken) unterscheiden. Im Hinblick auf die Kläranlagen und den Klärschlamm ist der Zulauf (vgl. Abbildung 3-1) ein empfindlicher Parameter, der bei trockenem Wetter in die Kläranlage gelangt. Weiterhin sind es die Kapazität der Stauräume in der Kanalisation und der Kd-Wert. Pratama, Yoneda, et al. (2018) haben das Modell MUD an die Verhältnisse nach dem Unfall in Fukushima in Japan angepasst und erweitert und eine Simulation der Verlagerung der Radiocäsiumkontamination in der Kanalisation von drei städtischen Gebieten durchgeführt. Die Arbeit identifizierte die zwei wesentlichen Komponenten der Prozesse im Trennsystem der Region, die zur Kontamination von Klärschlamm beitragen: eine fluktuierende Komponente durch Niederschlagsanteil im Schmutzwassersystem zusammen mit der Infiltration des Fremdwassers und eine Basiskomponente durch die menschlichen Ausscheidungen, die

unabhängig von der Niederschlagsmenge ständig in die Kanalisation gelangen. Darauf baute eine Folgearbeit (Pratama, Takahara, et al., 2018) auf, die eine Methode entwickelte, um aus dem Zufluss von Radiocäsium in die Kläranlage die tägliche Menge des ausgeschiedenen Radiocäsiums pro Person zu berechnen und durch eine Rückwärtsrechnung im biokinetischen Modell die Personendosis abzuschätzen.

Die Arbeit (Kavtukha et al., 1999) aus Weißrussland konkretisiert die Hauptorte der radioaktiven Ablagerungen im Abwasserbehandlungssystem nach dem Unfall in Tschernobyl: die Bereiche der Filtration, Orte mit Schlammablagerung und die Belebungsbecken der biologischen Behandlung. Die Publikation ist leider bis auf den englischen Abstrakt in russischer Sprache erfasst und zurzeit nicht zugänglich.

Ein gelungener Vergleich der Messdaten im Klärschlamm aus Fukushima mit denen aus Mitteleuropa nach Tschernobyl ist in der Publikation (Fischer & Yokoo, 2014) zu finden. Dabei werden unterschiedliche Trends aufgrund des in Japan üblichen Trennsystems festgestellt, welche mögliche Diskrepanzen in den ermittelten Daten generell für solche Vergleiche erklären. Für die routinemäßige Radioisotopenüberwachung zeigen die Autoren, dass die Messdaten von Klärschlamm aus Japan für die Vorhersage von Trends gut anwendbar sind, und zwar insbesondere beim Vergleich mit historischen Daten wie den Emissionen aus Tschernobyl. Die Cs-137-Daten lassen auch einen starken Beitrag der Niederschläge zu Auswaschung und Migration erkennen. Aufgrund der Vergleichbarkeit der Klimasysteme und der Bodennutzung in beiden Regionen (Mitteleuropa und Japan) wäre es sinnvoll, auch die an Verwitterung und Erosion der abgelagerten Radioisotope beteiligten Prozesse sowie die bei der Abwasserbehandlung ablaufenden Prozesse weiter zu untersuchen und zu quantifizieren. Medizinische Isotope wie I-131 können für eine Überwachung von Bedeutung sein, aber es ist wichtig, sie von Emissionen aus den Kernkraftwerken zu unterscheiden. Die in der Publikation (Fischer & Yokoo, 2014) erfassten Messwerte stellen eine gute Datenbasis dar, die im Rahmen der hier durchgeführten Untersuchungen genutzt werden könnte.

Zannoni et al. (2019) weisen nach, dass die Klärschlämme auch 30 Jahre nach dem Unfall von Tschernobyl auf die anhaltende Cs-137-Kontamination reagieren können und die Messungen als Datenbasis für künftige Überwachungsmaßnahmen nach jedem kerntechnischen Unfall dienen. Die Autoren haben mit Hilfe eines hybriden geostatistischen Modells gezeigt, dass die räumliche Variabilität der Cs-137-Aktivität im Klärschlamm mit der Bodenkontamination durch den Fallout von Tschernobyl übereinstimmt. Demnach gibt es unterschiedliche Trends der Cs-137-Aktivitätskonzentration in den Klärschlämmen, welche auf den horizontalen Transport von Cs-137 hindeuten. Die Studie zeigt, dass es zu einer großen Verlagerung von Cs-137 kommt und der Trend in Verbreitung von Cs-137 im Klärschlamm mit den geografischen Merkmalen des Untersuchungsgebiets (wie die Nähe zum Fluss, jährlicher Niederschlag oder die Run-off-Prozesse und die Länge der die jeweilige Kläranlage versorgenden Abwasserkanäle), dem Fallout des Kernkraftwerkunfalls von Tschernobyl und den früheren atmosphärischen Kernwaffentests zusammenhängt. Zu einem ähnlichen Ergebnis kommen Publikationen (Pratama, Takahara, et al., 2018; Pratama, Yoneda, et al., 2018), die sich mit der Modellierung der Verlagerung der Radiocäsiumkontamination in der Kanalisation von drei städtischen Gebieten befassten und den Einfluss der Ingestion von Radionukliden durch die Bevölkerung (insb. Cs-137) auf die radiologische Belastung von Klärschlamm nach dem Kernkraftwerkunfall in Fukushima untersuchten (siehe weiter oben).

(Kamei-Ishikawa et al., 2013) führten Messungen von Cs-134 und Cs-137 sowie von stabilem Cäsium, Rubidium und Kalium in einer Kläranlage nördlich des verunglückten Kernkraftwerkes Fukushima-Daiichi von Juli bis Dezember 2011 durch. Sie verglichen Messwerte aus den Proben von Abwasser am Zulauf und vom geklärten Wasser am Ablauf der Kläranlage sowie Proben von Klärschlamm nach Entwässerung und der Klärschlammasche nach der Verbrennung. Die Werte zeigen, dass etwa 10 % des in die Kläranlage gelangten Cäsium in den Klärschlamm übertragen werden und im Verbrennungsprozess nur eine kleine Menge von Cäsium in die Luft freigesetzt wird. Das Rubidium scheint dabei ein gutes Analogon für Cäsium im Abwasserbehandlungsprozess zu sein. Die Arbeit hat das Verhältnis Cs-134/Cs-137 von 0,82 – 0,90 im Klärschlamm ermittelt (vgl. weiter oben).

Die meisten japanischen Autoren befassen sich im Zusammenhang mit der radiologischen Belastung des Abwassers nach dem Fukushima-Unfall mit der Fragenstellung der Verbrennung von Klärschlamm und der Klärschlammasche, welche für den spezifischen Umgang in Japan von Bedeutung ist. Einige Teilergebnisse sind für die hier durchzuführenden Untersuchungen relevant. (Kozai et al., 2015) hat Proben der Klärschlammasche auf die Anreicherung von ggf. vorhandener Radioaktivität im Zuge der Klärschlammverbrennung analysiert. Hoch aufkonzentriertes Cäsium wurde in Klärschlammaschen nach dem Fukushima-Unfall identifiziert, wobei die Konzentration je nach der Abwasserbehandlungsanlage schwankte. Es wurde im Weiteren die Auswirkung der Behandlungsmethoden von Klärschlammasche auf die Reduktion von Cäsium ermittelt und die mineralischen Phasen als beitragend zur besseren Rückhaltung von Cäsium identifiziert. Eine weitere Arbeit zu dem Thema – (Shiota et al., 2015) – untersuchte das Rückhalten von Cäsium in der Klärschlammasche und in der Asche nach der Verbrennung von Abfall. Ausgehend aus der direkten Speziation von Spurenelementen konnte gezeigt werden, dass die Speziation von Asche aus Abfall und Klärschlamm sich voneinander unterscheiden: während die Abfallasche der CsCl ähnlich ist, ist die Klärschlammasche dem Pollucit⁵ ähnlich. Dadurch wird auch die Löslichkeit von Cäsium beeinflusst.

In (Tsushima, 2017) wurde die Anreicherung von Radionukliden in Abwasserbehandlungsanlagen nach dem Fallout aufgrund des Unfalls im Kernkraftwerk Fukushima untersucht. Das Verhalten radioaktiver Stoffe während der Abwasserbehandlung wurde in vier Kläranlagen in den Regionen Tohoku und Kanto in Ostjapan analysiert und der Mechanismus der Anreicherung radioaktiver Stoffe während des Schlammbehandlungsprozesses von Juli 2011 bis März 2013 untersucht. Die größten Mengen radioaktiven Materials sammeln sich demnach im Belebungsbecken an und werden dann im Laufe des Kondensationsprozesses im konzentrierten Schlamm eingeschlossen. Dies stimmt mit dem Ergebnis aus (Kavtukha et al., 1999) überein, das unter anderem auch das Belebungsbecken der biologischen Behandlung als Anreicherungsort identifizierte. Darüber hinaus wurden numerische Simulationen durchgeführt, um Dosiswerte für eine sichere Handhabung des kontaminierten Klärschlammes abzuleiten. Die Werte lagen unter 1 µSv/h pro Arbeiter.

⁵ Pollucit (IMA-Symbol Pol) ist ein selten vorkommendes Mineral aus der Mineralklasse der „Silikate und Germanate“ mit der chemischen Zusammensetzung $\text{Cs}(\text{Si}_2\text{Al})\text{O}_6 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ und damit chemisch gesehen ein wasserhaltiges Cäsium-Silikat mit zusätzlichen Sauerstoffionen. (<https://www.wikiwand.com/de/Pollucit>)

5.2 Tschernobyl

(Imhoff et al., 1988) Investigations on the concentration of radionuclides in sewage sludges of Ruhrverband wastewater treatment plants 1960 through to 1986

Der Ruhrverband in Nordrhein-Westfalen betreibt seit mehr als hundert Jahren kommunale Kläranlagen. Seit dem Jahr 1960 untersucht der Ruhrverband die überwiegend anaerob ausgefauten Klärschlämme auf Radioaktivität. Auf diese Weise konnte die zusätzliche Belastung durch Fallout und Auswaschung nach dem Reaktorunfall am 26. April 1986 in Tschernobyl genau erfasst werden. Die Publikation beschreibt die Auswirkungen des Tschernobyl-Unfalls auf Flusswasser, Trinkwasser und auf Klärschlämme. Sie präsentiert die Messwerte nach April 1986 sowie die Messwerte in den Jahren 1960 bis 1968, in denen die Kernwaffentests stattfanden und bringt die radiologischen Belastungen dieser Ereignisse in Zusammenhang.

Der Beitrag zur radiologischen Belastung von Abwässern und somit auch des Klärschlammes wurde insbesondere durch die Ausschwemmungsprozesse (Run-off Prozesse) nach den Niederschlägen verursacht. Die Radioaktivität von Klärschlämmen diente als ein Indikator, um das Gefahrenpotenzial des Unfalls insgesamt besser abzuschätzen. Die chronologische Auflistung der Ergebnisse von γ -spektrometrischen Untersuchungen von Schlämmen aus den verschiedenen Anlagen offenbarte, dass die Aktivität von Cs-137 und I-131 in der gleichen Größenordnung lag, wie in der Oberflächenschicht der Böden in der Region. Im Weiteren wurden die Radionuklide des "jungen" Spaltproduktgemisches nachgewiesen: Te-132, I-132, Ru-103, Ru-106/Rh-106, Ba-140, La-140, Cs-134 und Cs-136.

Die Messwerte der spezifischen Aktivität von I-131 und Cs-137 in Klärschlamm in den einzelnen Kläranlagen sind in Tabelle 5-1 (bezogen auf die Trockensubstanz) aufgeführt. Der Akkumulationseffekt von Radionukliden in Schlämmen resultiert laut den Autoren aus Sorption, Ausfällung und Inkorporation durch Mikroorganismen in Abhängigkeit von den chemischen Eigenschaften der jeweiligen Radionuklide. Die große Variation der Messwerte wurde durch die unterschiedlichen topographischen Strukturen und Niederschlagsintensitäten in den Einzugsgebieten begründet. Aus der Chronologie der Messwerte der einzelnen Kläranlagen ist der rasche Rückgang der I-131-Aktivität ersichtlich. Die Autoren weisen darauf hin, dass aufgrund der unterschiedlichen Eigenschaften der Schlämme und unterschiedlicher Verweilzeiten in den einzelnen Schlammfaulbecken die Ergebnisse zwischen den einzelnen Kläranlagen nicht direkt vergleichbar sind.

Der Vergleich der spezifischen Aktivitäten mit den Messungen in den 60er Jahren zeigte, dass über 40% der Proben eine spezifische Aktivität über 3.700 Bq/kg in der Trockensubstanz unmittelbar nach der Einstellung der Atomtests in der Atmosphäre im Jahr 1963 aufwiesen (Restliche- β -Aktivität). Die Höchstwerte erreichten 8.800 Bq/kg im Jahr 1962 und 10.100 Bq/kg im Jahr 1963. Die Werte lagen also in der gleichen Größenordnung wie die Messwerte nach dem Unfall in Tschernobyl. Nach der Einstellung der Atombombentests sanken die spezifischen Aktivitäten von Klärschlämmen aus dem Fallout in den sechziger Jahren, bis in 90% der Proben Werte zwischen 200 und 900 Bq/kg im Jahr 1968 feststellbar waren. Im Zuge des Unfalls von Tschernobyl stiegen die spezifischen Aktivitäten steil an, insbesondere die von I-131-Aktivität. Für eine kurze Zeit wurden die Werte von 1963 deutlich überschritten, und zwar mit Höchstwerten von etwa 60.000 Bq/kg. Nach Juli 1986 sank die Aktivität auf das Niveau von vor den Jahren 1962/1963.

Tabelle 5-1: Messwerte der spezifischen Aktivität von I-131 und Cs-137 in Klärschlammproben

Datum	Kläranlage	Probe	I-131 (Bq/kg)	Cs-137 (Bq/kg)	Aktivität total (Bq/kg)
22.5.1986	Duisburg-Kaßlerfeld	Ausgefauter Schlamm	1600	2700	20,14
30.5.1986			520	2610	12,27
5.6.1986			340	1630	6510
19.6.1986			110	1910	7190
3.7.1986			24	735	2125
30.9.1986			<10	160	340
22.5.1986	Arnsberg	Ausgefauter Schlamm	7180	10,380	59,77
12.6.1986			520	6240	22,06
10.7.1986			<10	3104	7860
25.9.1986			<10	900	1720
22.5.1986	Hagen	Ausgefauter Schlamm	3370	3830	23,28
4.6.1986			710	2720	11,87
18.6.1986			370	4270	14,900
4.7.1986			<10	2812	8312
9.9.1986			<10	1190	2650
27.5.1986	Warstein	Ausgefauter Schlamm	2570	5620	29,94
12.6.1986			1270	5390	23,39
15.7.1986			<10	2031	5761
5.9.1986			<10	1300	2610
28.5.1986	Essen-Burgaltendorf	Ausgefauter Schlamm	2520	6990	32,26
25.6.1986			182	2994	9748
10.7.1986			230	2127	6096
30.9.1986			<10	800	1600
5.6.1986	Meinerzhagen	Ausgefauter Schlamm	1370	6170	28,98
19.6.1986			130	3490	13,240
4.7.1986			27	1452	3855
10.9.1986			<10	1710	3190
10.6.1986	Hattingen	Ausgefauter Schlamm	1034	4850	28,23
12.5.1986	Bochum-Olbachtal	Verbrannter Schlamm (Asche)	1150	4100	64,46
12.5.1986		Zentrifugierter Schlamm	3400	2600	29,800
16.5.1986		Primärschlamm, Belebtschlamm	1920	1180	12,43
19.5.1986		und Faulschlamm 1:1:1	1270	1070	9410
21.5.1986			920	1010	7500

Datum	Kläranlage	Probe	I-131 (Bq/kg)	Cs-137 (Bq/kg)	Aktivität total (Bq/kg)
23.5.1986			1920	3780	25,230
27.5.1986			1380	3390	20,210
30.5.1986			684	2772	14,850
3.6.1986			457	2808	13,680
6.6.1986			290	2580	11,450
3.10.1986			<10	310	670
10.6.1986	Witten	Ausgefauter Schlamm	420	5900	28,12
12.6.1986	Rüthen	Ausgefauter Schlamm	3230	9150	38,03
15.6.1986			154	7163	20,977
24.9.1986			<10	3930	8180

Quelle: adaptiert aus (Imhoff et al., 1988)

(Steinhäusler et al., 1988) Chernobyl and its radiological and socio-economic consequences for the province of Salzburg

Die Publikation diskutiert die Umweltauswirkungen des Fallouts nach dem Unfall des Kernkraftwerks Tschernobyl im Bundesland Salzburg in Österreich. Dabei wird die Kontamination des Klärschlammes mit einbezogen, und zwar die von Juni 1986 bis März 1987 in verschiedenen Kläranlagen des Bundeslandes ermittelten monatlichen Mittelwerte der Cs-137-Konzentration. Salzburg verzeichnete die höchsten Cäsium-Bodenablagerungen in Westeuropa infolge des verstärkten Washouts während des Durchzugs der Fallout-Wolke (2 Bq/m³ für Cs-137 und 5,2 Bq/m³ für I-131). In der Publikation werden die Kontaminationen der urbanen Strukturen wie Straßen, Boden oder Beton und Wände vor und nach der Ausschwemmung (Run-off-Prozesse) infolge von Regen mit einer Dekontaminationswirkung ermittelt. Gammaskpektrometrische Messungen von Boden, Straßenstaub und Seeschlamm wurden durchgeführt im Mai 1987 – also sehr zeitnah nach dem Washout, die Messwerte der Aktivitätskonzentrationen von Te-132, I-131, I-132, Cs-134, Cs-137 und Ru-103 (Einzelp Proben, Angaben in kBq/kg) sind in der Publikation aufgeführt.

Washout verursachte auf den nicht abgeschirmten Oberflächen Cs-137-Aktivitäten von 20 kBq/m² bis 40 kBq/m². Bezogen auf Trockensubstanz lagen die Werte für Cs-137-Konzentrationen im Boden, Straßenstaub und Seeschlamm zwischen 2,1 kBq/kg und 172 kBq/kg. Die Niederschläge im Mai und Juni trugen der Auswaschung von Cs-137-Fractionen aus den städtischen Oberflächen bei, die danach immer wieder kommenden Regenereignisse und Dekontaminationsmaßnahmen wie Reinigung von Straßen und Gehwegen führte zur Belastung des Abwassersystems und der Abwasserbehandlung. Im Klärschlamm wurden erhöhten Werte von Cs-137-Konzentrationen ab den Monaten Juli und August in verschiedenen Kläranlagen festgestellt, welche je nach dem Regenereignis oder der Dekontaminationsmaßnahme schwankten: Juni (1 kBq/kg), Juli (0,55 kBq/kg), August (0,85 kBq/kg), Oktober (0,5 kBq/kg) (Jahr 1986) und März (0,1 kBq/kg) bezogen auf das Jahr 1987.

(Barci-Funel et al., 1993) Simultaneous detection of short-lived Tl-201, Tcm-99 and I-131 isotopes in sewage sludge using low energy photon spectrometry

Die Publikation nennt die Quellen der radiologischen Belastung der Biosphäre: der Hauptbeitrag stammt aus den lokalen Quellen (Wiederaufbereitungsanlagen und Kernkraftwerke), im Weiteren wird Bezug zu den Atomwaffentests und kerntechnischen Unfällen wie Tschernobyl genommen. Einen niedrigeren Beitrag leisten die Krankenhäuser durch Anwendung in der Diagnostik oder Patientenbehandlung – Laborabfälle oder Patientenausscheidungen.

Die Autoren beschreiben die Bestimmung der Aktivitätskonzentration von Radionukliden mit Hilfe der Gamma-Spektrometrie in Schlammproben und führen die Messwerte auf. Die Proben wurden während des Monats Juni ein- bis zweimal pro Woche entnommen; vom 18. bis 22. Juni 1990 fand die Entnahme täglich statt. Die meisten Proben stammten aus der Kläranlage von Nizza. Ende Juni wurde ein neues nuklearmedizinisches Zentrum in nahgelegem St. Laurent du Var eröffnet und daher wurden im Juli einige Proben in der Kläranlage dieser Stadt entnommen. In den Kläranlagen wurden die Primärschlämme (laminares Absetzen) und Sekundärschlämme (nach teilweiser biologischer Reinigung) gemischt und durch Dekantierung aufkonzentriert und dann durch Zugabe von Kalk und Eisenchlorid chemisch behandelt (vgl. Kapitel 3.2). Nach Verdichtung auf 40%-Trockenstoffgehalt erfolgte die Beprobung, ebenso wurden die Proben vom gereinigten Wasser entnommen, die Ergebnisse der Beprobung vom gereinigten Wasser werden in der Publikation allerdings nicht präsentiert. Zum einem wurden in dem Klärschlamm die Radionuklide aus den medizinischen Behandlungen identifiziert – die kurzlebigen Isotope Tl-201, Tc-99m und I-131 – welche zu der Zeit in der Nuklearmedizin verwendet wurden. Zum anderem wurden die Radionuklide Cs-134 und Cs-137 aus dem Fallout von Tschernobyl nachgewiesen.

Im Fall der aus den Krankenhäusern stammenden Radionuklide wurden Konzentrationen im Bereich 1 Bq/g – 250 Bq/g (je nach jeweiligen Radionuklid und Behandlungsart) gemessen. Die Autoren vergleichen die den Patienten verabreichten Aktivitäten mit den Aktivitäten im Schlamm für die einzelnen ermittelten Radionuklide: Verhältnis Output Schlamm/Input. Das Verhältnis beläuft sich bei I-131 auf ca. 1%, bei Tl-201 auf 0,5% bis 1%, bei Tc-99m aufgrund der sehr kurzen Halbwertszeit auf 0,002%. In St Laurent du Var wurden hohen Werte der Aktivitätskonzentrationen in den Schlammproben Ende Juni festgestellt, die mit der Eröffnung des neuen Zentrums für nukleare Medizin korrelierten.

Die Aktivitätskonzentrationen von Cs-134 und Cs-137 lagen bei 3,1 Bq/kg und 18,8 Bq/kg. Das Verhältnis Cs-134/Cs-137, berechnet für den 1. Mai 1986 ergab 0,45, was auf den Fallout aus Tschernobyl hindeutete.

(Kavtukha et al., 1999) Radioecological condition of cleansing structures on the territory contaminated with radionuclides as a result of the accident on the Chernobyl Nuclear Power Station and the problems handling with the forming precipitates of sewage in republic Belarus

Der Artikel wurde nur in der russischen Sprache verfasst, zugänglich ist auf dem Portal der Plattform PubMed lediglich die englische Zusammenfassung. Die Autoren befassten sich mit der Bildung von radioaktiven Ablagerungen im Abwasserbehandlungssystem und haben als die Hauptorte der Akkumulation von Radionukliden die Bereiche der Filtration, Orte mit Schlammablagerung und die Belebtecken der biologischen Behandlung identifiziert. Um die sekundäre Kontamination zu

verhindern, schlagen die Autoren vor, die Komponenten der Reinigungsstufen zu modernisieren und ggf. neue Reinigungstechnologien vor allem im Hinblick auf die Immobilisierung von Cäsium zu entwickeln.

(Gallego, 2006) MUD: a Model to investigate the migration of ^{137}Cs in the Urban environment and Drainage and sewage treatment systems

Die Arbeit stellt das Modell MUD vor, welches die im Klärschlamm aufkonzentrierte Aktivität und die mit dem behandelten oder unbehandelten Abwasser in den Vorfluter eingeleitete Aktivität bewertet. Das Modell wurde mit dem Ziel aufgebaut, die verschiedenen Bereiche der Radionuklidenausbreitung in Zusammenhang zu setzen:

- Die Prozesse, die am Verbleib von Radionukliden in der städtischen Umwelt beteiligt sind;
- Die Radioaktivität, die durch natürliche oder erzwungene Dekontaminierung aus städtischen Gebieten entfernt wird und schließlich über die Entwässerungssysteme in den Vorfluter gelangen kann;
- Die Radioaktivität, die dem in den Kläranlagen anfallenden Klärschlamm schlussendlich zugesetzt wird, dessen unterschiedliche Verwendung eine potenzielle Gefahr darstellen kann.

Das Modell könnte laut Autoren sowohl in der Forschung als auch im Rahmen des MOIRA-Entscheidungshilfesystems⁶ einsetzbar sein. Das Modell besteht aus zwei Teilmodellen, die die oben genannten Bereiche betrachten: Teilmodell für das Verhalten der Radionuklide in städtischen Gebieten (Beschreibung von Oberflächen und deren Versiegelungsgrade) und Teilmodell für die Radionuklidmigration in Entwässerungssystemen und Kläranlagen. Berücksichtigt wird dabei sowohl das Trennsystem als auch die gemischte Kanalisation sowie die einzelnen Stufen der Abwasserbehandlung (erste Behandlungsstufe im Sandfang und Vorklärbecken mit Primärschlamm, zweite Behandlungsstufe im Belebungsbecken mit Sekundär- bzw. Überschussschlamm und dritte Stufe mit Nachklärbecken; vgl. Abbildung 3-1). Das Modell bildet auch die verschiedenen Schlammbehandlungsstufen wie Verdickung, Stabilisierung und Entwässerung ab. MUD ist so konzipiert, dass es auch die Mengen des produzierten Klärschlammes und die Konzentration der Radioaktivität im Klärschlamm als Datenbasis zur Abschätzung der Exposition der Bevölkerung liefert. Es wurden Testberechnungen mit zwei Kontaminationsszenarien nach Tschernobyl in Schweden durchgeführt. Dazu haben die Autoren die Messungen der Konzentrationen von Cs-137 im Abwasser, im behandelten Wasser und im Klärschlamm in den Kläranlagen in Lund und in Gävle genommen und diese mit den Modellberechnungen verglichen. Diese zeigten Unterschiede zwischen den Modellvorhersagen und den beobachteten Ergebnissen innerhalb des Bereichs der experimentellen Unsicherheiten.

Eine Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse der wichtigsten Modellparameter zeigte allerdings, dass einige Parameter einen erheblichen Einfluss auf die Ergebnisse des Modells haben können.

⁶ MOIRA: A Computerised Decision Support System for the Restoration of Radionuclide Contaminated Freshwater Ecosystems: entwickelt im Rahmen des "MOIRA project" (A Model based computerised system for management support to Identify optimal remedial strategies for Restoring radionuclide contaminated Aquatic ecosystems, European Commission contract FI4P-CT96-0036)

Im Teilmodell für städtische Gebiete sind es vordergründig die Parameter für die erste Zeitperiode nach dem Fallout: im Fall der Trockenablagerung die Parameter der Ablagerung auf den Dächern und Pflasterungen, im Fall der Nassdeposition die Niederschlagsintensität und Dauer des ersten Regens im ersten Monat nach dem Fallout. Für das Teilmodell Entwässerungssysteme und Kläranlagen sind folgende Parameter von Bedeutung: der Trockenwetterabfluss (Abfluss, der bei trockenem Wetter in die Kläranlage gelangt), die Kapazität der Stauräume in der Kanalisation und der Kd-Wert.

Daher sehen die Autoren zusätzliche Untersuchungen als erforderlich an, um das Modell in geeigneter Weise zu vereinfachen.

(Fischer & Yokoo, 2014) Preliminary comparison of radioisotope concentration in sewage sludge after the Fukushima and Chernobyl accidents

Die Arbeit vergleicht die Zeitreihen der Messungen von spezifischen Aktivitäten von Radioisotopen (Cs-137 und I-131 in Bq/kg) im Klärschlamm aus Mitteleuropa (Ingolstadt und Wien) nach dem Unfall in Tschernobyl mit den Messdaten der Kläranlage der Stadt Fukushima von Ende April 2011 bis Ende Dezember 2013. Es wurden dabei auch die täglichen Niederschlagsdaten für die Region Fukushima berücksichtigt. Die Klimasysteme und die Bodennutzung in beiden Regionen sind vergleichbar. Die langfristigen Trends für Cs-137 weisen große Ähnlichkeiten zwischen den beiden Unfällen auf: eine höhere Abnahme der Konzentration im Klärschlamm mit anfänglicher Halbwertszeit von einem Jahr und eine spätere langsamere Abnahme der Konzentrationen. Die kurzfristigen Messdaten zeigen den deutlichen Einfluss des Niederschlages, welcher zur steilen Zunahme der Cs-137-Konzentration im Klärschlamm führt. Die absoluten Werte sind in Fukushima deutlich niedriger im Vergleich zu Mitteleuropa nach dem Unfall in Tschernobyl. Die Begründung dafür seien die unterschiedlichen Arten der Schmutzwasserkanalisation. Während in Europa eine gemischte Kanalisation in den meisten Fällen üblich ist, wird das Regenwasser und Abwasser in Fukushima getrennt im Kanalsystem gesammelt.

I-131 wurde in kurzen Zeitintervallen mit relativ konstanten Konzentrationen während der ganzen Messzeitspanne detektiert. Ursächlich ist wahrscheinlich die erheblich höhere Konzentration aufgrund der medizinischen Anwendungen mit I-131.

(Zannoni et al., 2019) Human and environmental factors affecting the activity of I-131 and Cs-137 in urban wastewater: A case study

Die Studie hatte die Aufgabe, die personen- und umweltbezogenen Faktoren zu bestimmen, die die Aktivität von I-131 aus der Nuklearmedizin und von Cs-137 aus dem Fallout im kommunalen Abwasser beeinflussen. Es wurden insgesamt 624 Klärschlammproben aus 17 Kläranlagen in einem großen Gebiet in Norditalien (ca. 2.000 km²) zwischen den Jahren 2012 und 2017 gesammelt und mit hochauflösender Gamma-Spektrometrie analysiert. Zusätzlich wurden auch die Konzentrationen von Be-7, K-40, Co-60, Ga-67, In-111, I-125, Cs-134, Ir-192, Tl-201 ermittelt. Mit 56% ist I-131 das am meisten detektierte Radionuklid, welches auch eine hohe Variabilität zeigte. Die Häufigkeit des Nachweises korrelierte signifikant mit der Bevölkerungsdichte und war negativ korreliert mit der spezifischen Aktivität in Klärschlammproben, weil größere Anlagen durch ein höheres Schlammalter gekennzeichnet sind. Trotz des häufigen Vorkommens von I-131 war die Aktivität in weniger als 0,5% der Fälle arbeitssicherheitsrelevant. Das Cs-137 wurde in 35% der Proben identifiziert und die

Aktivität zeigte eine hohe Korrelation mit dem mittleren jährlichen Niederschlag und der Aktivität natürlicher Radionuklide wie Be-7 und K-40.

Im Weiteren wurde ein hybrides geostatistisches Modell eingesetzt, um zu zeigen, inwiefern die räumliche Variabilität des aus den Klärschlammproben geschätzten räumlichen Musters der Cs-137-Aktivität (1,1 Bq/kg – 6,0 Bq/kg) mit der Bodenkontamination durch den Fallout von Tschernobyl übereinstimmt. Die Autoren der Studie konnten nachweisen, dass die unterschiedlichen Trends der spezifischen Cs-137-Aktivität in den Klärschlämmen auf den horizontalen Transport von Cs-137 hindeuten, wobei die folgenden geografischen und anderen Faktoren relevant sind: die Nähe zum Fluss, jährlicher Niederschlag, Aktivitätskonzentration im Oberboden in der untersuchten Region, Ausschwemmung (Run-off) und die Länge der die jeweilige Kläranlage versorgenden Abwasserkanäle. Im Untersuchungszeitraum (2012-2017) wurde eine abnehmende spezifische Aktivität von Cs-137 in Proben aus dem nördlichen Sektor und leicht steigende spezifische Aktivität von Cs-137 in Proben aus dem südlichen Sektor des Untersuchungsgebiets beobachtet. Die Studie weist daher auf die Möglichkeit hin, dass es zu einer großen Verlagerung von Cs-137 kommt und der zeitliche Trend in der Verbreitung von Cs-137 im Klärschlamm mit den geografischen Merkmalen des Untersuchungsgebiets, dem Fallout des Kernkraftwerkunfalls von Tschernobyl und den früheren atmosphärischen Kernwaffentests zusammenhängt.

5.3 Fukushima

(Kamei-Ishikawa et al., 2013) Fate of radiocesium in sewage treatment process released by the nuclear accident at Fukushima

Die Autoren haben Messungen von Cs-134 und Cs-137 sowie von stabilem Cäsium, Rubidium und Kalium von Juli bis Dezember 2011 in der Kläranlage Tonan, 280 km nördlich des verunglückten Kernkraftwerkes Fukushima-Daiichi, durchgeführt. Dazu haben sie Proben von Abwasser am Zulauf und vom geklärten Wasser am Ablauf der Kläranlage (vgl. Abbildung 3-1) sowie Proben von Klärschlamm nach Entwässerung und der Klärschlammmasche nach der Verbrennung entnommen. Die Proben wurden vor der Messung auf 105°C getrocknet. Die Messwerte der Konzentrationen von Cs-134 und Cs-137 in Klärschlamm zeigen einen mit der Zeit absteigenden Trend, wobei die in der Klärschlammmasche zum Anfang deutlich höher liegen (um 1.200 Bq/kg in Klärschlammmasche und um 250 Bq/kg in Klärschlamm). Das Verhältnis Cs-134/ Cs-137 lag bei 0,82 – 0,90, zu ähnlichen Ergebnissen kamen auch Messungen im Boden oder im Oberflächenwasser an anderen Orten von Japan oder in Litauen. Der Wert unterscheidet sich von dem nach Tschernobyl ermittelten Verhältnis von 0,45 bis 0,5 und deutet auf den Ursprung des Fallouts nach dem Unfall in Fukushima. Die Konzentrationen am Zu- und Ablauf lagen unter der Messgrenze, die Autoren empfehlen daher generell größere Probenvolumina bei der Entnahme am Zu- und Ablauf. Daher wurden die Konzentrationen von stabilem Cäsium gemessen. Diese zeigten keine signifikanten monatlichen Schwankungen, es konnte keine signifikante statistische Differenz (t-Test) am Zu- und Ablauf festgestellt werden. Im Klärschlamm und der Klärschlammmasche wurden die gleichen Konzentrationsniveaus wie in den nach dem Unfall entnommenen Proben gemessen, also waren auch Konzentrationen des stabilen Cäsiums am Zu- und Ablauf unverändert. Die Korrelation der Messungen von stabilem Cäsium, Kalium und Rubidium ergab, dass sich insbesondere Cäsium und Rubidium ähnlich verhalten und daher ist Rubidium ein gutes Analogon für Cäsium im

Abwasserbehandlungsprozess. Des Weiteren wurde der Transfer von Cäsium im Verbrennungsprozess untersucht.

Mit einer Massenbilanz von Cäsium konnten die Autoren zeigen, dass etwa 10% des in die Kläranlage gelangten Cäsiums in den Klärschlamm übertragen wird und, dass das Cäsium im Klärschlamm dann vollständig in der Schlammasche wiedergefunden wird.

(Fischer & Yokoo, 2014) Preliminary comparison of radioisotope concentration in sewage sludge after the Fukushima and Chernobyl accidents

Vergleich der Zeitreihen der Messungen von Konzentrationen von Radioisotopen (Cs-137 und I-131) im Klärschlamm aus Mitteleuropa (Ingolstadt und Wien) nach dem Unfall in Tschernobyl mit den Messdaten der Kläranlage der Stadt Fukushima. Fazit – siehe vorheriges Kapitel 5.2.

(Kozai et al., 2015) Radioactive fallout cesium in sewage sludge ash produced after the Fukushima Daiichi nuclear accident

Fünf Proben von Klärschlammasche aus den Jahren 2011 und 2012 aus drei Kläranlagen wurden hergestellt und untersucht. Der Klärschlamm in Japan wird grundsätzlich getrocknet und im Nachhinein bei 800°C bis 850°C zur Klärschlammasche verbrannt, was zur Anreicherung von ggf. vorhandener Radioaktivität führt. Hoch aufkonzentriertes Cäsium wurde in Klärschlammaschen vieler japanischer Kläranlagen identifiziert, wobei die Konzentration stark schwankte. Das Ziel der Arbeit war es zu ermitteln, welche Behandlungsmethoden von Klärschlammasche zur Reduktion von Cäsium und welche mineralischen Phasen zu einer besseren Rückhaltung von Cäsium führen.

Die mineralischen Bestandteile von Klärschlammasche lassen sich annähernd in zwei Gruppen unterteilen: eine HCl-lösliche Phase, die hauptsächlich aus Phosphaten und Oxiden besteht, und Silikate, einschließlich Quarz, Feldspat und Ton. Beide Phasen enthielten Cs-137. Bis zu 90% des Cs-137 war in der HCl-löslichen Phase enthalten. Unter den HCl-löslichen Teilphasen waren die Fe-haltigen Phasen, bei denen es sich wahrscheinlich um Eisenoxide handelte, hauptsächlich für die Cs-137 Rückhaltung. Die spezifischen Cs-137-Aktivitäten in allen HCl-Behandlungsrückständen lagen unterhalb der radioaktivitätsbezogenen Relevanzschwelle. Dieser Rückstand bestand hauptsächlich aus Silikaten. Die Auslaugungstests haben nachgewiesen, dass Cs-137 im Rückstand sehr stabil in den Silikaten immobilisiert ist.

(Shiota et al., 2015) Cesium Speciation in Dust from Municipal Solid Waste and Sewage Sludge Incineration by Synchrotron Radiation Micro-X-ray Analysis

Die Arbeit untersucht das Verhalten von Cäsium in der Asche nach der Verbrennung von Abfall und Klärschlamm. Mittels der Mikro-Röntgenfluoreszenz (μ -XRF) und Mikro-Röntgenabsorptionsfeinstruktur (μ -XAFS) haben die Autoren die direkte Speziation von Spurenelementen an stabilem Cäsium untersucht. Die Speziation von Asche aus Abfall und Klärschlamm unterscheidet sich voneinander: Während die Speziation von Cäsium in der Abfallasche dem CsCl ähnlich ist, ist die Speziation von Cäsium in der Klärschlammasche dem Polluzit ähnlich. Dadurch wird auch die Löslichkeit von Cäsium beeinflusst.

(Tsushima, 2017) Behavior of radioactive materials and safety stock of contaminated sludge

Die Autoren ermittelten die Anreicherung von Radionukliden in Abwasserbehandlungsanlagen nach dem Fallout aus dem Unfall im Kernkraftwerk Fukushima. Das Verhalten radioaktiver Stoffe während der Abwasserbehandlung wurde in vier Kläranlagen in den Regionen Tohoku und Kanto in Ostjapan analysiert und der Mechanismus der Anreicherung radioaktiver Stoffe während des Schlammbehandlungsprozesses von Juli 2011 bis März 2013 untersucht. Darüber hinaus wurden numerische Simulationen durchgeführt, um eine sichere Handhabung des kontaminierten Klärschlammes abzuleiten. Im Weiteren wurde ein Auflösungsversuch mit kontaminierter Verbrennungsasche und geschmolzener Schlacke aus Klärschlamm durchgeführt, um die Entsorgung von kontaminiertem Klärschlamm auf Deponien besser zu verstehen. Es zeigt sich, dass sich große Mengen radioaktiven Materials im Belebtschlammbecken ansammeln und dieser im Laufe des Kondensationsprozesses im konzentrierten Schlamm eingeschlossen wird. Die numerische Simulation zeigte, dass die Exposition eines Arbeiters in der Nähe des kontaminierten Schlammes unter $1 \mu\text{Sv/h}$ liegt. Im Eluat war die Radioaktivität in 9 von 12 Proben kaum nachweisbar, in den übrigen Proben lag sie bei 0,2% bis 2,7%.

(Pratama, Yoneda, et al., 2018) Modeling and identifying the sources of radiocesium contamination in separate sewerage systems

Die Studie hatte das Ziel, ein erweitertes Kompartimentmodell basierend auf dem MUD-Modell (Gallego, 2006) in Trennsystemen aufzubauen, welches die Radionuklidmigration in der städtischen Umgebung und dem Abwassersystem der Region Fukushima abbildet. Zur Validierung des Modells wurden Messungen der zeitabhängigen Konzentrationen (Tageswerte) von Cäsium im Klärschlamm in Verbindung mit meteorologischen und demografischen Daten sowie Daten über die Aufnahme von Cäsium mit der Nahrung genommen. Die Analyse der Zusammenhänge der Daten ergab, dass die Hauptverursacher der radiologischen Belastung in einem Trennsystem der Niederschlagsanteil im Schmutzwassersystem und die Infiltration des Fremdwassers sowie die menschlichen Ausscheidungen sind. Die Auswertung der Konzentrationen von Cäsium im entwässerten Schlamm identifizierte zwei wesentliche Komponenten: eine fluktuierende Komponente, die stark mit der Niederschlagshöhe korreliert, und eine Basiskomponente, die unabhängig von der Niederschlagsmenge kontinuierlich in die Kanalisation gelangt. Die erste korreliert mit der Niederschlagshöhe und bildet den Ausschwemmungsprozess (Run-off-Prozess) auf den Oberflächen ab, die zweite entspricht den menschlichen Ausscheidungen durch die radiologische Exposition. Das erweiterte Modell sollte diese zwei Komponenten widerspiegeln.

Das Modell MUD von ((Gallego, 2006), siehe vorheriges Kapitel 5.2) wurde folgendermaßen erweitert: Das Teilmodell für städtische Gebiete um 5 Kompartimente, die die Oberflächen von Boden, Bäumen, Pflasterung, Dächern und Wänden beschreiben. Die trockene und nasse Deposition auf diesen Oberflächen mit der Rückhaltung und dem mobilen Anteil stellt die Anfangsbedingung dar. Weitere drei Kompartimente beschreiben die Vorgänge in dem Drainagesystem, der Kanalisation und die menschlichen Ausscheidungen. Das Teilmodell für Entwässerungssysteme und Kläranlagen beschreibt schematisch die Behandlungsstufen der Kläranlage: Sedimentation, Belüftung und Belebungsbecken, sekundäre Reinigung (Nachklärbecken) und Schlammbehandlung. Entlang dieser Kompartimente erfolgt der Transfer von Cs-134 und Cs-137.

Mit dem erweiterten Modell wurde die Simulation der Verlagerung der Radiocäsiumkontamination in der Kanalisation von drei städtischen Gebieten in der Präfektur Fukushima durchgeführt und die Menge von radioaktivem Schlamm abgeschätzt, und zwar durch die Berechnung der Anzahl der Monate, in denen eine Kläranlage Schlämme mit Radiocäsium-Konzentrationen von mehr als 100 Bq/kg (über dem Freigabewert) produzierte. Die erste Validierung zeigte eine gute Übereinstimmung mit den gemessenen Daten. Die Simulationen ergaben, dass in den Kläranlagen in Fukushima und den benachbarten Koriyama und Nihonmatsu insgesamt etwa 1.750.000 m³ radioaktiver Schlamm anfielen, was gut mit den tatsächlichen Daten übereinstimmt. Weitere Validierungsphasen und Modell- bzw. Parameteranpassungen sind geplant.

(Pratama, Takahara, et al., 2018) Estimation of radiocesium dietary intake from time series data of radiocesium concentrations in sewer sludge

Die Publikation ist eine Folgestudie von (Pratama, Yoneda, et al., 2018). Das Ziel war, die Ingestion von Radionukliden durch die Bevölkerung ausgehend von der radiologischen Kontamination von Klärschlamm zu ermitteln. Die Autoren der Studie entwickelten eine Methode zur Abschätzung der Aufnahme von Radionukliden (Cs-134 und Cs-137), die auf den zeitabhängigen Konzentrationen von Radiocäsium im Klärschlamm basiert. Die Methode besteht aus drei Schritten: Trennung von Nass- und Trockenwetterdaten, Massenbilanz der Kläranlage und Entwicklung eines reversen biokinetischen Modells. In dem Modell werden die in Klärschlamm enthaltenen Radionuklide mit den über die Nahrung aufgenommenen Radionukliden in Zusammenhang gesetzt. Die Autoren testeten die Methode mit Hilfe der zeitabhängigen Aktivitätskonzentrationen von Cäsium im Klärschlamm der Kläranlage in der Stadt Fukushima.

Weil das Radiocäsium sowohl durch die menschlichen Ausscheidungen als auch durch die Niederschläge und Infiltration in die Kanalisation gelangen, wurden die Trocken- und Nasswetterdaten getrennt analysiert, und zwar in:

- Daten, die vor dem vierten Tag nach dem letzten Regentag aufgenommen wurden, um die Auswirkungen des Regens zu erfassen;
- Daten, die am ersten Tag vor dem Niederschlag aufgenommen wurden und
- Daten, die zwischen den zwei genannten Kriterien liegen.

Die Arbeit stellt die Massenbilanz im Modell mit folgenden Komponenten der Abwasserbehandlung dar: Sedimentation, aktivierter Schlamm, Nachklärbecken mit Ausgang von Schlamm zur Entwässerung und Rücklaufschlamm sowie Chlorierung (vgl. Abbildung 3-1). Des Weiteren wird ein biokinetisches Modell der Radionuklidaufnahme und des Transfers im menschlichen Körper vorgestellt.

Um den Zufluss von Radiocäsium in die Kläranlage zu berechnen, wurde eine umgekehrte Berechnung durchgeführt, bei der die Gesamtmenge an Radiocäsium im Schlamm als Input für die Bestimmung der Massenbilanz diente. Aus dem Zufluss des Radiocäsiums in die Kläranlage wurde die tägliche Menge des ausgeschiedenen Radiocäsiums pro Person berechnet. Die Menge des ausgeschiedenen Radiocäsiums pro Person ist also der Radiocäsiumzufluss in die Kläranlage geteilt durch die Anzahl der angeschlossenen Einwohner.

5.4 Eingang in internationale Richtlinien

Die Ergebnisse der früheren Untersuchungen zur Radioaktivität im Klärschlamm in den Jahren nach dem Tschernobyl-Unfall flossen in das Merkblatt (ATV-M267, 1995) ein. Das aktuelle nationale und internationale Regelwerk sieht eher keinen Handlungsbedarf. Die wesentlichen Inhalte der nationalen oder internationalen Richtlinien und Regelwerke sind im Kapitel 2.2.3 aufgeführt. Im Folgenden werden die wichtigsten Punkte zusammengefasst.

Da die europäische Richtlinie (91/271/EWG, 2008) über die Behandlung von kommunalem Abwasser keine Restriktionen hinsichtlich der Radionuklide im Klärschlamm definiert, hat hier eine Kontamination infolge des kerntechnischen Unfalls keine bedeutende Stellung, ebenso ist dies der Fall bei der Richtlinie zur Verwendung von Klärschlamm in der Landwirtschaft (86/278/EWG).

Im Zusammenhang mit den nuklearen Unfällen werden im europäischen Regelwerk prioritär die Höchstwerte an Radioaktivität in Lebens- und Futtermitteln behandelt, dabei spielt die Radioaktivität im Klärschlamm keine Rolle. Die Durchführungsverordnung (EU) 2020/1158 der Kommission (Euratom2016/52, 2016) befasst sich mit den Einfuhrbedingungen für Lebens- und Futtermittel mit Ursprung in Drittländern nach dem Unfall im Kernkraftwerk Tschernobyl.

Die ICRP ((ICRP, 2004) (ICRP, 2019)) fokussiert im Zusammenhang mit Klärschlamm auf die Freisetzung aus dem medizinischen Bereich, die radiologische Belastung von Klärschlamm infolge nuklearer Unfälle wird gegenwärtig nicht widerspiegelt.

Wie die japanischen Richtlinien und Gesetze auf die Situation nach dem Unfall in Fukushima reagierten, lies sich aufgrund der sprachlichen Barrieren nicht vertiefend ermitteln.

5.5 Schlussfolgerungen

Aus den Untersuchungen der radioaktiven Belastungen in Kläranlagen nach dem Unfall in Tschernobyl und Fukushima können für die in diesem Forschungsbericht zu beantwortenden Fragen folgende wesentliche Schlussfolgerungen abgeleitet werden:

- Die wissenschaftlichen Publikationen betrachten zumeist einzelne oder wenige Kläranlagen, da sie vor allem auf die Untersuchung des Verhaltens von Radionukliden in den Anlagen ausgerichtet sind. Die hinsichtlich der Anzahl der Kläranlagen umfassendste Untersuchung im Zusammenhang mit dem zugehörigen Einzugsgebiet ist die von (Zannoni et al., 2019). Diese Untersuchung deckt mit 17 Kläranlagen aus einem ca. 2000 km² großen Gebiet eine Region in Norditalien ab.
- In den zeitlich unmittelbar nach den Unfällen durchgeführten Untersuchungen wurden neben Cs-137 und Cs-134 als kurzlebige Radionuklide Te-132, I-132, Ru-103, Ru-106/Rh-106, Ba-140, La-140 und Cs-136 (Imhoff 1988) bzw. Te-132, I-131, I-132, und Ru-103 (Steinhäusler 1988) detektiert. Diese Spaltprodukte sind in (ANoPI, 2022) als relevant für derartige Ereignisse benannt (siehe Kapitel 4.4). Die ebenfalls in (ANoPI, 2022) genannten kurzlebigen Gammastrahler Mo-99, Zr-95, Ce-141, Ce-144, Sr-89 sind in den ausgewerteten Arbeiten nicht vorzufinden. Es kann mit den hier ausgewerteten Arbeiten nicht bewertet werden, welche Ursachen dafür relevant waren, dass diese Nuklide in Studien bisher nicht berücksichtigt wurden. Einer der Gründe dafür könnte der Überraschungseffekt im Zuge des nuklearen Unfalls von erheblichem Ausmaß und die damalige Unerfahrenheit beim Umgang mit einem solchem Ereignis sein: Die kurzlebigen

Gammastrahler wurden einfach unmittelbar nach dem Unfall nicht gezielt erfasst. So haben die Auswertungen die In jedem Fall muss bei Einträgen durch den Fallout von kerntechnischen Unfällen oder anderen nuklearen Ereignissen das Messprogramm in der Lage sein, kurzlebige Gammastrahler zeitnah zu analysieren.

- Auch im Falle eines Fallouts von Radionukliden aus kerntechnischen Unfällen muss mit dem Eintrag von nuklearmedizinisch genutzten Radionukliden in das Abwasser gerechnet werden. Insbesondere I-131 sollte deshalb in solchen Fällen nicht nur auf den Fallout zurückgeführt werden.
- Das Aktivitätsverhältnis Cs-134/Cs-137 kann auch nach Abklingen der sehr kurzlebigen Radionuklide als Indikator der Herkunft der Radioaktivität im Klärschlamm dienen.
- Der Eintrag langlebiger Radionuklide des Fallouts, die auf Böden abgelagert sind (wie z.B. Cs-137) in Kläranlagen kann durch Niederschläge und den darüber eintretenden Zufluss beeinflusst werden. Ein Indikator für diesen Eintrag könnte Be-7 sein (Zannoni et al., 2019).
- Nach Ergebnissen von (Kamei-Ishikawa et al., 2013) gehen nur ca. 10% des in die Kläranlage gelangenden Cs-137 in den Klärschlamm über. 90% müssten folglich gelöst mit dem gereinigten Abwasser ausgetragen werden.

6 Rechercheergebnisse zur Radioaktivität im Abwasser und Klärschlamm aus medizinischen Anwendungen

Die Recherche zum Verhalten von Radionukliden aus medizinischen Anwendungen umfasst Forschungsarbeiten und Studien ab den 1980ern Jahren, insofern die Ergebnisse der älteren Publikationen im Zusammenhang mit jüngeren Untersuchungen stehen und dort zitiert werden und deren Ergebnisse helfen, bestimmte Phänomene besser zu erklären ((Prichard et al., 1981), (Erlandsson et al., 1989)). Insgesamt repräsentieren die in diesem Kapitel aufgeführten Publikationen das Portfolio verschiedener Messkampagnen, Problemstellungen und Lösungsvorschläge sowie Modellansätze, die den Kenntnisbereich voranbringen. Auch hier gibt es keinen Anspruch auf Vollständigkeit der Recherche. Die Vielfalt der tatsächlich eingesetzten Radionuklide in den medizinischen Anwendungen ist sehr groß, wie zum Beispiel das Kapitel 8.2 deutlich macht.

Die Publikationen sind aufgeteilt in Unterkapitel je nachdem, ob es sich um nationale (Kapitel 6.2) oder internationale Untersuchungen (Kapitel 6.3) handelt. Im Weiteren werden die Arbeiten je nach dem Fokus auf die messtechnischen Ermittlungen (Kapitel 6.3.2) oder Entwicklung neuer Modellansätze (Kapitel 6.3.1) oder verwandte Themenbereiche mit Implikationen zu Radioaktivität im Abwasser und Klärschlamm (Kapitel 6.3.3) zugeordnet.

In den recherchierten Publikationen werden folgende Radionuklide bzw. deren chemische Verbindungen erwähnt: Am meisten untersucht, auch weil in der Medizin am häufigsten angewendet, sind I-131 und Tc-99m, wobei I-131 aufgrund seiner größeren Halbwertszeit und seiner Mobilität im Wasser auch in der Umwelt detektierbar ist und als ein Tracer zur Ermittlung des Radionuklidtransfers in der Umwelt gesehen wird. Weitere häufig untersuchte Radionuklide sind In-111, Ga-67 und I-123. Einige Publikationen befassen sich mit Co-58, Cr-51 oder auch Cs-134 und Cs-137 sowie Ru-106 (zum Teil im Zusammenhang mit kerntechnischen Unfällen). Darüber hinaus werden auch kosmogene Radionuklide wie Be-7 messtechnisch erfasst, um Vergleiche zwischen den unterschiedlichen Mustern der Radionuklidfreisetzungen ins Abwasser sowie radionuklidbezogenem Verhalten innerhalb der Kläranlage herzustellen.

6.1 Zusammenfassende Darstellung der recherchierten Publikationen zu Radionukliden aus medizinischen Anwendungen

Besonders hervorzuheben im gesamten Vergleich ist das Forschungsvorhaben TransAqua ((Fischer et al., 2017), (Hormann & Fischer, 2017)), welches aufbauend auf den Erkenntnissen aus (Fischer et al., 2009) systematisch ein Messprogramm zur Beprobung entlang der Behandlungsstufen der Bremer Kläranlage sowie der zugehörigen Probenaufbereitung und Analytik aufgestellt und mit den Angaben der medizinischen Behandlungen in Zusammenhang gebracht hat. Damit konnte die Partitionierung von Radioiod messtechnisch erfasst werden. Ebenso herausragend im internationalen Vergleich ist das in TransAqua entwickelte Kompartimentmodell zur Betrachtung des Radioiodtransfers vom Zulauf der Kläranlage über einzelne Behandlungsstufen bis hin zum Ablauf. Dabei wurde die Iod-Partitionierung bzw. der Übergang der Aktivität von gelösten zu suspendierten partikulären und kolloidalen Stoffen sowie die Phasentrennung in den Absetzbecken der Kläranlage und im Rücklaufschlamm abgebildet. Das Modell wurde mit Hilfe von Messungen (Zeitreihen) validiert und eine Sensitivitätsanalyse durchgeführt. Die Autoren konnten zeigen, dass während etwa 30% der in Schlammpartikeln enthaltenen Radioiodaktivität im Zulauf an organische Moleküle

gebunden sind, es nach der biologischen Behandlung etwa 90% sind. Dies ist auf die Anreicherung von I-131 an organische Stoffe im Rücklaufschlamm und auf den Transfer von I-131 aus den anorganischen in die organischen Fraktionen zurückzuführen. Letzteres wird höchstwahrscheinlich durch mikrobielle Aktivitäten vermittelt. Im Abfluss dominiert anorganisches und niedermolekulares I-131; die Gesamtaktivitätskonzentration ist auf etwa 50 bis 75% reduziert. Weil das Modell die Partitionierung und Anreicherung von Iod in der partikulären und kolloiden organischen Phase im Rücklaufschlamm berücksichtigt, wird eine entsprechend längere mittlere Aufenthaltsdauer und somit auch deutlicherer Verlust durch den radioaktiven Zerfall berechnet. Dieses Ergebnis entspricht auch der messtechnisch ermittelten Realität.

Eine umfassend angelegte Studie von (Sundell-Bergman et al., 2008), die im Rahmen einer Revision der schwedischen Vorschriften für die Entsorgung klinischer radioaktiver Abfälle durchgeführt wurde, sollte eine detailliertere Modellierung zum Radionuklidtransport in der Kanalisation und zur realistischen Dosisbewertung entwickeln. Die bis dahin eingesetzten Berechnungsverfahren haben zu einer deutlichen Überschätzung der zu erwartenden Dosen geführt. In die Studie wurden die Radionuklide I-123, I-131, Tc-99m, In-111 und Tl-201 miteinbezogen. Die Betrachtung umfasste fünf verschiedene Kläranlagen, die an die größten Krankenhäuser Schwedens angeschlossen sind. Es wurde ein dynamisches Kompartimentmodell LUCIA entwickelt. Das Modell betrachtet die einzelnen Stufen der Abwasserbehandlung (mit zwei Absetzbecken) und unterteilt diese in neun Kompartimente. LUCIA ist insbesondere von Bedeutung, weil es die Unsicherheiten der relevanten Parameter berücksichtigt und mit einer probabilistischen Simulation nicht Einzelwerte, sondern die Wahrscheinlichkeitsverteilungen der Radionuklidkonzentrationen im Klärschlamm und die Folgedosen ermittelt. Das ist bei der Schätzung der Dosis – in diesem Fall der wahrscheinlichen Dosisintervalle – die optimale Vorgehensweise. Darüber hinaus wurde auch die Sensitivitätsanalyse durchgeführt. Mit dem Modell konnte eine realistische Einschätzung der Aktivitätskonzentrationen im Klärschlamm und der externen effektiven Dosen erreicht werden. Weiterhin macht die Studie auf die zentrale Rolle der Kd-Werte bzw. des elementbezogenen Sorptionsverhaltens aufmerksam, dieser Parameter ist gemäß Sensitivitätsanalyse ausschlaggebend für die Expositionswerte. So ist zum Beispiel der Kd-Wert von In-111 mit großen Schwankungen bzw. Unsicherheiten bei der Ermittlung verbunden, was zu Dosisüberschätzungen führen kann.

Die Arbeiten von (Barci-Funel et al., 1993) und (Barquero, Basurto, et al., 2008) sollten mit Hilfe dazu entwickelter Modellansätze in einem Vergleich zeigen, dass die Dosis von Beschäftigten einer Kläranlage aufgrund der Vernachlässigung von Halbwertszeiten um bis zu zwei Größenordnungen überbewertet wird. So sollte der Modellansatz von (Barquero, Agulla, et al., 2008) die Umweltauswirkungen von Verfahren der nuklearmedizinischen Diagnostik und mögliche Dosen der Beschäftigten in Abwasserbehandlungsanlagen abschätzen. Insbesondere war angestrebt, die bisherigen groben Dosisabschätzungen der zuständigen spanischen Institutionen zu verbessern, die ohne Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalls durchgeführt werden. Auch sollte die Notwendigkeit der Abklinglagerung untersucht werden. Die Berechnungen wurden mit jährlich akkumulierten Aktivitäten für Ga-67, I-123, I-131, In-111, Tc-99m und Tl-201 durchgeführt und akkumulierte Dosen ($\mu\text{Sv/a}$) bestimmt. Dabei wurde die Dosis aufgrund des Aufenthaltes in der Nähe des Schlammbehandlungsbeckens berechnet. Der wesentliche Dosisbeitrag kommt vom I-131 und Ga-67 aufgrund der Halbwertszeit und der höheren Dosiskoeffizienten, den geringsten Beitrag lieferte Tc-99m. Im Ergebnis zeigten die Autoren, dass keine Abklingbecken im Krankenhaus erforderlich sind und dass die Vernachlässigung der Halbwertszeiten zu einer erheblichen Dosisüberschätzung führt. Eine parallel durchgeführte Studie von (Barquero, Basurto, et al., 2008)

fokussierte auf die Untersuchungen der Aktivitäten im Abwasser infolge von Freisetzen von I-131 zur Behandlung von Hyperthyreose oder Schilddrüsenkrebs und auf die Dosisbestimmung der Beschäftigten der Kläranlagen. Das dazu entwickelte Modell berücksichtigte die Dynamik des Iodtransfers im menschlichen Körper mit anschließender Freisetzung über Urin ins Abwassersystem bei stationären und ambulanten Patienten. Die Berechnung der Folgedosen für die Angestellten der Abwasserbehandlungsanlage erfolgte mit dem Modellansatz von (Barquero, Agulla, et al., 2008) und schätzte Folgedosen für die Angestellten der Abwasserbehandlungsanlage im Zusammenhang mit Aktivität im Abwasser je nach Typ der Patientenbehandlung.

Die Arbeit von (Chang et al., 2011) ist interessant, da sie ein sehr großes Einzugsgebiet einer südkoreanischen Ballungsregion – der Stadt Daejeon – betrachtet: es sollte der Zusammenhang zwischen dem Gesamtverbrauch der Radiopharmaka in vier Krankenhäusern der Stadt und deren Freisetzung in die vier Abwasserbehandlungssysteme, angeschlossen an eine Multikläranlage (insg. 0,44 Mio. Tonnen Abwasser pro Tag), untersucht werden. Dabei orientierten sich die Autoren an der Datenbasis von (Punt, Wood, et al., 2007) sowie an eigenen Messungen zum Verhalten von I-131 und Tc-99m im Abwasser und im Klärschlamm. Die Arbeit hat die Daten einzelner Patienten erfasst und diese je nach Art der Behandlung, ob stationär oder ambulant, sowie nach Wohnort in Gruppen aufgeteilt. Im Ergebnis wurden die Aktivitätskonzentrationen am Zu- und Ablauf, im entwässerten Klärschlamm sowie im Faulschlamm nach dem anaeroben Faulungsprozess ermittelt. Die Autoren haben ein Vorhersagemodell entwickelt, das eine einfache Input-Output-Annahme der Beziehung zwischen den jeweiligen Patientenbehandlungen und der Konzentration des Urineintrages in jedes Abwasserbehandlungssystem einführt. Das Modell basiert auf den Untersuchungen und Annahmen von (Punt, Wood, et al., 2007) zur prozentualen Verteilung der Radioiod-Freisetzungen zwischen den einzelnen Komponenten des Abwassersystems. Diese vereinfachte Darstellung liefert im Fall eines sehr großen Abwassersystems – wenn Daten zuverlässig erhoben wurden – zufriedenstellende Ergebnisse.

Im Folgenden werden die Inhalte bzw. Ergebnisse der auf messtechnischen Untersuchungen ausgerichteten Arbeiten, wenn möglich und sinnvoll, chronologisch zusammengefasst. Die ältere Arbeit von (Prichard et al., 1981) untersuchte die Verteilung von Iod-131 zwischen dem getrockneten Schlamm und dem behandelten Abwasser und konnte zeigen, dass der Austrag von I-131 im getrockneten Schlamm 23% des gesamten Austrags betragen hat. Die schwedische Studie von (Erlandsson et al., 1989) befasste sich mit der Überwachung von kosmogenem Be-7 sowie Cr-51, Cs-134 und Cs-137 aus der Medizin an Zulauf, Ablauf und im Schlamm der Kläranlage der Stadt Lund. Sie stellte fest, dass die mittlere Verweilzeit des Abwassers in der Kläranlage 1 bis 2 Tage und die des Klärschlammes 3 bis 4 Wochen beträgt. Be-7, Cr-51, Cs-134 und Cs-137 verlassen die Kläranlage mit dem Schlamm mit zwischen 37 und 56% der eingehenden Aktivität. Für Ru-106 und I-131 lagen diese Werte zwischen 6 und 14%.

Stetar et al. (1993) haben in einer kommunalen Kläranlage die Wirksamkeit des Klärungsprozesses untersucht, indem sie Rückhaltung von Co-58, Cs-134 und I-131 ermittelt haben und dabei als einige der Ersten die Rolle der chemischen Verbindungen der hier als Radiotracer definierten Radionuklide Co-58 und Cs-134 (als Chloride) und I-131 (als Natriumiodid NaI) berücksichtigten. Das Abwasser in der Kläranlage in einem ersten Schritt durch Sedimentation und einem zweiten mit Belebtschlamm gereinigt. Die Arbeit konnte im Ergebnis die Fraktionierung in den suspendierten Feststoffen und im Belebtschlamm sowie die radionuklidbezogene Gesamtabbauleistung aufzeigen. Am wenigsten konnte I-131 zurückgehalten werden, was die späteren Untersuchungen auch bestätigen. Die

ermittelte Affinität der Radiotracer zur Fixierung im Belebtschlamm nahm im Verhältnis Co-58 > Cs-134 > I-131 zu.

Einen Zusammenhang zwischen den Messungen der Radioaktivität im Klärschlamm und den Radioiodbehandlungen (I-131 als Iodid) von zwei Patienten im Krankenhauskomplex der University of Michigan untersuchten Martín and Fenner (1997) und haben dazu Dosisberechnungen durchgeführt. Die Autoren haben festgestellt, dass etwa 1,1% des verabreichten Radioiods im Klärschlamm verbleibt und konnten dieses Ergebnis nur mit der These untermauern, dass I-131 die Anlage passiert und verdünnt in das behandelte Abwasser am Ablauf abgegeben wird. Beim Vergleich mit Messungen der Studie in der Oak Ridge Abwasserbehandlungsanlage von (Stetar et al., 1993), zeigt sich, dass 3 bis 5% von I-131 durch die Kläranlage in Oak Ridge entfernt wurden, während der Rest gelöst im Abwasserstrom am Ablauf geblieben ist. Martín and Fenner (1997) weisen darauf hin, dass die Effektivität der Reinigungsleistung vom Typ der Abwasserbehandlungsanlage abhängt und zitieren mehrere Autoren wie weiter oben aufgeführten (Prichard et al., 1981), die zeigten, dass 23% des im Abwasser freigesetzten I-131 im Belebtschlammbecken entfernt wurden, während Erlandsson et al. (1989) im Zusammenhang mit I-131 festgestellt hat, dass die Behandlungsstufen der Sedimentation und biologisch-chemischer Fällung einer Abwasserbehandlungsanlage nur 8% zurückhalten konnten. In dem Zusammenhang machen auch die Autoren Stetar et al. (1993) auf die Iodadsorption durch organisches Material aufmerksam, die ursächlich für die längere Transportzeit zwischen Krankenhaus und Kläranlage im Vergleich mit Abwassertransport ist. Fenner and Martín (1997) haben in deren Folgestudie nachgewiesen, dass die unterschiedlichen chemischen Iod-Verbindungen auch unterschiedliches Transportverhalten bzw. auch Affinität gegenüber dem Klärschlamm aufweisen. Sie haben dabei Natriumiodid NaI und Meta-Iod-Benzylguanidin (MIBG) untersucht und etwa 17% der im Krankenhaus verabreichten MIBG-Aktivität und nur 1,1% der verabreichten NaI-Aktivität im Primärschlamm detektiert. Die größere positive Ladung der MIBG-Form sei auf die Affinität zur Bindung an Klärschlamm zurückzuführen. Die Autoren verglichen auch die radiologische Belastung durch Verbringung von Klärschlamm in der Landwirtschaft mit einer 22-wöchigen Schlammverbrennung im Winter. Radiologische Belastung durch Verbringung ist aufgrund der kurzen Halbwertszeiten von I-131 kaum vorhanden, während die effektiven Äquivalentdosen nach der Verbrennung auf bis zu 1,2 µSv (Personal der Anlage) bzw. 0,06 µSv (Bevölkerung) geschätzt wurden, weil das organisch gebundene I-131 in die Atmosphäre entweichen kann. Die Autoren kommen ähnlich wie Publikation (Stetar et al., 1993) zum Schluss, dass die längere Transportzeit von Radioiod durch die Kanalisation vom Krankenhaus zur Kläranlage viel länger ist als die von normalem Abwasser. Die Begründung dafür sei die Iodabsorption im organischen Material in der Kanalisation.

Die Arbeiten der britischen Environment Agency EA liefern zum einen interessante Ergebnisse im Hinblick auf die Transferverteilung verschiedener Radionuklide während der Passage durch die Abwasserbehandlungsstufen (Punt, Millward, et al., 2007), zum anderen wurde im Zuge einer Anhebung des Grenzwerts für die Entlassungsgenehmigung für I-131 aus dem Royal Marsen Hospital im Südwesten Londons eine umfangreiche radiologischen Bewertung des Rohabwassers während der Abwasserreinigung und im Flusswasser und Sediment unterhalb des Ablaufs der Kläranlage durchgeführt. Es war jedoch nicht möglich, das unterschiedliche Verhalten der chemischen Formen von Iod-131 (NaI und MIBG) dezidiert zu untersuchen. Die Autoren konnten nachweisen, dass mehr als die Hälfte des verabreichten I-131 durch Zerfall oder durch Verbindung mit Feststoffen in der Kanalisation verloren geht, etwa zwei Prozent werden wahrscheinlich in den

entwässerten Schlammkuchen und etwa ein Drittel in den Fluss nach der Abwasserbehandlung eingeleitet (vgl. (Fenner & Martín, 1997)). Es wurde auch die Gammadosis in der Luft der Kläranlage gemessen, diese war jedoch nicht von der Hintergrundbelastung zu unterscheiden. Die Autoren haben die prozentuellen Anteile des verabreichten und in das Abwassersystem freigesetzten I-131 übersichtlich in einem Diagramm dargestellt, welches eine gute Informationsgrundlage liefert und auch in den Modellierungen anderer Autoren wie (Chang et al., 2011) eingesetzt wurde.

Rose et al. (2012) untersuchten das mit I-131 radiologisch belastete Abwasser einer Abwasserbehandlungsanlage in Stony Brook, USA, die an eine regionale Einrichtung zur Behandlung von Schilddrüsenkrebs angeschlossen ist. Sie haben die Abwasserhalbwertszeiten⁷ von Radioiod in der Anlage auf 3 d geschätzt und haben gezeigt, dass die hydraulische Verweilzeit des Abwassers in der Anlage vom Tages- und Wochenregime des anfallenden Abwassers abhängt und zwischen 24 h und 36 h liegen kann. Sie machen auch darauf aufmerksam, dass die Rückführung des Abwassers in den Belebtschlamm zur Aufrechterhaltung der Bakterienpopulationen einer deutlich längeren hydraulischen Verweilzeit in der Anlage beiträgt, das I-131 im Klärschlamm kann zwei Wochen lang nach einer Patientenbehandlung gemessen werden. Die Autoren kommen zum Schluss, dass das meiste I-131, das in die Kläranlage gelangt, zwar zurückgehalten wird aber längerfristig schlussendlich im Abwasser und nicht im Klärschlamm verbleibt und in den Vorfluter freigesetzt wird. So könne das medizinische Radioiod zu Untersuchungen der Abwasserreste in den Oberflächengewässern genutzt werden.

Eine umfangreiche Ermittlung zum Verhalten von I-131, Tc-99m, In-111, Ga-67 und I-123 im Abwasser am Zulauf und Ablauf sowie in Klärschlämmen in sieben städtischen Kläranlagen im Großraum Barcelona haben Mulas et al. (2019) durchgeführt und auch mit der biochemischen Abwasseranalytik in Zusammenhang gebracht. Sie konnten eine starke Variation der Messwerte am Zulauf, Ablauf sowie im Klärschlamm je nach Abwasserbehandlungsanlage nachweisen. Die höchsten Aktivitätskonzentrationen ergaben sich für I-131 und Tc-99m. Das Ergebnis machte deutlich, dass die massive Reduktion der physikochemischen Parameter wie COD oder BOD₅ während der Abwasserbehandlung einen minimalen Einfluss auf die Rückhaltung von Radionukliden hat, die entscheidende Rolle spielen Halbwertszeit und Sorption sowie die rückhaltende Wirkung einzelner Behandlungsstufen. Im Vergleich seien die Betriebsbedingungen mit niedrigerem Klärschlammalter (2-7 Tage) ein Schlüsselfaktor für die Verringerung des physikalischen Zerfalls während der Klärschlammbearbeitungsstufen und führen zu höheren Konzentrationen im festen Endprodukt. Die Autoren machen deutlich, dass die Kläranlage als Rückhaltesystem wirkt und haben auch die radionuklidbezogenen Transferwege entlang der Abwasserbehandlung untersucht. So konnten sie zeigen, dass I-131 im entwässerten Klärschlamm häufiger nachweisbar ist als im deutlich älteren Faulschlamm. I-131; Tc-99m und In-111 können während der Abwasserbehandlung teilweise entfernt werden, neben I-131 kann In-111 ggf. auch zur Bewertung der Konzentrationen im aquatischen Ökosystem genutzt werden. Dank dem Vergleich mehrerer Abwasserbehandlungsanlagen konnte gezeigt werden, dass je nach Größe der Anlage eine unterschiedliche Anzahl Proben zur Iod-Detektion erforderlich ist, je größer die Anlage, desto weniger Proben sind notwendig.

⁷ Mittlere Abwasser-Halbwertszeit ist die Zeit, welche vergeht, bis die Hälfte einer Abwasserkomponente aus einer Kläranlage entfernt wird.

McGowan et al. (2014) haben eine Probenahmekampagne am Ablauf von drei Kläranlagen der Krankenhäuser in Oxford, Sutton und Guildford bewertet und mit den gemessenen Dosisleistungen der Patienten in den Krankenhäusern und der folglich ausgeschiedenen Aktivität in Zusammenhang gebracht. Sie stellten fest, dass bis zu 20% der eingeleiteten Aktivität am Ablauf der Kläranlagen zu finden war und schlussfolgerten, dass dies deutlich unter dem Wert von 80% der damals verwendeten mathematischen Modelle der Environment Agency of United Kingdom lag. Sie empfehlen daher (auch mit Verweis auf (Punt, Wood, et al., 2007)), den Verteilungsanteil von I-131 im Abwasser am Ablauf bei Modellberechnungen auf 20% zu reduzieren. Ähnlich wie andere Autoren (z. B. (Fenner & Martín, 1997)) vermuten sie, dass die Aktivität von I-131 insbesondere durch Ablagerung in Kanalrohren, im Klärschlamm und durch den radioaktiven Zerfall zurückgeht. McGowan et al. (2014) weisen auch auf unterschiedliche Rückhaltungsgrade der Iodverbindungen je nach dem Abwassersystem und der Abwasserbehandlungsanlage hin und empfehlen, immer eine standortbezogene Untersuchung unter Berücksichtigung der angewendeten chemischen Iodverbindung durchzuführen.

Die Arbeit von (Martínez et al., 2019) wird hier aufgeführt, weil die Autoren den Stand der Technik und die Trends auf dem Gebiet des Vorkommens und der Bestimmung von medizinischen Radionukliden bei der Beprobung zusammengefasst haben. Im Fokus standen I-131 und Tc-99m. Die Autoren haben die Auswertungen in Form einer Matrix übersichtsartig dargestellt, diese ist bei der ausführlichen Beschreibung der Arbeit im Kapitel 6.3.2 (s. Tabelle 6-2) aufgeführt.

Mosos et al. (2020) haben die Entwicklung der Aktivitätskonzentration des aus dem Krankenhaus stammenden I-131 am Zulauf und in den einzelnen Behandlungsstufen der Kläranlage in Bogota, Kolumbien, untersucht. Die Autoren haben dazu Proben aus dem Zulauf bzw. dem Rohabwasser am Feinrechen, dem Fett- und Sandabscheider, aus dem gereinigten Abwasser (Ablauf) sowie dem getrockneten Faulschlamm entnommen und die Aktivitäten gemessen und eine Massenbilanz durchgeführt. Sie kamen zum Schluss, dass I-131 zwar eine größere Affinität zu organischen Stoffen aufweist und sich im Klärschlamm anreichert (höchste Aktivitätskonzentrationen der Teilströme), der Faulungsprozess sei aber für das Abklingen lang genug und der Einsatz als Dünger mit keinem wesentlichen Bestrahlungsrisiko verbunden. Im Vergleich mit den anderen hier genannten Autoren sehen jedoch Mosos et al. (2020) die radiologische Belastung der Umwelt durch das im behandelten Abwasser beinhaltete I-131 viel kritischer und empfehlen die Installation von Lagertanks zum Abklingen, um der radiologischen Belastung der Gewässer vorzubeugen.

Am Ende des Kapitels 6.3.2 werden vollständigshalber Arbeiten aufgeführt, die sich mit der möglichen Exposition von den in der Abwasserentsorgung tätigen Personen aufgrund der Freisetzung aus Krankenhäusern befassen. Weil hier die Aktivität im Klärschlamm jedoch nicht im Vordergrund steht, werden diese Arbeiten nur zum Teil in der vertiefenden Auswertung berücksichtigt.

6.2 Nationale Forschung

(Fischer et al., 2009) Medical radioisotopes in the environment - following the pathway from patient to river sediment

Fischer et al. (2009) haben in einer Kurzstudie gezeigt, wie der Transfer medizinischer Radionuklide über die Abwasserbehandlungskette erfolgt. Während des Untersuchungszeitraums wurden 15

Patienten mit einer durchschnittlichen Restaktivität von 159 MBq pro Patienten aus dem Krankenhaus entlassen. Es wurden Proben aus dem Zufluss, Abfluss und Primärschlamm der zugehörigen Kläranlage über zwei Wochen gesammelt und mittels Gammaskopie untersucht. I-131, Tc-99m sowie in seltenen Fällen auch Sm-153 und I-123 wurden detektiert. Die Werte von I-131 (Krebstherapie) und Tc-99m (Radiodiagnostik) stimmten gut mit den Langzeitdaten derselben Kläranlage überein. Darüber hinaus wurde eine Korrelation zwischen der kosmogenen Be-7-Aktivität und den Niederschlägen festgestellt. Um festzustellen, in welchem Ausmaß eine Kontamination aus der Kläranlage möglich ist, wurden Oberflächensedimente bei Ebbe an beiden Ufern des Flusses – flussaufwärts und flussabwärts – der Kläranlage beprobt. Folgendes Verhalten wurde am Zulauf und Ablauf und im Klärschlamm beobachtet:

- Die Messwerte von I-131 zeigen ein wellenförmiges Muster, dieses wird mit den Schwankungen der Aktivität begründet, die mit den Patienten das Krankenhaus verlässt. Eine Korrelation zwischen den Daten der aus dem städtischen Krankenhaus freigesetzten Aktivität und dem zeitlichen Muster der Konzentration am Zulauf konnte allerdings nicht gefunden werden. Dieses Phänomen erklären die Autoren mit dem unterschiedlichen Iodstoffwechsel bei Patienten mit der Radioiodtherapie und zitieren dazu (SSK, 2004): Patienten mit gutartigen Schilddrüsenerkrankungen weisen eine deutlich höhere Iodaufnahme und biologische Halbwertszeit auf als Patienten, die sich nach einer Schilddrüsenkrebsoperation einer Eliminierungstherapie unterziehen.
- Die Konzentrationen von Tc-99m nahmen am Zulauf an Wochenenden stark ab, weil keine nukleare Diagnostik durchgeführt wird. Die Konzentrationen am Ablauf waren um mehr als eine Größenordnung niedriger, was auf den radioaktiven Zerfall und auf die Ausfällung in Schlamm zurückzuführen ist. Die Autoren bestimmten das Verhältnis der spezifischen Aktivitäten als Folge des radioaktiven Zerfalls und des Eliminationsfaktors von 50% nach (SSK, 1988) während einer Verweilzeit von 24 h zu 1 : 0,031.
- Primärklärschlamm: I-131 und Tc-99m zeigen ein ähnliches zeitliches Muster wie am Zulauf der Kläranlage, auch der starke Rückgang von Tc-99m an den Wochenenden ist sichtbar. Das durchschnittliche Verhältnis Tc-99m/ I-131 steigt vom Zufluss zum Schlamm an, was dem höheren Eliminationsfaktor für Tc-99m von 0,5 (SSK, 1988) entspricht. Zwei weitere Radionuklide zeigen im Primärklärschlamm folgendes Verhalten: die Werte der Aktivitätskonzentrationen von Sm-153 nehmen kontinuierlich mit einer berechneten anlagebezogenen Halbwertszeit von 1,32 d ab. Diese Halbwertszeit ist etwas kürzer als der radioaktive Zerfall von 1,93 d. Dieses Verhalten widerspiegelt laut Autoren die effektive Halbwertszeit der verabreichten Aktivität im Körper des Patienten. Die Daten würden somit konstante Abwassertransportparameter belegen. Die relativ konstanten Werte des kosmogenen Be-7 steigen plötzlich stark an und unterliegen einer Streuung an und korrelieren mit einer Verzögerung von etwa zwei Tagen (die Summe aus der Verweilzeit des Abwassers und der Zeitverzögerung durch die Zusammenführung der Zufluss Proben) mit den Niederschlagsdaten.
- Faulschlamm: die Langzeitdaten von I-131 ab dem Jahr 2000 korrespondieren mit den aktuellen Daten und folgen einem ähnlichen Muster wie die Daten am Ablauf. Die Aktivitätskonzentrationen von Tc-99m liegen um eine oder mehrere Größenordnungen niedriger gegenüber dem Primärschlamm, was durch das höhere Faulschlammalter erklärbar ist.

- Im Sediment war nur I-131 detektierbar, die Aktivitätskonzentrationen nehmen monoton mit dem Abstrom des Flusses ab und stimmen mit der Kläranlage als Hauptquelle von I-131 überein.

Die durchgeführten Messungen lieferten eine große Menge an Daten und waren zumeist auch in guter Übereinstimmung mit der Literatur ((SSK, 1988), (SSK, 2004)). Das betraf vor allem Langzeitgleichgewichte oder gemittelte Daten. Die Interpretation der Kurzzeitdaten ist schwieriger, weil die Schwankungen der gemessenen Aktivitätswerte von vielen Parametern abhängen. Die Autoren empfehlen eine Studie, welche detailliertere Patientendaten (Behandlung von gutartigen Befunden oder von Krebs), Transportzeiten im Abwassersystem sowie Verweilzeiten in den verschiedenen Kompartimenten der Kläranlage berücksichtigen würde. Die Methode erfasst im Ergebnis gut den Radionuklidtransfer vom Patienten über den gesamten Prozess der Abwasserbehandlung bis hin zu den Gewässern, die das behandelte Abwasser am Ablauf der Kläranlage aufnehmen.

6.2.1 Projekt TransAqua und Publikationen

Im Arbeitspaket 1.4 des Projektes TransAqua (Fischer et al., 2017) sollten für ausgewählte Radionuklide experimentelle Untersuchungen zu deren Partitionierung in Kläranlagen durchgeführt und entsprechende Modelle entwickelt werden. Es war das Ziel, das Verhalten von I-131 und Cs-137 aus kerntechnischen Unfällen zu ermitteln, indem diese Radionuklide als Tracer genutzt werden, um Stoffflussprozesse innerhalb und außerhalb einer Kläranlage zu untersuchen. Darüber hinaus war Gegenstand der Untersuchungen der Eintrag und die Verteilung von Radionukliden aus der nuklearmedizinischen Diagnostik (I-131 und Tc-99m) innerhalb der Kanalisation und der Kläranlage. Weil das Cs-137 im Ablauf der Vorklärung nicht mehr nachgewiesen werden konnte und das Tc-99m aufgrund der kurzen Halbwertszeit und des seltenen Einsatzes im Einzugsgebiet des untersuchten Klärwerks Bremen-Seehausen (Betreiber hanseWasser Bremen) kaum nachweisbar war, fokussierten die Untersuchungen auf I-131, und zwar unter der Berücksichtigung der chemischen Form des an die Patienten verabreichen Radioiodids. Das Modell wurde so strukturiert, dass es auf andere Radionuklide erweitert werden kann.

I-131 eignet sich dazu besonders gut, weil es aufgrund seines Einsatzes in der Strahlentherapie von Schilddrüsenerkrankungen häufig in unterschiedlichen Konzentrationen in der Kanalisation und der Kläranlage vorkommt. Das Modell bildet den Übergang der Aktivität von gelösten zu suspendierten partikulären und kolloidalen Stoffen sowie die Phasentrennung in Absetzbecken ab und wurde mit Hilfe von Messungen (Zeitreihen) validiert, und zwar der Aktivitätskonzentration von Zu- und Abfluss. Darüber hinaus wurde die Parametrisierung mit experimentellen Daten an Schlüsselstellen der Anlage umgesetzt. Die Parametrisierung des Modells erlaubt eine Anpassung der Parameter an eine andere Anlage, ebenso ist eine Simulation anderer Radionuklide möglich. Das Modell kann auch zur Extrapolation des Radioiodtransports auf die öffentliche Kanalisation angewendet werden.

Messkampagne

In dem Forschungsvorhaben wurde im Voraus der Aspekt der element- und verbindungsbezogenen Affinität (Sorption) gegenüber dem Feststoff und der Organik in die Untersuchungsplanung einbezogen. So reagiert z. B. Iodid mit organischen Substanzen, insbesondere Huminsäuren wobei die Reaktionen durch mikrobielle Aktivität enzymatisch katalysiert werden. Weil in einem Klärwerk die Konzentrationen an Bakterien sehr hoch sind, insbesondere im Belebtschlamm, wird Radioiodid

im Abwasserkanal und der Kläranlage zum Teil in organisches, partikelgebundenes Iod umgewandelt. Diese Eigenschaft war sowohl für die Probenentnahme und Messanalytik sowie für den Modellaufbau und die Parametrisierung maßgebend. Das Modell wurde unter dem Softwarepaket Matlab/Simulink entwickelt und auf Zeitreihenmessungen im Rahmen des Projektes angewendet. Um die Dynamik der chemischen Verbindung von radioaktivem Iod im Abwasser zu erfassen, wurde eine qualitative Sensitivitätsanalyse durchgeführt und der Einfluss der Kalibrationsparameter analysiert.

Die Probenentnahme erfolgte am Zu- und Ablauf sowie an Orten, wo Rücklaufschlamm anfällt, wobei die spezifische Struktur des Klärwerks berücksichtigt wurde (vgl. Abbildung 6-1): Vorklärbecken, das zum einem in die Kaskadenanlage mit drei Absetzbecken und Nachklärbecken mit Ablauf sowie zum anderem in die parallele Kompaktanlage mit anaerobem Becken und Nachklärbecken mit Ablauf mündet. Die Probenahme berücksichtigte die Partitionierung des Radioiods und die Beschaffenheit des Abwassers, indem die Separation der festen Phase mit Hilfe eines Flockungsmittels durchgeführt wurde und das so entstandene Substrat durch Dekantieren und Zentrifugieren getrennt wurde. Mit diesem Verfahren konnte die Fraktionierung des Iods in Kolloide und höhermolekulare organische Substanzen (mit Aluminiumchlorohydrat extractable iodine, AEI), in kleinere organische Moleküle (residual iodine, RI) sowie anorganische Feststoffe (bentonite extractable iodine, BEI) erreicht und diese Fraktionen getrennt betrachtet werden. Die Messung der Proben erfolgte mit hochauflösender Gamma-spektroskopie. Proben mit Schwebstoffen wurden während der Messzeit gerührt, um eine homogene Aktivitätsverteilung aufrecht zu halten.

Die Auswertung der Verteilung der einzelnen Fraktionen zeigte, dass sich die Fraktionierung stark während des Ablaufs der biologischen Klärung änderte:

- Am Ablauf der Vorklärung dominierte deutlich das an die Anorganik gebundene Radioiod mit Mittelwert von 70% (BEI), die an Schwebstoffe und Kolloide gebundene Fraktion lag bei 8% (AEI) und das an kleinere organische Moleküle gebundene Radioiod war mit großen Unsicherheiten im Durchschnitt mit 20% vertreten (RI).
- Am Ablauf der Kaskade dominierte deutlich das an die Schwebstoffe und Kolloide gebundene Radioiod mit einem Aktivitätsanteil von etwa 85% (AEI), während der anorganisch gebundene Anteil zwischen 8% und 18% schwankte (BEI) und das an kleinere organische Moleküle gebundene Radioiod zwischen 2% und 8% lag. Im Rücklaufschlamm sah die Fraktionierung ähnlich aus: an Schwebstoffe und Kolloide gebundenes Radioiod mit Aktivitätsanteil von etwa 85% (AEI), der anorganisch gebundene Anteil zwischen 8 und 11% (BEI) und das an kleinere organische Moleküle gebundene Radioiod (RI) war mit 5% vertreten.
- Am Ablauf und im Rücklaufschlamm der Kompaktanlage sah die Situation ähnlich wie bei der Kaskade aus: AEI lag bei 80% bis 58%, BEI zwischen 8% und 12% und RI schwankte zwischen 5% und 11%.
- Am Ablauf der Nachklärung der Kaskade und der Kompaktanlage zeigte sich ein deutlich anderes Muster der Fraktionierung, weil der größte Teil der Schwebstoffe zurückgehalten wurde. Hier lagen die Werte von AEI in beiden Fällen mit größerer Unsicherheit zwischen 5% und 20%, von BEI zwischen 30% und 50%. Die RI-Fraktion lag bei 50% bis 60% im Fall der Kaskade und bei über 45% im Fall der Kompaktanlage.

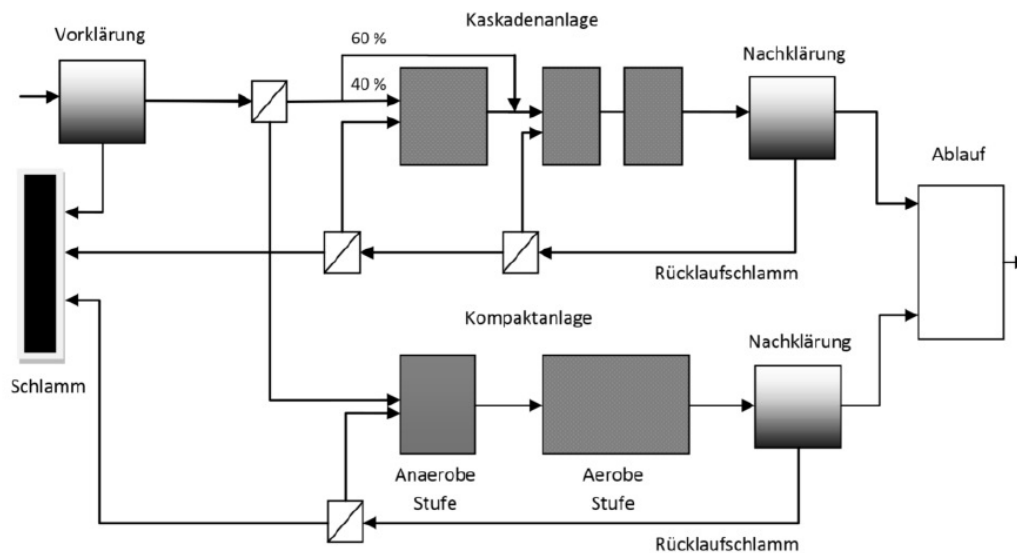
Die Werte der Aktivitätskonzentrationen im Rücklaufschlamm der Kaskade lagen im Schnitt bei 1,5 Bq/l und im Rücklaufschlamm der Kompaktanlage bei 3,80 Bq/l.

Modellentwicklung

Das Modell wurde im Simulink-Paket der Software MATLAB aufgebaut. Die einzelnen Kompartimente des Modells wurden mit Hilfe der Messdaten und der Angaben des Klärwerkbetreibers hanseWasser Bremen zu Flüssen und Volumina parametrisiert. Zur Verifikation wurde eine Messkampagne durchgeführt, wobei über einen Zeitraum von 18 Tagen jeweils eine 24-Stunden-Mischprobe am Zulauf und am Ablauf des Klärwerks entnommen und direkt gemessen wurden. Die Aktivitätskonzentrationen am Zulauf wurden als Eingangsdaten in die Modellierung übernommen. Die Struktur der einzelnen Kompartimente spiegelt die einzelnen Behandlungsstufen des Klärwerks (Abbildung 6-1 wider). In jedem Kompartiment wird die zeitabhängige Aktivität über eine mittlere Verweildauer (Verhältnis zwischen dem Wasserfluss und dem Volumen des Kompartiments) beschrieben und dabei der Zerfall des Radionuklids berücksichtigt. In jedem Kompartiment wurden der Transfer des Radioiods zwischen der gelösten Aktivität (im BEI und RI) und der extrahierbaren Aktivität (AEI) getrennt bilanziert und miteinander verknüpft. Die Beziehung zwischen der gelösten und der extrahierbaren Aktivität wird mit Hilfe des freien Parameters k ausgedrückt, welcher als Reaktionskonstante 1. Ordnung fungiert. Der Parameter wird so eingestellt, dass das Modell die gemessenen Aktivitäten in den extrahierbaren Fraktionen AEI am Ablauf der Kaskade und der Kompaktanlage reproduziert. In den Kompartimenten ohne biologische Aktivität ist k gleich Null. Die Nachklärbecken mit der Sedimentation wurden in drei Kompartimente mit unterschiedlichen Verweildauern entsprechend dem Bewegungsmuster der Schichtströmung bei dem Sedimentationsvorgang unterteilt: jedes Sedimentationsbecken besteht somit aus einer Flockenschicht mit zwei Verweildauern für Wasser (Kompartiment 1) und Schwebstoffe (Kompartiment 2) und einer darüber liegenden Schicht mit einer Verweildauer für beide Fraktionen (Kompartiment 3). Die Berechnung der Verweildauern berücksichtigt die Teilflüsse und -volumina sowie die Schwebstoffkonzentrationen am Zu- und Rücklauf der Sedimentationsbecken. Dabei wurde die Hauptannahme des Modellansatzes formuliert, dass durch den Sedimentationsprozess der Aktivitätsfluss in der AEI-extrahierbaren Fraktion des Rückflussschlammes um einen Faktor α erhöht wird und somit der Aktivitätsfluss am Ablauf vermindert wird. Die restlichen Flüsse ergeben sich dann aus der Bilanz der übrigen Teilstoffflüsse des Nachklärbeckens. Die Aktivitätsflussbilanzen erlauben eine Abschätzung des Faktors α aus den gemessenen Aktivitätsfraktionen (RI, AEI). Alle Teilflüsse fungieren als Eingangsgrößen des jeweiligen Kompartiments.

Durch die Berücksichtigung der Anreicherung von Iod in der partikulären und kolloidalen organischen Phase im Rücklaufschlamm berechnet das Modell eine längere mittlere Aufenthaltsdauer und somit auch den stärkeren Verlust durch den radioaktiven Zerfall, was der Realität entspricht. Die Sensitivitätsanalyse und Berechnungen zeigten eine qualitativ hohe Übereinstimmung zwischen den modellierten und gemessenen Aktivitäten am Ablauf über eine Zeitspanne von über 500 Stunden. Die Simulationen haben die Einschränkung, dass die messtechnische Überwachung der Bereiche wie Rücklaufschlamm oder kleinere Zeitskalen nur eingeschränkt durchführbar sind (z. B. Messzeit der Proben von 24 Stunden).

Abbildung 6-1: Blockdiagramm des Klärwerks Bremen-Seehausen



Quelle: (Fischer et al., 2017)

Die Ergebnisse aus dem Projekt TransAqua zum Verhalten von Iod während der Abwasserbehandlung und der Modellentwicklung wurden in (Hormann & Fischer, 2018) und (Hormann & Fischer, 2017) zusammengefasst und das Kompartimentmodell beschrieben.

6.3 Internationale Forschung

6.3.1 Modellierung des Radionuklidtransfers in der Kläranlage und Dosisabschätzung

(Sundell-Bergman et al., 2008) A new approach to assessment and management of the impact from medical liquid radioactive waste.

Mit der Abschätzung der effektiven Dosis der Bevölkerung aufgrund der Freisetzung von Radionukliden aus den Krankenhäusern setzte sich die Arbeit (Sundell-Bergman et al., 2008) auseinander, welche die radiologische Belastung der Bevölkerung und der Beschäftigten in fünf Abwasserbehandlungsanlagen untersuchte, die die größten Krankenhäuser Schwedens bedienen. Die Studie wurde im Rahmen eines Revisionsverfahrens der schwedischen Vorschriften für die Entsorgung klinischer radioaktiver Abfälle durchgeführt. Im ersten Schritt sollte eine Screening-Studie gemäß der generischen Methodik zur Expositionsabschätzung der (IAEA, 2001) unter sehr konservativen Annahmen zeigen, ob das Screening-Kriterium von $10 \mu\text{Sv/a}$ unterschritten wird. Eine detailliertere Modellierung ist nur dann erforderlich, wenn die ermittelten Strahlendosen das Kriterium nicht erfüllen. Die Betrachtung umfasste fünf verschiedene Kläranlagen, die an die größten Krankenhäuser Schwedens angeschlossen sind. Weil in einigen Fällen $10 \mu\text{Sv/a}$ überschritten wurden, wurde ein dynamisches Kompartimentmodell LUCIA zum Radionuklidtransport in der Kanalisation und zur realistischen Dosisbewertung entwickelt und eingesetzt (Avila et al., 2007). Die Untersuchungen umfassten I-123, I-131, Tc-99m, In-111 und Tl-201.

Das Modell betrachtet die einzelnen Stufen der Abwasserbehandlung (mit zwei Absetzbecken) und unterteilt diese in neun Kompartimente:

1. primäres Absetzbecken/Sandfang (Wasserphase – Radionuklide in gelöster Form und adsorbiert am Schwebstoff),
2. primäres Absetzbecken/Sandfang (ausgefällter Schlamm – Radionuklide im angefallenen Schlamm),
3. Becken für die biologische Behandlung/Belebungsbecken (Wasserphase - Radionuklide in gelöster Form und adsorbiert am Schwebstoff),
4. sekundäres Absetzbecken (Wasserphase - Radionuklide in gelöster Form und adsorbiert am Schwebstoff),
5. sekundäres Absetzbecken (ausgefällter Schlamm – Radionuklide im angefallenen Schlamm)
6. Nachklärbecken (Wasserphase - Radionuklide in gelöster Form und adsorbiert am Schwebstoff),
7. Schlammverdickung,
8. Faulbehälter,
9. Zentrifuge und Schlammspeicher.

Das Modell basiert auf der Massenbilanz innerhalb einzelner Kompartimente, die Parameter werden entweder auf Basis bekannter Werte eingeführt (wie Beckenvolumina oder gemessener Wasserdurchfluss) oder im Fall der Parameter mit Schwankungsbereichen wie Konversionsfaktoren oder Konzentrationswerten als probabilistische Funktionen definiert. Die einzigen radionuklidbezogenen Parameter sind die Verteilungskoeffizienten Kd_{R1} und Kd_{R2} , die die Verteilung der Radionuklide in der Wasserphase und im Schlamm im primären Sedimentationsbecken und im Becken für die biologische Behandlung beschreiben. Dabei wurden Kd -Werte organischer Böden angewendet und auch als probabilistische Funktionen definiert.

Das Modell geht von stationären Zuständen für das Abwasser, die Feststoffe und das organische Material in den einzelnen Kompartimenten aus. Das bedeutet, dass Werte in allen Kompartimenten über die Zeit konstant gehalten werden. Wenn also die Stoffflüsse einer Art in einem Kompartiment theoretisch zu- oder abnehmen sollten, dann nehmen die Stoffflüsse im Modell, die dieses Kompartiment verlassen, proportional zu, so dass die Konzentrationen in den Kompartimenten konstant bleiben. Dies steht im Einklang mit der Funktionsweise von Kläranlagen im normalen Betrieb. Unter besonderen Bedingungen wie Unwetter mit extremem Starkregen kann es vorkommen, dass es nicht möglich ist, z. B. die Pegel in den Becken konstant zu halten. Daher kann das Modell nicht direkt und ohne Änderungen auf solche Situationen angewendet, sondern muss an solche Ereignisse adaptiert werden. Dazu gehört auch die Tatsache, dass die Radionuklidfreisetzungen aus den Krankenhäusern nicht kontinuierlich stattfinden, sondern pulsartig innerhalb weniger Tage in regelmäßigen Abständen der Patientenbehandlungen erfolgen. Für solche Fälle können Simulationen durchgeführt werden, die x-tägige Freisetzungsimpulse z. B. zu Beginn jeden Monats unterstellen.

Weiterhin wurde angenommen, dass die Radionuklide und andere Stoffe, wie Wasser, feste Partikel und organisches Material, die in ein Kompartiment eindringen, sich sofort vollständig im

Kompartiment vermischen und dass die Transferrate der Radionuklide von einem Kompartiment in ein anderes proportional zum Inventar der Radionuklide im „Donor“-Kompartiment ist (Kinetik 1. Ordnung). Im Hinblick auf die Radionuklidverluste aus der Anlage wird unterstellt, dass diese nur über das abgeleitete Wasser und den Schlamm auftreten. Die Verluste über den Luftpfad im Fall von flüchtigen Radionukliden wie I-131 werden konservativ vernachlässigt.

Mit dem Modell LUCIA wurden zunächst Werte der Konzentration im Faulschlamm (Bq/kg Trockengewicht) aus probabilistischen Simulationen geschätzt und in Form der Wahrscheinlichkeitsverteilung (Median, Mittelwert, Standardabweichung und 5% sowie 95%-Perzentil) wiedergegeben. Diese flossen in die Berechnung (probabilistische Simulation) der effektiven Dosen der Angestellten der Kläranlagen (Ergebnis ebenso in Form der Wahrscheinlichkeitsverteilung) ein. Die mit dem Modell LUCIA durchgeführte realistische Schätzung der Aktivitätskonzentrationen im Klärschlamm und der darauf basierenden externen effektiven Dosen lag um eine oder mehrere Größenordnungen unter den in der Screening-Studie ermittelten Werten. Für I-123, I-131, Tc-99m, und Tl-201 waren die Mittel- und Medianwerte unter dem Screening-Kriterium von 10 $\mu\text{Sv/a}$. Für alle diese Radionuklide, mit Ausnahme von I-131, lag auch das 95. Perzentil der Verteilung unterhalb dieser Freigrenze. Im Fall von I-131 liegt das 95. Perzentil nur knapp über 10 $\mu\text{Sv/a}$. Die Ergebnisse für In-111 liegen deutlich über dem Screening-Kriterium und in einigen Fällen über dem Dosisgrenzwert von 100 $\mu\text{Sv/a}$, und zwar auch nach der nachträglichen Verifizierung des Kd-Wertes.

(Barquero, Agulla, et al., 2008) Liquid discharges from the use of radionuclides in medicine (diagnosis)

Die Studie (Barquero, Agulla, et al., 2008) hatte das Ziel, die Umweltauswirkungen von Verfahren der nuklearmedizinischen Diagnostik abzuschätzen und mögliche Dosen der Beschäftigten in Abwasserbehandlungsanlagen zu bestimmen. Dabei sollte der Grenzwert für die klinischen Abfälle von 100 $\mu\text{Sv/a}$ eingehalten werden. Zum Zweck der Diagnose werden bildgebende Verfahren angewendet und den Patienten Radionuklide verabreicht, um die Aufnahme des Radiopharmazeutikums im Körper als Bild darzustellen. Die Aktivität, die nicht in ihren Organen verbleibt, wird über das Harnsystem des Patienten in die Kanalisation ausgeschieden. Die Arbeit sollte die bisherigen groben Dosisabschätzungen ohne Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalls verbessern⁸ und einen Vergleich durchführen sowie die Notwendigkeit der Abklinglagerung untersuchen. Ein Gleichungssystem wurde aufgestellt, welches die momentane und akkumulierte Aktivität (über einen Tag, eine Woche und ein Jahr) abschätzt, die unmittelbar nach jeder Miktion eines Patienten in das Abwassersystem freigesetzt wird. Dabei wurde die jedem Patienten verabreichte radionuklidbezogene Aktivität sowie eine Verweilzeit von zwei Stunden im Körper berücksichtigt. Die Anzahl der Patienten und die Werte der verabreichten Aktivitäten richteten sich nach Angaben der Arbeitsgruppe des Forums für Strahlenschutz in der Krankenhauspraxis (SEFM)⁸ an typischen Werten in spanischen Krankenhäusern aus. Die sich ergebenden effektiven Dosen

⁸ Dosisabschätzungen der nationalen Arbeitsgruppe des Spanish national scientific societies of radiation protection and medical physics und der Arbeitsgruppe „Abwässer“ des Forums für Strahlenschutz in der Krankenhauspraxis (Grupo de efluentes del Foro de Protección Radiológica en el medio hospitalario (SEFM)) - Chapel, M., Ferrer, N., Ramos, L.M., Sanchez, M., 2002.

eines Angestellten der Abwasserbehandlungsanlage wurde mit Hilfe der Software MICROSIELD⁹ berechnet. Dabei wurde angenommen, dass ein Arbeiter 1.500 Stunden pro Jahr in einer Entfernung von 2 m vom Schlammbehandlungsbecken verbleibt, in dem sich die Ableitungen akkumuliert haben. Die Berechnungen wurden mit jährlichen akkumulierten Aktivitäten für Ga-67 (0,033 GBq), I-123 (0,743 GBq), I-131 (2,2 GBq), In-111 (0,169 GBq), Tc-99m (1,847 GBq) und TI-201 (0,033 GBq) durchgeführt und akkumulierte Dosen ($\mu\text{Sv/a}$) bestimmt. Die größte freigesetzte Aktivität ist aufgrund der längeren Halbwertszeit auf I-131 und auf Tc-99m zurückzuführen, weil es das am häufigsten verwendete Radionuklid in einer nuklearmedizinischen Anwendung war. Die berechneten Aktivitäten waren 28- bis 354-mal kleiner im Vergleich mit den SEFM-Schätzungen aufgrund des nicht berücksichtigten radioaktiven Zerfalls. Der wesentliche Dosisbeitrag kommt von I-131 (23,2 $\mu\text{Sv/a}$) und Ga-67 (4,4 $\mu\text{Sv/a}$) aufgrund der Halbwertszeit und der höheren Dosisfaktorenwerte, der geringste Beitrag war vom Tc-99m (0,001 $\mu\text{Sv/a}$). Die ermittelten Dosen liegen unter dem Grenzwert von 100 $\mu\text{Sv/a}$. Die von SEFM ermittelten Dosen erreichten Werte bis zu 644 $\mu\text{Sv/a}$ für I-131. Im Ergebnis kommen die Autoren zum Schluss, dass kein System von Abklingbecken im Krankenhaus erforderlich ist und dass die Vernachlässigung der Halbwertszeiten zu einer erheblichen Dosisüberschätzung führt.

(Barquero, Basurto, et al., 2008) Liquid discharges from patients undergoing 131I treatments

Die zu (Barquero, Agulla, et al., 2008) parallel durchgeführten Untersuchungen von (Barquero, Basurto, et al., 2008) fokussieren auf die Untersuchungen der Aktivitäten im Abwasser infolge von Freisetzungen von I-131 zur Behandlung von Hyperthyreose oder Schilddrüsenkrebsbehandlung und auf die Fragenstellung, welche Dosen sich für Beschäftigte der Kläranlagen daraus ergeben könnten. Es wurden zwei Optionen in einem entwickelten Modellansatz untersucht: direkte Ableitungen (ambulante Behandlungen oder Schilddrüsenkrebsbehandlung) und Ableitungen nach Lagerung in den Abklingbecken (Schilddrüsenkrebsbehandlung). Die verabreichten Aktivitäten lagen zwischen 296 MBq und 555 MBq (Mittelwert 414 MBq) im Fall von Hyperthyreose-Behandlungen, im Fall von Schilddrüsenkrebsbehandlungen lagen die Aktivitäten zwischen 2,96 GBq und 5,55 GBq (Mittelwert 4,14 GBq). Der Untersuchung lagen retrospektive Daten von 244 Hyperthyreose-Behandlungen zugrunde, die im Zeitraum zwischen 1993 und 2000 im Klinikum der Jimenez Diaz Stiftung¹⁰ mit einem Mittelwert von drei Behandlungen pro Woche durchgeführt wurden sowie die im Jahr 2005 im Universitätsklinikum Valladolid behandelten 23 Fälle von Schilddrüsenkrebs (zwei Behandlungen pro Woche). Das Modell berücksichtigte die Dynamik des Iodtransfers im menschlichen Körper mit anschließender Freisetzung über Urin in das Abwassersystem bei den stationären Patienten (mit 3-Monate-Abklingen) und bei den ambulanten Patienten (ohne Abklingen). Dabei wurde die Anzahl der Patienten und der Behandlungen pro Woche berücksichtigt und zeitabhängig berechnet. Auch hier zeigte ein Vergleich mit Berechnungen anderer Autoren, dass viele Publikationen den Zerfall der Radionuklide nicht berücksichtigen und die Dosis um bis zu zwei Größenordnungen überbewerten. Die in das Abwassersystem freigesetzte Aktivität lag im Fall von Hyperthyreosepatienten (ambulant) bei 1,27 GBq und im Fall von Schilddrüsenkrebsbehandlungen bei 15,62 GBq (ambulant) und bei 0,007 GBq (stationär, 3 Monate

⁹ Computer programme for analysing shielding and estimate exposure from gamma radiation.

<https://www.radiationsoftware.com/microshield>.

¹⁰ Universitätsklinikum Valladolid (HCUV) und Jimenez Diaz Stiftung (FJD)

Abklingzeit). Die Berechnung der Folgedosen für die Angestellten der Abwasserbehandlungsanlage erfolgte mit dem gleichen Modellansatz und Annahmen wie in (Barquero, Agulla, et al., 2008). Die Publikation führt den im Modell berechneten Dosisfaktor von $1,05 \times 10^{-08}$ mSv/Bq für I-131 auf. Damit errechnen sich jährliche Dosen von 13,38 µSv/a bei einem Aktivitätseintrag ins Abwasser von 1,274 GBq infolge der Hyperthyreose-Behandlungen (ambulante Patienten) und von 164 µSv/a bei einem Aktivitätseintrag ins Abwasser von 15,62 GBq infolge der Schilddrüsenkrebs-Behandlungen (244 ambulante Patienten). Die Dosis infolge der Schilddrüsenkrebs-Behandlungen bei stationärer Aufnahme der Patienten und Abklingzeit von drei Monaten beläuft sich auf nur 0,07 µSv/a (bezogen auf die Aktivitätseinleitung ins Abwasser von 0,007 GBq).

(Chang et al., 2011) Medically used radionuclides (¹³¹I, ^{99m}Tc) in the urban sewage system: the case of the Daejeon metropolitan city, Korea

Chang et al. (2011) hat unter der Berücksichtigung der Datenbasis von (Punt, Wood, et al., 2007) sowie eigener Messungen das Verhalten von I-131 und Tc-99m im Abwasser und im Klärschlamm untersucht. Um die Beziehung zwischen dem Gesamtverbrauch der Radiopharmaka im Krankenhaus und der Freisetzung der Radionuklide in das städtische System wurde Daejeon, die fünftgrößte Stadt im Zentrum von Südkorea mit vier dortigen Krankenhäusern ausgewählt. Die Abwasserbehandlungsanlage der Stadt Daejeon besteht aus vier Abwasserbehandlungssystemen. Zwei Systeme behandeln 0,14 Mio. m³ Abwasser pro Tag aus zwei Einzugsgebieten und zwei behandeln 0,3 Mio. m³ Abwasser pro Tag aus drei Einzugsgebieten.

Während des Untersuchungszeitraums wurden die Menge des täglichen Verbrauchs von I-131 und Tc-99m in jedem der vier Krankenhäuser und die Aufenthaltsdaten jedes Patienten (ambulant und stationär) erhoben. Die Patienten wurden in zwei Gruppen A und B je nach Wohnort eingeteilt, so dass die Zuordnung zu dem jeweiligen Abwasserbehandlungssystem möglich war. Die Zeit und der Umfang der medizinischen Behandlung mit I-131 und Tc-99m je Krankenhaus wurden kategorisiert und auf Grundlage der Wohnorte der einzelnen Therapiepatienten über einen Zeitraum von etwa einem Monat zusammengefasst. Insgesamt wurden Ausscheidungen von 94 Patienten (47 stationäre und 47 ambulante) ausgewertet. Den Patienten der Gruppe A wurden insgesamt 114,7 GBq (stationär) und 16,7 GBq (ambulant) und den Patienten der Gruppe B insgesamt 74 GBq (stationär) und 17,6 GBq (ambulant) verabreicht¹¹. Der tägliche Eintrag von I-131 und die Gesamtmenge des Abwassers in den vier Abwasserbehandlungssystemen wurde anhand der Wohnadresse des Patienten und der täglichen Betriebsaufzeichnungen der Kläranlage berechnet und zusammengefasst. Aus jedem Abwassersystem wurden Proben aus dem zugeführten Abwasser (Zulauf), dem entwässerten und dem ausgefaulten Schlamm und dem aufbereiteten Abwasser (Ablauf) innerhalb eines Monats genommen. Die Messungen der Aktivitäten wurden zeitnah nach der Probenentnahme mit Hilfe der Gamma-Spektrometrie durchgeführt. Das mobile Tc-99m wurde trotz der kurzen Halbwertszeit am Zufluss und im entwässerten Schlamm unmittelbar detektiert. Im Fall von I-131 haben sich die Konzentrationen am Zu- und Ablauf nur geringfügig verändert. Hohe spezifische Aktivitäten wurden im entwässerten Klärschlamm 12 Stunden nach Abwassereinleitung (über 2.000 Bq/kg) gemessen. Die spezifische Aktivität im Faulschlamm war nach dem anaeroben Faulungsprozess (zur Methanproduktion) und der Entwässerung (insgesamt

¹¹ Keine Angabe zu Tc-99m weil dieses Radionuklid für das Abwasser und den Klärschlamm aufgrund der Zerfallszeiten keine Bedeutung hat.

Dauer von 25-30 Tage) zehnmal kleiner. Diese Reduktion entspricht dem radioaktiven Zerfall über ca. 3 – 4 Halbwertszeiten von I-131. Die Aktivitätskonzentrationen von Tc-99m am Zulauf variierten deutlich aufgrund der unregelmäßigen Freisetzungen aus dem Krankenhaus, der kurzen Halbwertszeit sowie der hohen Mobilität. Das meiste Tc-99m zerfiel noch während der Abwasserbehandlung. Die Aktivitätskonzentration von I-131 im entwässerten Schlamm lag zwischen 1.951 Bq/ kg und 2.410 Bq/kg (Mittelwert 2.186 Bq/ kg) und im Faulschlamm zwischen 203 Bq/ kg und 231 Bq/kg (Mittelwert 217 Bq/kg). Die Aktivitätskonzentration von I-131 im behandelten Abwasser am Ablauf der ersten Abwasserbehandlungsstufe lag zwischen 0,737 Bq/l und 0,876 Bq/l (Mittelwert 0,087 Bq/l) und am Ablauf der zweiten Abwasserbehandlungsstufe zwischen 0,406 Bq/l und 1,49 Bq/l (Mittelwert 0,924 Bq/l).

Die Autoren haben weiterhin ein einfaches Vorhersagemodell entwickelt, welches eine einfache Input-Output-Annahme der Beziehung zwischen der Gesamtmenge der Behandlung pro Patienten und der Konzentration des Urineintrages in jedes Abwasserbehandlungssystem einführt. Das Modell basiert auf den Untersuchungen und Annahmen von (Punt, Wood, et al., 2007) zur prozentualen Verteilung der Iod-Freisetzungen zwischen den einzelnen Komponenten des Abwassersystems (vgl. Abbildung 6-1) und den Vorhersagewerten der (ICRP, 1997), welche die Aktivität (in Bq) im ausgeschiedenen Urin aus der aufgenommenen Aktivität (in Bq) durch die Verabreichung innerhalb der ersten zehn Tage nach der Behandlung abschätzt. Darüber hinaus wurde Folgendes angenommen: die verabreichten Radiopharmaka werden von den Patienten am nächsten Tag nach der Behandlung ausgeschieden; bei stationären Patienten ist die Wirkung aufgrund des Abwassermanagements im Vergleich zu ambulanten Patienten vernachlässigbar, die Distanz zwischen dem Abwasserzulauf und dem Wohnort des Patienten sowie dem Krankenhaus ist gleich. Das Verhältnis der mit Hilfe des Modells geschätzten durchschnittlichen I-131-Aktivität und der durchschnittlichen gemessenen I-131-Aktivität lag im Untersuchungszeitraum bei 0,62 (Modell) und bei 0,82 (gemessen). Das Modell unterschätzt folglich die Ausscheidung der Patienten um etwa 20% bis 30%.

6.3.2 Messungen der Freisetzungen von Radiopharmaka in das Abwassersystem und Dosisabschätzung

(Prichard et al., 1981) Iodine-131 levels in sludge and treated municipal wastewaters near a large medical complex

Prichard et al. (1981) identifizierte Iod-131 in den Gammaskpektren von getrockneten Schlamm- und in konzentrierten Proben am Ablauf aus einer Kläranlage, die an das Gebiet um das Texas Medical Center angeschlossen ist. Die Verteilung von Iod-131 zwischen dem getrockneten Schlamm und dem behandelten Abwasser blieb während des Probenahmezeitraums relativ konstant. Der Zusammenhang zwischen der Einleitung aus der nuklearmedizinischen Anwendung und den Iodkonzentrationen in Schlamm und Abwasser konnte insbesondere aufgrund der unzureichenden klinischen Datenbasis nicht bewertet werden. Die Verteilung von I-131 zwischen dem Schlamm und dem behandelten Abwasser wurde durch die gleichzeitige Entnahme von Proben des getrockneten Schlamms und der Ionenaustauschharzkonzentrate des Ablaufs der Anlage untersucht. Die Aktivitäten von I-131 pro Gramm getrockneten Schlamms und Liter Abwasser wurden dann mit dem Gesamtausstoß an Schlamm sowie Schlamm und Wasser für den jeweiligen Tag multipliziert. Eine

über 11 Tage auf diese Art und Weise durchgeführte Auswertung zeigte, dass der Austrag von I-131 im getrockneten Schlamm 1/4,3 bzw. 23% des gesamten Austrags ausmachte.

(Erlandsson et al., 1989) Calculation of radionuclide ground deposition by means of measurements on sewage sludge

Erlandsson et al. (1989) befasste sich mit der Untersuchung der Konzentrationen mehrerer Radionuklide im Abwasser am Zulauf, Ablauf und im Schlamm der Kläranlage der Stadt Lund in Südschweden. Die mittlere Verweilzeit des Wassers in der Kläranlage beträgt 1 bis 2 Tage, die des Klärschlammes 3 bis 4 Wochen. Die Messungen zeigten, dass bei Be-7, Cr-51, Cs-134 und Cs-137 zwischen 37% und 56 % der eingehenden Aktivität die Anlage mit dem Schlamm verlassen. Für Ru-106 und I-131 lagen diese Werte zwischen 6% und 14%. Die Ablagerung von Be-7 wurde in Lund gemessen und das Verhältnis zwischen der Ablagerung am Boden (Bq/m^2) und der spezifischen Aktivität im Schlamm (Bq/kg Trockengewicht) wurde untersucht und als relativ konstant bei $\sim(0,8 \pm 0,2) \text{ kg/m}^2$ befunden. Bei Messungen an Klärschlamm lag die Nachweisgrenze für die Ablagerung von Be-7 auf dem Boden bei etwa 16 Bq/m^2 . Da bei einer mittleren jährlichen Deposition von etwa $1,0$ bis $6,5 \text{ kBq m}^{-2}$ auf der Erdoberfläche (Kaste et al., 2002) das im Boden akkumulierte Inventar von Be-7 bei etwa 210 Bq/m^2 bis 1370 Bq/m^2 liegt, ist die Nachweisgrenze von 16 Bq/m^2 hinreichend klein, um Be-7 als Indikator zu verwenden.

(Stetar et al., 1993) The Removal of Radioactive Cobalt, Cesium, and Iodine in a Conventional Municipal Wastewater Treatment Plant

Stetar et al. (1993) untersuchten die Rückhaltung von Co-58, Cs-134 und I-131 in einer kommunalen Kläranlage, indem sie Co-58 und Cs-134 (als Chloride) und I-131 (als Natriumiodid NaI) als Radiotracer nutzten. Die Tracer wurden zunächst im Rohabwasser äquilibriert und als Impuls in das Klärsystem eingeleitet. Die Studie wurde in einer großtechnischen Anlage durchgeführt, die als eine erste Behandlungsstufe eine Sedimentation und als zweite Stufen eine Behandlung mit Belebtschlamm enthält. Um die Effizienz der beiden Behandlungsstufen und die Gesamtabbauleistung zu bestimmen, wurden Abwasser- und Klärschlammproben entnommen und analysiert. In ausgewählten Proben wurde die Verteilung der Radiotracer zwischen den festen und flüssigen Phasen des Abwassers und des Klärschlammes während des Behandlungsprozesses bestimmt. Im zugeführten Abwasser waren etwa 10% des Co-58, 7% des Cs-134 und 3% des I-131 mit suspendierten Feststoffen verbunden. Die erste Stufe führte zu einer teilweisen Abscheidung der eingetragenen Schwebstofffraktion mit Entfernungsgraden von 8,1% für Co-58 und 3,0% für Cs-134 sowie von 2% für I-131. Etwa 80% der Radiotracer im Schlamm der Erstbehandlung waren an die Festphase gebunden. Die Affinität der Radiotracer in der Festphase des Belebtschlammes nahm in der Reihenfolge $\text{Co-58} > \text{Cs-134} > \text{I-131}$ zu. Für Co-58 und Cs-134 wurde eine Abbauleistung bei der Zweitbehandlung von 25% bzw. 9,4% festgestellt. Die Abbauleistung der Zweitbehandlung für I-131 wurde auf 2-3% geschätzt. Die Gesamtabbauleistung belief sich für Co-58 auf 31%, Cs-134 auf 12% und für I-131 auf 3-5%. Die restlichen Fraktionen der Radiotracer verblieben in der löslichen Phase des Abwassers und wurden abgeleitet.

(Martín & Fenner, 1997) Radioactivity in municipal sewage and sludge

Martín and Fenner (1997) führten mit Halbleiterdetektoren aus hochreinem Germanium (HPGe) Messungen der Radioaktivität im Klärschlamm der Kläranlage von Ann Arbor, Michigan nach

Radioiodbehandlungen (I-131 als Iodid) von zwei Patienten im Krankenhauskomplex der University of Michigan durch. Sie berechneten anschließend die potenziellen Dosen aufgrund der Freisetzung von I-131 bei der Verbrennung von Klärschlamm. Weil in den USA ein Retentionssystem zum Abklingen von Radionukliden nach der Behandlung in einem Krankenhaus nicht üblich ist, kann eine deutlich höhere Aktivität in das Abwassersystem als z.B. in Deutschland gelangen. Im ersten Schritt führten die Autoren Screening-Messungen des Klärschlammes und des Abwassers am Ablauf der Kläranlage durch, während Patienten mit Schilddrüsenbestrahlung im Krankenhaus waren. Die Aktivitätskonzentrationen von I-131 im Klärschlamm nach den Radioiodtherapien waren gut messbar, während zunächst kein I-131 am Ablauf der Kläranlage identifiziert wurde. Im zweiten Schritt wurden detaillierte Messungen des Primärschlammes aus der Kläranlage durchgeführt, und zwar nachdem zwei Patienten gleichzeitig Radioiodtherapien mit insgesamt 400 mCi (14,8 GBq) Natriumiodid und 48 Stunden später zwei zusätzliche Therapien mit 5,6 GBq und 3 GBq verabreicht worden waren. Ziel war es die Dynamik der Freisetzungen in das Abwasser zu beschreiben, indem die Korrelation zwischen den nach den Therapien freigesetzten Mengen von I-131 und den Radioaktivitätswerten in der Kläranlage untersucht wurde. Die Zeit zwischen der Verabreichung vom Radioiod an die Patienten und ihrer Entlassung lag bei zwei bis drei Tagen, so dass der Eintrag von I-131 in die Kanalisation von kurzer Dauer war. Die effektive Halbwertszeit des Abwassers für I-131 in der Kläranlage wurde auf 1,6 Tage geschätzt. Die Messungen zeigten, dass von den 23,4 GBq des verabreichten I-131 etwa 0,25 GBq, also 1,1% im Primärschlamm verbleiben. Die Autoren konnten nicht erklären, wo die restliche Radioaktivität verbleiben würde und vermuten, dass sie die Anlage passiert und in verdünnten Konzentrationen in das Anlagenablaufwasser abgegeben wird. Kleinere Mengen könnten in die Luft abgegeben und einige in anderen Teilen der Anlage adsorbiert werden. Weiterhin haben die Autoren festgestellt, dass die Transportzeit von I-131 zwischen dem Krankenhaus und der Kläranlage viel länger ist als die eines Abwassers, was aus deren Sicht auf die Absorption von Iod durch organisches Material in den Abwasserleitungen zurückzuführen ist. Die Verweilzeit von I-131 in der Kanalisation war ebenfalls länger. Die Daten über die Konzentration von I-131 im Klärschlamm wurden als Quellterm für die Bestimmung der Emissionen aus der Verbrennungsanlage eingesetzt.

(Fenner & Martín, 1997) Behavior of Na¹³¹I and meta(131I) Iodobenzylguanidine (MIBG) in municipal sewerage

Fenner and Martín (1997) untersuchten in einer Folgestudie von (Martín & Fenner, 1997) das Verhalten von I-131 aus den Radioiodtherapien des Universitätskrankenhauses Ann Arbor im Primärschlamm der städtischen Kläranlage, wobei sie das Verhalten der zwei verschiedenen eingesetzten chemischen Verbindungen Natriumiodid NaI und Meta-Iod-Benzylguanidin (MIBG) berücksichtigten. Das überordnete Ziel der Studie war es, das Verhalten der Ableitungen in der Umwelt sowie die Strahlenbelastung der Arbeiter und der Öffentlichkeit bei der Verbrennung von Schlamm zu ermitteln. Die Untersuchungen von Klärschlamm zeigten, dass etwa 17% der im Krankenhaus verabreichten MIBG-Aktivität und nur 1,1% des NaI im Primärschlamm detektiert wurde. Bei der Verbringung von Klärschlamm in der Landwirtschaft stellt die kurze Halbwertszeit von I-131 kein Problem für die radiologische Belastung dar; bei der Verbrennung in den Wintermonaten kann jedoch das organisch gebundene I-131 in die Atmosphäre entweichen. Die Dosiswerte während der Schlammverbrennung für den maximal exponierten Arbeiter wurden auf 1,7 µSv geschätzt, wobei davon 0,48 µSv auf einen 2-d-Störfall zurückzuführen waren. Die effektiven Äquivalentdosen für einen typischerweise exponierten Arbeiter und eine Person der Bevölkerung

betragen 1,2 µSv bzw. 0,06 µSv (im Fall einer 22-wöchigen Verbrennung mit Freisetzung des gesamten Radioiods im Schlamm). Die Autoren stellten fest, dass die Transportzeit von Radioiod zur Kläranlage viel länger ist als die von normalem Abwasser und erklären dieses Phänomen mit der Iodabsorption im organischen Material in der Kanalisation. Auch die Verweildauer von Radioiod in der Kanalisation scheint länger zu sein als erwartet. Den Nachweis, ob andere radioaktive Stoffe auf die gleiche Weise aufgehalten werden, konnten die Autoren nicht bringen. Das Ergebnis der Studie zeigt aber, dass die chemische Form von Iod bestimmend ist.

(Punt, Millward, et al., 2007) Radionuclide partitioning to sewage sludge - A laboratory investigation and

(Punt, Wood, et al., 2007) Radionuclide discharges to sewer – A field investigation (Science Reports Nb. SC020150 – Part SR1 and SR2)

Die Arbeiten (Punt, Millward, et al., 2007) und (Punt, Wood, et al., 2007) im Auftrag der britischen EA zur Partitionierung von Radionukliden in Klärschlamm und zu Ableitungen von Radionukliden in die Kanalisation hatten die Aufgabe die radiologischen Auswirkungen der genehmigten Ableitungen von radioaktiven Abwässern in die Kanalisation zu untersuchen. Sie befassten sich zum einem mit dem Feststoff-Lösungs-Verhalten ausgewählter Radionuklide - (Br, Ca, Co, Cu, Fe, Ga, I, In, La, Mn, Ni, P, Re (als Analogon für Tc), S, Sr, Th, U, V, and Y) (Punt, Millward, et al., 2007); zum anderen wurden die Ableitungen der Jod-131-Aktivitätskonzentrationen aus einem Krankenhaus untersucht, und zwar seine Verteilung während der Passage aus dem Rohabwasser via der einzelnen Abwasserbehandlungsstufen bis hin zum Klärschlamm (Punt, Wood, et al., 2007). Die Studie (Punt, Wood, et al., 2007) erfasste auch die I-131-Restfreisetzungen ins Flusswasser mit Rückhaltung im Sediment.

Punt, Wood, et al. (2007) nutzten spezielle Laboreinrichtungen und Abwässer aus einer Wohnsiedlung. Dabei wurden die Verteilungsprozesse bewertet, die während des Transports durch die Kanalisation auftreten können und Transfer- bzw. Rückhaltefaktoren abgeleitet:

- der Tracertransfer auf primäre Feststoffe während der primären Ablagerung (der Rückhaltefaktor der primären Ablagerung, PSRF), die mittleren PSRF-Werte wurden über zwei- und fünfstündige Bezugszeiträume gemittelt;
- die Übertragung von Tracer auf Feststoffe während der sekundären (Belebtschlamm-) Behandlung (der Belebtschlamm-Retentionsfaktor, ASRF); Die mittleren ASRF-Werte wurden über drei separate poröse Gefäße gemittelt und die Proben drei, sechs und zehn Tage nach Beginn des Versuchs entnommen.
- der Gesamtschlammrückhaltefaktor (SRF), der in einer typischen Kläranlage erreicht werden könnte, dieser wurde als Kombination der PSRF and ASRF-Werte abgeleitet: $SRF = PSRF + ASRF \times (PSRF \times ASRF)$.

Die ermittelten Werte der PSRF und ASRF sowie die daraus abgeleiteten SRF sind der Tabelle 6-1 zu entnehmen.

Tabelle 6-1: Vergleich einzelner Retentionsfaktoren

Element	Retentionsfaktoren (SRF)			
	Aus dem vorläufigen Experiment*	PSRF	ASRF	Abgeleitete SRF aus PSRF und ASRF
Br	0.00	0.31	0.00	0.01
Ca	0.04	0.04	0.34	0.4
Co	0.17	0.20	0.90	0.9
Cu	0.79	0.52	0.96	1.0
Fe	0.63	0.67	0.77	0.9
Ga	0.71	0.46	0.98	1.0
I	0.00	0.29	0.74	0.8
In	0.61	0.60	0.82	0.9
La	0.36	0.44	0.38	0.7
Mn	0.50	0.43	0.95	1.0
Ni	0.10	0.01	0.86	0.9
P	0.49	0.38	0.64	0.8
Re(Tc)	0.06	0.00	0.00	0.01
S	0.02	0.10	0.00	0.01
Sr	0.04	0.18	0.32	0.4
Th	0.39	0.26	0.80	0.9
U	0.00	0.01	0.00	0.01
V	0.27	0.46	0.80	0.9
Y	0.84	0.78	1.00	1.0

*Das vorläufige Verteilungsexperiment bewertete die potenzielle Aufnahme von Tracern in Feststoffe über einen Zeitraum von vier Stunden, wenn das Abwasser gemischt wurde, jedoch nicht unter belüfteten Bedingungen, wie sie im Abwasserkanal vorkommen.

Quelle: (Punt, Millward, et al., 2007):

Der Bericht (Punt, Wood, et al., 2007) fasst Ergebnisse der radiologischen Bewertung zusammen, welche im Zuge erhöhter Ableitungen von I-131 aus dem Royal Marsden Hospital im Londons Südwesten von der Umweltbehörde (Environment Agency of United Kingdom) veranlasst wurde. Neuroblastom, Thyreotoxikose und Schilddrüsenkrebsbehandlung werden dort mit NaI und MIBG behandelt. Die erste Einschätzung ergab, dass die Dosis über 0,3 mSv pro Jahr für die Personen liegen könnte, die den Beverley Brook und seine Ufer nutzen. Somit wären die Gewässer, in die das behandelte Wasser aus der Kläranlage Hogsmill eingeleitet wird (Hogsmill River und Beverley Brook), potenziell ursächlich für die Exposition der Bevölkerung. Das Regelwerk schreibt vor, dass eine detaillierte Prüfung mit standortspezifischen Daten im Fall einer Dosis über 0,02 mSv erforderlich ist. Im Rahmen der Studie wurden die Aktivitätskonzentrationen von I-131 im Rohabwasser, während der Abwasserreinigung, am Ablauf und im Schlammkuchen sowie im Flusswasser und im Sediment in der Umgebung der Kläranlage Hogsmill untersucht. Ausgehend von einer Gesamtverabreichung von 15,1 GBq Iod-131 an drei Patienten an drei aufeinander

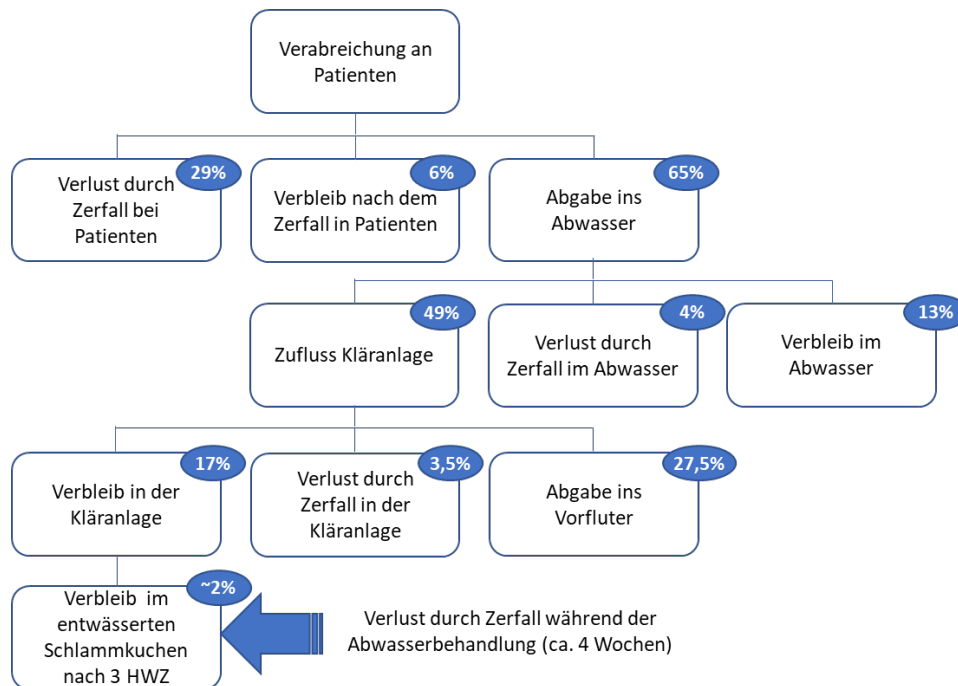
folgenden Tagen im Februar 2006 wurden bei der Probenahme Aktivitätskonzentrationen von Iod-131 gemessen in:

- Rohabwasser von durchschnittlich 26 Bq/l, wobei ein Höchstwert von 50 Bq/l erreicht wurde;
- behandeltem Abwasser von durchschnittlich 11 Bq/l und in allen Proben weniger als 20 Bq/l;
- im Primärschlamm bis zu 76 Bq/l, im Belebtschlamm bis zu 130 Bq/l und im
- entwässertem Schlammkuchen bis zu 1.800 Bq/kg (Trockensubstanz);
- Flusswasser bis zu 20 Bq/l und Flusssediment bis zu 67 Bq/kg (Trockensubstanz);
- Gezeitediment, wo der Beverley-Bach in die Themsemündung mündet, bis zu 570 Bq/kg (Trockensubstanz).

Weil es nicht möglich war die verabreichten chemischen Verbindungen von MIBG und NaI als getrennte Impulse durch die Kläranlage zu verfolgen, wurden in der Arbeit keine Aussagen über ein möglicherweise unterschiedliches Verhalten der NaI und MIBG chemischen Formen von Iod-131 gemacht.

Die Erhebung der Gammadosis in der Luft ergab, dass die externe Exposition an den meisten Punkten, um das Klärwerk Hogsmill und entlang des Beverley Brooks nicht von der Hintergrundbelastung zu unterscheiden war und bei etwa 19 nSv/h lag. In der Kläranlage wurden in der Nähe des Klärschlammkuchens leicht erhöhte Dosisleistungen in der Luft gemessen (bis zu 31 nSv/h), die in etwa 10 nSv/h über dem Hintergrundwert lagen. Im Fall von konservativ unterstellten Expositionszeiten von 1.000 Stunden pro Jahr wäre die externe Exposition minimal und mit 0,01 mSv pro Jahr über dem Hintergrundwert liegen. Die Studie geht weiterhin davon aus, dass die externe Exposition über Gezeitedimenten erhöht sein dürfte, aber nicht mehr als ein paar Prozent des jährlichen Dosisgrenzwertes betrage. Von der gesamten Aktivität, die den Patienten im Krankenhaus verabreicht wird, wird der größte Teil ausgeschieden und gelangt ins Abwassersystem. Die Untersuchungen zeigten, dass mehr als die Hälfte durch Zerfall oder durch Verbindung mit Feststoffen in der Kanalisation verloren geht, etwa zwei Prozent werden wahrscheinlich in den entwässerten Schlammkuchen im Werk Hogsmill und etwa ein Drittel nach der Behandlung in den Hogsmill River und den Beverley Brook eingeleitet (vgl. Abbildung 6-2).

Abbildung 6-2: Prozentuelle Anteile des verabreichten und in das Abwassersystem freigesetzten I-131



Quelle: Adaptiert nach (Punt, Wood, et al., 2007)

(Rose et al., 2012) Medically-derived ¹³¹I in municipal sewage effluent

Rose et al. (2012) untersuchten das mit I-131 belastete Abwasser der Stony Brook Water Pollution Control Plant (WPCP), die an eine regionale Schilddrüsenkrebsbehandlungseinrichtung in Stony Brook, NY, USA, angeschlossen ist. Die im Abwasser gemessenen Konzentrationen reichten von $1,8 \pm 0,3$ Bq/l bis zu 227 ± 2 Bq/l. Die Zeitreihenmessungen nach bekannten stationären Behandlungen haben gezeigt, dass die mittlere Abwasserhalbwertszeit von I-131 in der Anlage 3 d beträgt. Die hydraulische Verweilzeit des Abwassers in der Stony Brook WPCP liegt je nach dem Tages- und Wochenregime des anfallenden Abwassers zwischen 24 h und 36 h. Durch die Rückführung des Abwassers in den Belebtschlamm zur Aufrechterhaltung der für die Abwasserreinigung erforderlichen Bakterienpopulationen verbleibt das Iod in dieser Anlage weit länger als seine hydraulische Verweilzeit. Gemäß Untersuchungen werden fünf Abwasserhalbwertszeiten (15 d) benötigt, um den größten Teil des Iods zu entfernen. Eine vorherige Untersuchung der Hauptautorin (Rose, 2003) kam zum Schluss, dass I-131 im Klärschlamm zwei Wochen lang nach einer Patientenbehandlung gemessen werden kann. Zur Bestimmung der Abwasserhalbwertszeit nutzten die Autoren die Beziehung $\lambda = \ln 2 / T_{I-131}$ für eine Kinetik 1. Ordnung. Aus den in der Studie gewonnenen Daten der Zeitreihen im Anschluss an eine stationäre Behandlung wurde T_{I-131} von 0,75 d bis 3,47 d ermittelt. T_{I-131} repräsentiert die Entfernung von I-131 aus der Anlage am Ablauf, Verluste im Klärschlamm sowie durch radioaktiven Zerfall. Die so experimentell ermittelte Rate entspricht dem theoretischen Verhalten eines nicht reaktiven, gelösten Abwasserbestandteils und legt nahe, dass der größte Teil des in die Anlage gelangten I-131 in den Vorfluter freigesetzt wird. Dem entsprechend wurden nach einer Reihe von stationären

Behandlungen Konzentrationen bis zu 227 Bq/l im Vorfluter gemessen. Die Versuchsergebnisse zeigten, dass das meiste I-131, das in die Kläranlage von Stony Brook gelangt, im Abwasser verbleibt. Somit können Patientenbehandlungen zu einer kontinuierlichen Belastung von Oberflächengewässern mit I-131 führen. Die Autoren schlagen vor, medizinisches Radioiod zu Untersuchungen der Abwasserreste in den Oberflächengewässern zu nutzen.

(Mulas et al., 2019) Medically-derived radionuclides levels in seven heterogeneous urban wastewater treatment plants: The role of operating conditions and catchment area

Mulas et al. (2019) haben Abwasser am Zulauf und Ablauf sowie Klärschlämme in sieben städtischen Kläranlagen im Großraum Barcelona (BMA) untersucht und die Konzentrationen von I-131, Tc-99m, In-111, Ga-67 und I-123 mittels Gammaskopie gemessen sowie physikochemische Analysen des Abwassers durchgeführt (pH, COD, BOD₅, abfiltrierbare Stoffe total, Ammonium-Stickstoff, Gesamt-Kjeldahl-Stickstoff, Phosphor gesamt). Das durchschnittliche Alter der Klärschlämme wurde unter Berücksichtigung der Stufen der Schlammbehandlung und der hydraulischen Verweilzeiten des Abwassers bestimmt und je nach der Größe der Anlage bewertet. Die Messungen zeigten eine starke Variation zwischen den verschiedenen Abwasserbehandlungsanlagen an Zulauf, Ablauf sowie im Klärschlamm, wobei die höchsten Aktivitätskonzentrationen die Radionuklide I-131 und Tc-99m aufwiesen. Bezogen auf die Stufen der Schlammbehandlung sahen die Ergebnisse folgendermaßen aus:

- Primärschlamm: I-131 wurde in allen untersuchten Kläranlagen im Primärschlamm nachgewiesen, wobei die zwei größten Kläranlagen auch die höchsten spezifischen Aktivitäten von I-131 aufwiesen. Im Fall von Tc-99m wurde eine große Variabilität festgestellt, wobei die maximalen Werte von 9530 ± 340 Bq/kg Trockenmasse in der größten Kläranlage gefunden wurden. Dieser Wert sei mit dem Wert der früheren Studie von (Fischer et al., 2009), wo 6040 Bq/kg Trockenmasse gemessen wurden, vergleichbar. Die spezifischen Aktivitäten im Primärschlamm lagen in den anderen Anlagen der vorliegenden Studie zwischen 154 Bq/kg und 3350 Bq/kg Trockenmasse. Wenn die Ergebnisse für dieselbe Anlage verglichen wurden, waren die spezifischen Aktivitäten in Bezug auf Ga-67 In-111 und I-123 deutlich niedriger als für I-131 und Tc-99m.
- Belebtschlamm: I-131 wurde in allen untersuchten Kläranlagen identifiziert, weil ein Teil von I-131 durch Mikroorganismen an den Belebtschlammteilchen gebunden wird (wie in (Hormann & Fischer, 2017) geschlossen). Zu ähnlichem Schluss kommen Studien ((Fischer et al., 2009)) und ((Punt, Wood, et al., 2007)). Der Belebtschlamm spielt die zentrale Rolle bei der teilweisen Entfernung von I-131. Tc-99 wurde in vier von den sieben untersuchten Anlagen gemessen, die höchsten Werte der spezifischen Aktivitäten in der größten Anlage (Maximum von 5450 ± 280 Bq kg⁻¹ Trockenmasse). Dies war eine Größenordnung höher als in den anderen Kläranlagen der Studie (Mulas et al., 2019) sowie auch im Vergleich mit (252 Bq kg⁻¹ Trockenmasse; (Fischer et al., 2009)). In der gleichen Anzahl von Kläranlagen wurde In-111 gefunden, jedoch mit deutlich niedrigeren Aktivitätswerten. I-123 und Ga-67 wurden zweimal in der größten Anlage detektiert.
- Entwässerter Schlamm: Die höchsten Konzentrationen von I-131, Tc-99m, In-111, Ga-67 und I-123 wurden in der größten Kläranlage gemessen. In den kleineren Anlagen reduzierten sich die Aktivitätskonzentrationen deutlich im Vergleich mit dem Primärschlamm im Fall von Tc-99m, In-111 und Ga-67.

Die massive Reduktion der physikochemischen Parameter wie COD oder BOD₅ entlang der Abwasserbehandlungsstufen hat einen minimalen Einfluss auf die Rückhaltung von Radionukliden, da hier Faktoren wie Halbwertszeit und Sorption sowie die rückhaltende Wirkung einzelner Behandlungsstufen wirksamer sind. Die Bewertung der Ergebnisse muss also im Zusammenhang mit der Größe der Kläranlage, den hydraulischen Verweilzeiten, dem Klärschlammalter, den Verabreichungsverhältnissen von Radiopharmaka und der Ausgestaltung der Behandlungsstufen mit der Klärschlammführung sowie Eigenschaften des Abwassereinzugsgebietes einhergehen. Generell kann gesagt werden, dass die gemessenen Konzentrationen und Nachweishäufigkeiten mit den Verabreichungsverhältnissen von Radiopharmaka und dem Muster der verabreichten Aktivitäten für jedes Radionuklid übereinstimmen.

Die Gesamtanalyse der Ergebnisse zeigt, dass eine große Anlage (behandelte Abwasservolumina von 320.000 m³ am Tag) aus dem kommunalen Abwassersystem des Großraums Barcelona höhere Werte und Nachweishäufigkeiten von medizinisch genutzten Radionukliden aufweist. Als wesentliche quantifizierbare Faktoren aufgrund der Halbwertszeiten der untersuchten Radionuklide zwischen 6 Stunden und 8 Tagen wurden die hydraulische Halbwertszeit und das Klärschlammalter (1 bis 49 Tage) identifiziert. Besonders auffällig ist, dass die Betriebsbedingungen mit niedrigerem Klärschlammalter (2-7 Tage) ein Schlüsselfaktor für zeitliche Abkürzung der Klärschlammbearbeitungsstufen sind und höhere Konzentrationen im endgültigen festen Endprodukt aufweisen. Die hydraulischen Verweilzeiten des zufließenden Abwassers und das Schlammalter in den Kläranlagen sind im Allgemeinen lang genug, um den Zerfall der untersuchten kurzlebigen nuklearmedizinischen Radionuklide wirken zu lassen, so dass die Kläranlagen als Rückhaltesysteme fungieren und die Radioaktivitätswerte sich sowohl im Abwasser als auch im Endschlamm verringern. Die Größe der Anlage ist entscheidend für die Intensität der Probenentnahme. Im Fall von großen Kläranlagen reichen z. B. wenige Klärschlammproben, um eine erste Einschätzung des Verhaltensmusters von I-131 zu erhalten. Bei kleineren Kläranlagen ist es erforderlich, intensivere Probenahmen und weitergehende Bewertungsszenarien durchzuführen. Große Mengen von Regenwasser führen aufgrund der Zunahme von Schwebstoffen zur Reduktion der Radionuklidkonzentrationen sowie zu erhöhter Konzentrationsvariabilität im Klärschlamm. Dem sollte eine Probenahmekampagne angepasst werden. Die Untersuchungen, die spezifisch für die jeweilige Behandlungsstufe von Klärschlamm durchgeführt wurden, haben eine Bewertung der Transferwege der verschiedenen untersuchten medizinischen Radionuklide in den Klärschlammstufen möglich gemacht. I-131 im entwässerten Klärschlamm ist z. B. häufiger nachweisbar als in deutlich älterem Faulschlamm, der über Wochen hinweg ausgefault wurde. Generell ist davon auszugehen, dass I-131, Tc-99m und In-111 während der Abwasserbehandlung nur teilweise entfernt werden und ihr Vorhandensein am Ablauf für den Nachweis bzw. Bewertung der Konzentrationen im aquatischen Ökosystem dienen kann.

(McGowan et al., 2014) Iodine-131 monitoring in sewage plant outflow

McGowan et al. (2014) befassten sich mit der Bewertung der Probenahmekampagne am Ablauf der Kläranlagen der Krankenhäuser in Oxford, Sutton und Guildford, die I-131 im Rahmen der Radiotherapie einsetzen. Dazu wurden zu einem die Dosisleistungen der in den Krankenhäusern befindlichen Patienten gemessen und daraus die Ganzkörperretention und folglich die ausgeschiedene Aktivität berechnet. Zum anderen wurden die Adressen der ambulanten Patienten erfasst, um Rückschlüsse auf die Belastung der jeweiligen Kläranlage durch Ausscheidungen zu

ziehen. Im Ergebnis zeigte sich, dass bis zu 20% der eingeleiteten Aktivität am Ablauf der Kläranlagen detektiert wurde. Das war deutlich unter dem Wert der damals verwendeten mathematischen Modelle der Environment Agency of United Kingdom¹² (80%), die aus Sicht von McGowan et al. (2014) die Freisetzungen aus den Kläranlagen überbewerteten. Ausgehend aus den Messungen und der Analyse der Messwerte schlugen die Autoren daher vor, den Verteilungsanteil von I-131 im Abwasser bei Modellberechnungen auf 20% zu reduzieren. Das würde aus deren Sicht eine realistischere Einschätzung der Aktivität im Ablaufkanal der Kläranlage und der vom Fluss abhängigen Expositionspfade ermöglichen. Die verbleibenden 80% können durch Ablagerung in Kanalrohren, im Klärschlamm und durch den radioaktiven Zerfall erklärt werden. Aufgrund der kurzen Halbwertszeit von I-131 seien die Dosen über den Schlammweg mit Verbringung in die Landwirtschaft für die Modellberechnungen unbedeutend. Die Änderung des Verteilungsanteils hat somit wenig Einfluss auf diesen Pfad. In Ihrer Arbeit verglichen die Autoren weiterhin die Untersuchungen verschiedener Autoren zur Rückhaltung von I-131 im Klärschlamm, und zwar in Abhängigkeit von der verabreichten chemischen Verbindung, Nal oder MIBG, und zitieren an der ersten Stelle (Fenner & Martín, 1997). Demnach zeigt Nal eine deutlich geringere Affinität zur Rückhaltung im Klärschlamm als MIBG, weil Nal größtenteils in der wässrigen Phase verbleibt, während MIBG an die Organik gebunden wird. Die Autoren weisen in dem Zusammenhang auch auf die Arbeit (Punt, Wood, et al., 2007) hin, welche die Anreicherung von Iod im Primär- und Aktivierungsschlamm untersuchte und dort eine starke Anreicherung im Vergleich mit Abwasser an Zulauf und Ablauf feststellte. Punt, Wood, et al. (2007) schlagen daher eine 80%ige Rückhaltung für die Modellierung vor, wobei hier eine große Bandbreite der Messwerte festgestellt worden sei. Dem gegenüber schlägt die Public Health England eine 20%ige Rückhaltung vor. Aufgrund der großen Unterschiede der Ergebnisse im Hinblick auf die Rückhaltung der Iodverbindungen wäre es empfehlenswert, immer standortbezogene Untersuchungen unter Berücksichtigung der angewendeten chemischen Iodverbindung durchzuführen.

(Martínez et al., 2019) Occurrence of and radioanalytical methods used to determine medical radionuclides in environmental and biological samples. A review

Martínez et al. (2019) hatten das Ziel, den Stand der Technik und die Trends auf dem Gebiet des Vorkommens und der Bestimmung von medizinischen Radionukliden in der Umwelt- und der biologischen Beprobung (ab 2007 bis 2019) im Vergleich darzustellen. Dabei wurde auch die Rückhaltung von medizinischen Radionukliden im Klärschlamm sowie deren Verteilung entlang der Abwasserbehandlung in einer Kläranlage ausgewertet. Der Fokus dieser Arbeiten lag auf Untersuchungen zu I-131 und Tc-99m. In Tabelle 6-2 ist der Überblick über die Publikationen und die untersuchten Werte der Aktivitätskonzentrationen für I-131 und Tc-99m zusammengestellt.

¹² Initial radiological assessment tool 2: part 2 methods and input; Link: <https://www.gov.uk/government/publications/initial-radiological-assessment-methodology>

Tabelle 6-2: Rückhaltung von medizinischen Radionukliden im Klärschlamm: vergleichende Auswertung von Daten

Sample	Sample pretreatment	Detector	MDA	Activity concentration		Ref.
				^{99m} Tc	¹³¹ I	
WWTP sludge	Addition of cellulose powder	HPGe	n.r.	138–6040 Bq/Kg _{dw} ^a 0.19–252 Bq/Kg _{dw} ^b	11.8–574 Bq/Kg _{dw} ^a 0.14–201 Bq/Kg _{dw} ^b	Fischer et al. (2009)
	–	HPGe	26 Bq/kg	< MDA < MDA	203–231 Bq/kg ^b 1961–2410 Bq/kg ^c	Chang et al. (2011)
	Dry at 50 °C for 20 h and ground to fine powder	HPGe	n.r.		8.1–45 Bq/kg _{ww} ^b	Velisek Carolan et al. (2011)
	Homogenisation and dry at 100 °C for 1 h	HPGe	0.1 Bq/kg		74.8–1238 Bq/kg _{dw}	Jiménez et al. (2011a)
	Dry at 130 °C, crushed and siefted	HPGe	67 Bq/kg _{dw}		58–883 Bq/kg _{dw}	Camacho et al. (2012)
	–	LEGe	10–500 Bq/kg _{dw}		27 - 148,000 Bq/kg _{dw} ^b	Rose and Swanson (2013)
	n.r.	HPGe	0.02–0.3 Bq/kg _{ww} ^e 0.06–0.3 Bq/kg _{ww} ^f 0.07–0.35 Bq/kg _{ww} ^c		12.3 Bq/kg _{ww} ^e n.r. 150 Bq/kg _{ww} ^c	Cosenza et al. (2015)
	Formaldehyde addition ^{a,b,h}	HPGe	0.2 Bq/L	119.6 Bq/L ^a 2.6 Bq/L ^g 3.4 Bq/L ^b n.d.	0.5–4.2 Bq/L ^a 4.2–28.7 Bq/L ^g 2.1–7 Bq/L ^b 176.5–213.9 Bq/kg _{dw} ^c	Martínez et al. (2018)
	Dry at 100 °C, crushed in a ball mill and siefted in a 250 µm sieve ^c		1,1 Bq/kg ^c			
	2-step iodine extraction procedure: 1 organic fraction 2 inorganic fraction 3 residual iodine fraction	HPGe	0.030–0.1 Bq/L (Marinelli) 0.002–0.015 Bq/L (PMMA dish)	n.d.	AEI > BEI	Hormann and Fischer (2017)
	2-step iodine extraction procedure: 1 organic fraction 2 inorganic fraction 3 residual iodine fraction	HPGe	n.r.	n.d.	80% AEI and 10% BEI ^g 60% AEI and 20% BEI ^b	Martínez et al. (2019)
	Dehydrate ^c	HPGe	13 Bq/kg _{dw} ¹³¹ I ^a 4 Bq/kg _{dw} ¹³¹ I ^c 154 Bq/kg _{dw} ^{99m} Tc ^a 98 Bq/kg _{dw} ^{99m} Tc ^c	154–9530 Bq/kg _{dw} ^a < MDA – 5000 Bq/kg _{dw} ^c	< MDA - 700 Bq/kg _{dw} ^a 60–1000 Bq/kg _{dw} ^c	Mulas et al. (2019)
	Dehydration and homogenization	HPGe	n.r.		202–1908 Bq/kg	Zannoni et al. (2019)

Legende: a – Primärschlamm, b – ausgefallter Schlamm, c – entwässerter Schlamm, d – Mischschlamm aus Überschuss- und Primärschlamm, f – recyclierter Schlamm, g - Sekundärschlamm

Quelle: (Martínez et al., 2019)

(Mosos et al., 2020) Determination of (¹³¹I) activity concentration and rate in main inflows and outflows of Salitre wastewater treatment plant (WWTP), Bogota

Mosos et al. (2020) untersuchten die Entwicklung der Aktivitätskonzentration von I-131 am Zulauf und in den einzelnen Behandlungsstufen der Kläranlage von Salitre in Bogota, Kolumbien, welche aus den medizinischen Einrichtungen zur Diagnose und Behandlung von Schilddrüsenkrebs stammen. Die Autoren haben dazu Proben aus dem Zulauf bzw. dem Rohabwasser am Feinrechen, dem Fett- und Sandabscheider, aus dem gereinigten Abwasser (Ablauf) sowie dem getrockneten Faulschlamm entnommen und die Aktivitäten gemessen. Die Probenahme erfolgte über mehrere Wochen zu verschiedenen Tageszeiten, um die Zeiten der höchsten Aktivitäten am Zulauf zu identifizieren. Die Aktivitätskonzentrationen am Zulauf (Rohabwasser) stiegen ab Montag im Laufe der Woche deutlich an, während die tägliche Aktivitätskonzentration am Morgen am höchsten war und dann über den Rest des Tages kontinuierlich abnahm. Die Aktivitätskonzentrationen von I-131 am Zulauf lagen über dem Referenzwert für Trinkwasser und sehr nahe am Grenzwert für die Einleitung in Gewässer in Kolumbien. Im Anschluss wurde eine Massenbilanz erstellt, um die Aktivitätskonzentration und -rate am Zu- und Ablauf zu bestimmen. Der Massenbilanz wurde die Annahme eines rein konvektiven Transports („Kolbenströmung“) zugrunde gelegt: Die Aktivität am Zulauf ist gleich der Summe der Aktivitäten der jeweiligen Teilströme am Feinrechen, dem Fett- und

Sandabscheider, dem gereinigten Abwasser sowie dem getrockneten Faulschlamm. Dabei wurden die Verweilzeiten, der Zerfall und die Durchflussrate des Wassers in den Teilströmen berücksichtigt. Die Massenbilanz zeigte, dass die Aktivitätskonzentrationen in den Ausscheidungen in vielen Fällen vergleichsweise höher sind als in anderen Veröffentlichungen angegeben. Insgesamt schlussfolgern die Autoren, dass I-131 zwar eine größere Affinität zu organischen Stoffen aufweist und sich im Klärschlamm anreichert (höchste Aktivitätskonzentrationen der Teilströme), der Faulungsprozess aber wiederum lang genug ist, um das Radionuklid I-131 abklingen zu lassen. Der Einsatz von Klärschlamm in organischen Düngern ist somit ohne nennenswertes externes Bestrahlungsrisiko möglich. Weil aber das Radioiod etwa 15 km flussabwärts von der Kläranlage zu finden war, schlagen die Autoren eine Studie zur Untersuchung nahegelegener Anbaukulturen vor. Die Aktivitätsrate im Zu- und Abstrom des Abwassers betrug etwa 15% der genehmigten Aktivität und im Klärschlamm etwa 0,5% des I-131 im Rohabwasser am Zulauf. Die Probenahmeergebnisse für die Massenbilanzen wurden durch die Schwankungen der Wasserdurchflussraten und die kontinuierliche Entnahme und Rückführung von Wasser in der Kläranlage beeinflusst. Daher wurde ein Korrekturfaktor in die Berechnung eingeführt.

Die Autoren kommen zum Schluss, dass es wichtig ist, Lagertanks in den Einrichtungen mit nuklearmedizinischen Abteilungen zu installieren und die Wirksamkeit des Managements von Patientenausscheidungen sowie den Landesrichtwert für ambulante Behandlungen zu bewerten. Darüber hinaus könnte die anhaltende Verwendung von Radioiod eine dauerhafte radiologische Belastung der Gewässer während des Jahres bedeuten.

6.3.3 Weitere Arbeiten

Stofftransfer und chemisch-biologische Prozesse in Kläranlagen

Der Stofftransfer und die chemisch-biologischen Prozesse in Kläranlagen sind losgelöst von Radionukliden Gegenstand von Modellierungen zur technischen Auslegung von Kläranlagen sowie zur Prozesssteuerung. Solche Modellierung ist von Bedeutung für den Themenbereich dieses Forschungsvorhabens, weil die konventionellen Modellansätze koppelbar mit dem Radionuklidtransfer sein können. Eine Übersicht über die Modellierung von einzelnen Behandlungsstufen einer Kläranlage, die für eine Bewertung der biologischen und physikalischen Prozesse notwendig sind, enthält z. B. folgende Arbeit:

(Nemcik et al., 2022) Wastewater Treatment Modeling Methods Review

Die Grundstruktur der vorgestellten Modelle in dieser Studie besteht aus einem hydraulischen Modell, das die Massenbilanzen beschreibt und einem Reaktormodell für die Modellierung der chemisch-biologischen Prozesse (Activated Sludge Modell ASM) mit der Aeration und dem Sauerstofftransfer. Die mathematische Form der Modelle beruht auf Bilanzbetrachtungen und einfachen linearen Differenzialgleichungen, deren Parameter fallspezifisch festzulegen bzw. zu ermitteln sind. Hervorzuheben ist auch das miterwähnte Modul der Eidgenössischen Anstalt für Wasserversorgung, Abwasserreinigung und Gewässerschutz (EAWAG) zur biologischen Entfernung von Phosphor (Modul ASM3). Die Arbeit weist auch auf die Optionen der Anwendungen von Künstlicher Intelligenz in diesem Bereich hin (Methoden der neuronalen Netze).

Modelle zur Radionuklidumverteilung in technischen Prozessen

Für den Radionuklidtransfer in technischen Anlagen wurden in

(Gellermann, 2009) Phenomenological model of TENORM formation in industrial processes

Modellansätze beschrieben und auf natürliche Radionuklide angewandt. Basierend auf Bilanzmodellen des Massen- und Aktivitätstransfers in einem technischen Prozess können aus Messwerten Transferfaktoren (Partitionierungsfaktoren) z.B. von „gelöst“ zu „gebunden“ für einzelne Radionuklide ermittelt werden. Diese Transferfaktoren können dann zur Prozessmodellierung genutzt werden. Obwohl die Arbeit auf natürliche Radionuklide in industriellen Anlagen ausgerichtet ist, sind die dort beschriebenen Ansätze grundsätzlich auf Prozesse in Kläranlagen und die Beschreibung von Radionuklidumverteilungen anwendbar.

Freisetzung aus Krankenhäusern

Folgende Arbeiten können Hinweise auf mögliche Dosen im Zusammenhang mit der Freisetzung aus Krankenhäusern liefern, aber die Aktivität im Klärschlamm steht hier nicht im Vordergrund.

(Andrés et al., 2011) ^{131}I activity in urine to the sewer system due to thyroidal treatments

Die Publikation (Andrés et al., 2011) befasst sich mit der Abschätzung der effektiven Dosis der Beschäftigten in der Abwasserentsorgung infolge von Iod, welches zur Behandlung von differenziertem Schilddrüsenkrebs (stationär) und von Hyperthyreose (ambulant) in einem Krankenhaus in Spanien eingesetzt wird. Die Autoren haben 79 Fälle von differenziertem Schilddrüsenkrebs und 187 Fälle von Hyperthyreose ausgewertet. Der Urin der behandelten Patienten wird in Sammelbehältern zum Abklingen gesammelt, dort wurden täglich Messungen der Aktivität in 1 m Höhe durchgeführt, die Werte lagen immer zwischen 2 GBq und 15 GBq. Ohne die Sammelbehälter würde sich eine effektive Dosis von bis zu 157 μSv für die Beschäftigten in der Abwasserentsorgung ergeben, das Abklingen ist daher generell unverzichtbar, um eine Dosis unter 10 μSv zu erreichen.

(Elashmawy, 2022) Design, commissioning and operation of programmable drainage system for PET-CT: an optimized approach to protect personnel and environment in nuclear medicine facilities

Elashmawy (2022) präsentiert Arbeiten zu dem Thema in denjenigen Ländern, in denen für die Abwasserbehandlung und Planung von Entwässerungssystemen in nuklearmedizinischen Einrichtungen keine spezifischen sicherheitstechnischen Anforderungen der Aufsichtsbehörden vorgegeben sind. Der Autor beschreibt die Planung, die Inbetriebnahme und den Betrieb eines programmierbaren Entwässerungssystems mit einer PET-CT-Anlage zum Sammeln und Ableiten von mit dem radioaktiven Isotop F-18 kontaminierten Abwässern. Die Produktion und die Ableitung flüssiger radioaktiver Abfälle in Form von Ausscheidungen von Patienten, die sich im Krankenhaus einer nuklearmedizinischen Diagnostik unterziehen, wurden untersucht. Die momentane und akkumulierte Aktivität, die aus dem Krankenhaus in das Abwassersystem abgeleitet wird, wurde unter Berücksichtigung des Radionuklidzerfalls geschätzt.

(Barbosa et al., 2022) Discharges of Nuclear Medicine Radioisotopes: The Impact of an Abatement System

Die Publikation (Barbosa et al., 2022) fokussiert auf die Problematik des Abklingsystems in Krankenhäusern in Kolumbien, wo die Grenzwerte für flüssige radioaktive Ableitungen in die Kanalisation niedriger sind als in anderen Ländern. Die Aufsichtsbehörde legte Aktivitäten für I-131 von maximal 1×10^7 Bq a^{-1} und 19 Bq l^{-1} fest. Um diese Anforderung zu erfüllen, sind längere Abklingzeiten des Abwassers bis zu 360 Tagen erforderlich. Das führt zu erheblichen Veränderungen der physikalisch-chemischen Parameter des Abwassers. Die Studie bewertet die Dekontaminations- und Abklingwirkung des Rückhaltesystems anhand von Wasserqualitätsparametern und der Aktivitätsmenge in den Abwässern.

6.4 Schlussfolgerungen

Für die in diesem Forschungsbericht zu beantwortenden Fragen ergeben sich aus den Untersuchungsergebnissen nuklearmedizinischer Radionuklide in Kläranlagen folgende wesentliche Schlussfolgerungen:

- Die wissenschaftlichen Arbeiten zu nuklearmedizinisch genutzten Radionukliden in Kläranlagen beziehen sich zumeist auf einzelne oder wenige Kläranlagen.
- Die wissenschaftlichen Arbeiten zu nuklearmedizinisch genutzten Radionukliden in Kläranlagen betrachten vorzugsweise das weit verbreitet vorkommenden und gut messbare Radioiod (I-131). Von den weiteren Radionukliden nuklearmedizinischen Ursprungs, die mehrfach untersucht wurden, dominiert das Tc-99m, darüber hinaus Ga-67, I-123, In-111 und Tl-201 ((Sundell-Bergman et al., 2008), (Barci-Funel et al., 1993), (Barquero, Basurto, et al., 2008)). Außerdem wurden Co-58, Cr-51 und Sm-153 untersucht und detektiert. Das Spektrum der Radionuklide im Abwasser und Klärschlamm ist daher deutlich breiter als in der AVV-IMIS (AVV-IMIS, 2006) berücksichtigt, wo von den zuvor genannten Radionukliden nur I-131 von der Berichtspflicht erfasst wird (siehe Kapitel 7.2).
- Da nuklearmedizinisch genutzte Radionuklide meist kurzlebig sind, hängt die spezifische Aktivität im Klärschlamm von der Verweilzeit des Schlamms in den Anlagen ab. Bei (großen) Kläranlagen, bei denen der Rohschlamm zum Abbau organischer Verbindungen in Faultürmen verrottet wird, können kurzlebige Radionuklide bereits weitgehend abgeklungen sein (Zannoni et al., 2019). Wird der Rohschlamm nur (z.B. mit Filterpressen) entwässert, dann ist anfallender Klärschlamm „jünger“ und spiegelt besser die prozessbezogene Verteilung von kurzlebigen Radionuklid zwischen der im Abwasser gelösten und der an Partikel gebundenen Fraktion wider. Die Repräsentanz von Klärschlammproben hängt daher von den Prozessabläufen der jeweiligen Anlage und dem Prozessschritt ab, der durch eine Probe erfasst wird.
- Die Exposition durch die in das Abwasser eingeleiteten nuklearmedizinische Radionuklide ist gering und kann in der Regel (gemessen an der de-minimis-Dosis) vernachlässigt werden. Höhere Dosiswerte ergeben sich zumeist aus der Nutzung stark konservativer Modellannahmen.
- Obwohl quantitative Angaben zum Verhalten von Radionukliden in Kläranlagen Unsicherheiten bezüglich einer allgemeinen Repräsentanz aufweisen können, werden folgende Angaben als brauchbare Orientierung gesehen:
 - Ca. 1 % der applizierten I-131-Aktivität geht in den Klärschlamm (Martín & Fenner, 1997).

- Der Austrag von I-131 aus einer Kläranlage verläuft zu ca. 10% bis 20% über den Klärschlamm (Rohschlamm). Der größte Teil der eingetragenen I-131-Aktivität wird mit dem gereinigten Abwasser in die Gewässer eingeleitet.
- Insbesondere beim I-131 hat die chemische Form der Applikation (MIBG oder NaI) Auswirkungen auf das Verhalten im Abwasserreinigungsprozess.

7 Auswertung von IMIS-Daten

7.1 Zur Rolle der IMIS-Daten

Wie die Auswertung der nationalen und internationalen Fachliteratur zeigte, fokussierten sich die wissenschaftlichen Arbeiten stark auf das Verhalten von Radionukliden in Kläranlagen und die daraus ggf. resultierenden Expositionen von Arbeitern oder sonstigen Einzelpersonen der Bevölkerung. Eine vertiefende Auswertung von nationalen Monitoringdaten von Abwasser und Klärschlamm, die über allgemeine nationale Berichtspflichten hinausgehen, wurde in der Literaturrecherche nicht festgestellt. Von daher wird die im Weiteren beschriebene Auswertung von Daten des bundesweiten integrierten Mess- und Informationssystems zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt (IMIS) als ein ergänzender Forschungsansatz gesehen.

Im Rahmen des IMIS-Programms werden Messungen an Abwasser und Klärschlamm durchgeführt und die zugehörigen Daten werden in der IMIS-Datenbank gespeichert. Die Grundlagen für das IMIS-Programm sind in der AVV-IMIS (AVV-IMIS, 2006) aufgeführt. Nach AVV-IMIS ist die Überwachung von Abwasser und Klärschlamm Aufgabe der Bundesländer und wird in Ländermessstellen durchgeführt. Leitstelle für die Umweltmedien „Trinkwasser, Grundwasser, Abwasser, Klärschlamm, Abfälle und Abwasser aus kerntechnischen Anlagen“ ist das BfS.

7.2 Im Rahmen des IMIS-Programms bestimmte Radionuklide

Vom BfS wurden ausgewählte Datensätze der IMIS-Datenbank für Abwasser und Klärschlamm für den Zeitraum Januar 2016 – Dezember 2022 zur Auswertung zur Verfügung gestellt. Diese Datensätze umfassen

- 25.273 Einträge für Abwasser (Umw-ID: A11),
- 28.193 Einträge für Klärschlamm (Umw-ID: A13)

die von den Mess- und Leitstellen als plausibel bewertet wurden. Die Datensätze enthalten Ergebnisse aus drei unterschiedlichen Messregimen:

- Normal-/Routinebetrieb (im Weiteren abgekürzt „Normal“)
- Störfall-/Intensivbetrieb (im Weiteren abgekürzt „Störfall“)
- Landesmessprogramm -U- (im Weiteren abgekürzt „Land“)

die (beim Datensatz Abwasser) noch mit Angaben zu diversen Messprogrammen ergänzt werden. Im Datensatz Abwasser sind in der Rubrik „Messregime“ 19 Datensätze „Übung Störfall“ enthalten, die in der weiteren Auswertung nicht berücksichtigt werden.

Da nur Datensätze selektiert wurden, die aus Messungen zum Aufgabenbereich des §162 StrlSchG gehören, umfassen die Daten zum Begriff "Störfall/Intensivbetrieb" keine Störfallmessungen nach der Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI), sondern nur IMIS-Messungen aus dem Intensivmessprogrammen. Die Abkürzung "Störfall" wird im Weiteren trotzdem benutzt, da sie die Begriffssetzung der Datenbank abkürzt und eindeutig zuordnet.

Die AVV-IMIS enthält im Anhang II eine Liste von 72 Radionukliden/Parametern, die ggf. in einem Ereignisfall radiologisch relevant sein können, sowie diejenigen, die auch im Normalbetrieb nachgewiesen werden. Für die Radionuklide der Liste sind entsprechende Analysenverfahren vorzuhalten bzw. die mess- und softwaretechnischen Voraussetzungen (z. B. Nukliddaten-Dateien) zu schaffen.

In der Nuklidliste der AVV-IMIS (AVV-IMIS, 2006) sind fünf Edelgasnuklide (Kr-85 und vier Xe-Isotope-), zwei I-Isotope (I-133, I-135) mit dem Zusatz „Nur Luftbereich“ erläutert. Für Untersuchungen an Klärschlamm und Abwasser verbleibt ein Satz von 67 Radionukliden/Parametern, für den nach AVV-IMIS Methoden zur Bestimmung vorzuhalten sind.

Die von den Messstellen im Normal-/Routinebetrieb und im Störfall-/Intensivbetrieb im Mindesten verpflichtend zu berichtenden Radionuklide sind:

- H-3 (nur im Wasser), Be-7, K-40, Co-60, Sr-90, Ru-103, I-131, Cs-134, Cs-137 und Ce-144 sowie die Alphastrahler U-234, U-235 und U-238, Pu-238, Pu-239/240 und Am-241 im Normal-/Routinebetrieb.
- Im Intensivbetrieb entfällt Be-7, zusätzlich ist Sr-89 zu bestimmen.

Die vom BfS zur Verfügung gestellten Datensätze der IMIS-Datenbank enthalten deutlich mehr Parameter:

- beim Abwasser 95 Parameter / Radionuklide,
- beim Klärschlamm 87 Parameter / Radionuklide.

Nur im Datensatz Abwasser deklariert sind:

- Cm-244, G-Beta, H-3, Hf-181, Nb-97, Sr-91, Sr-92, U-232, Y-92, Y-93, Zr-97.

Nur im Datensatz Klärschlamm deklariert sind:

- Ra-224, Ra-228, Re-186.

Eine Zusammenstellung aller in den hier ausgewerteten Datensätzen aufgeführten 102 Radionuklide/Parameter enthält Anhang I. Von diesen Radionukliden wurden die in Tabelle 7-1 zusammengestellten 46 ausschließlich im Störfall-/Intensivbetrieb analysiert. Bei allen Messungen dieser Radionuklide wurden nur Ergebnisse unter der Erkennungsgrenze erhalten.

Ein Abgleich der Radionuklide, die im IMIS-Programm ausgewiesen sind mit den Radionukliden, die in der Nuklearmedizin und Forschung verwendet werden, ergibt, dass von den im Anhang II aufgeführten Radionukliden aus nuklearmedizinischer Nutzung mit Halbwertszeiten von mehr als 5 Stunden (ohne Edelgase) die folgenden Radionuklide bisher nicht in der Liste der AVV-IMIS erfasst sind:

- Ac-225, As-211, Cu-64, Cu-67, Er-169, Ga-67, Ge-68, Ho-166, I-123, I-124, I-125, Ir-192, Lu-177, K-42, Na-24, P-32, Pd-103, Ra-223, Re-186, Re-188, Sc-47, Sr-82, Th-227.

Von den nach Kapitel 4.3 in der Forschung verwendeten Radionukliden sind außerdem nicht im IMIS-Programm erfasst:

- C-14, (P-32), P-33, S-35

Tabelle 7-1: In der Datenbank IMIS aufgeführte Radionuklide, die bei der Überwachung von Klärschlamm und Abwasser nur im Messregime Störfall-/Intensivbetrieb bestimmt wurden (ausgewerteter Zeitraum 2016 – 2022)

	Anzahl Datensätze			Anzahl Datensätze	
	Abwasser	Klärschlamm		Abwasser	Klärschlamm
Ag-110m	12	8	Nb-95	9	8
Ag-111	7	6	Nb-97	3	0
Ba-133		3	Nd-147	10	6
Ba-140	9	5	Np-239	7	6
Cd-109	3	3	Pm-151	10	6
Ce-139		3	Sb-125	12	8
Ce-141	9	8	Sb-127	10	6
Ce-143	7	6	Sb-129	10	6
Co-57	12		Se-75	7	
Cs-136	10	6	Sn-113	3	3
Eu-152	10	6	Sr-85	3	6
Eu-154	10	6	Sr-91	3	0
Eu-155	10	6	Sr-92	3	0
Fe-59	12	8	Te-123m	12	
Hf-181	3	0	Te-129	7	3
Hg-203	3	6	Te-129m	10	6
I-132	7	3	Te-131m	10	6
I-133	3	0	Y-88	3	6
I-135	3	0	Y-92	3	0
La-140	12	8	Y-93	3	0
La-141	3	0	Zn-65	12	8
Mo-99	10	6	Zr-95	12	
Na-22	8	8	Zr-97	3	0

Quelle: Autoren

Weitere Radionuklide bzw. Parameter, die nur 1- bis 10-mal im Normal-/Routinebetrieb, teilweise aber öfter im Messregime Störfall/Intensivbetrieb ausgewiesen wurden, sind:

- Im Abwasser: Ba-133, Ce-139, Cm-244, Cr-51, G-Beta, Pa-234m, Pu-236, Sr-89, Th-228, Th-231, Th-232, U-232.
- Im Klärschlamm: Co-57, Pu-236, Se-75, Te-123m, Cr-51, Zr-95.

Diese Datensätze werden als wenig aussagekräftig für eine statistische Auswertung angesehen. Einige aus diesen Datensätzen trotzdem abzuleitende Erkenntnisse werden im Kapitel 7.9.4 beschrieben.

Eine Zusammenstellung der Radionuklide bzw. Parameter, für die hinreichend umfangreiche Datensätze für eine vertiefende Auswertung vorliegen, enthält Tabelle 7-2. Danach stehen aus dem

Untersuchungsteil Abwasser 24.926 (24.945 - 19 Datensätze „Übung“) zu Verfügung, von denen ca. 93% aus dem Messregime „Normal“ stammen, 4,2% aus dem Messregime „Störfall“ und 2,3% aus dem Messregime „Land“. Im Datensatz Klärschlamm ist der Anteil der Daten aus dem Messregime „Normal“ noch höher und liegt bei 95,0%. Nur 3,3% der Datensätze gehören zum Messregime „Störfall“ und der Rest von 2,7% zum „Land“.

Zehn oder mehr Datensätze gibt es für 39 Radionuklide im Messprogramm Abwasser und 41 Radionuklide im Messprogramm Klärschlamm. Von diesen Datensätzen enthalten im Messprogramm Abwasser die Radionuklide bzw. Parameter

- Am-241, Ce-144, Cm-242, Cm-24344, Co-58, Co-60, Cs-134, G-Alpha, Kr-85, Mn-54, Pu-239, Ru-103, Ru-106, Sb-124, Te-132, Tl-201, Tl-202,

im Messprogramm Klärschlamm die Radionuklide

- Am-241, Ce-144, Cm-242, Cm-24344, Co-58, Kr-85, Mn-54, Pu-239, Ru-103, Ru-106, Sb-124, Te-132, Tl-201, Tl-202

keine Messwerte über der Erkennungsgrenze. Für die Bewertung des Messprogramms und der Messverfahren sind allerdings die Angaben zu den Nachweisgrenzen dieser Radionuklide verwertbar.

Tabelle 7-2: Für die vertiefende Auswertung geeignete Radionuklide mit Anzahl der zugehörigen Datensätze in den drei unterschiedlichen Messregimen

	Abwasser				Klärschlamm			
	Normal	Störfall	Land	Gesamt	Normal	Störfall	Land	Gesamt
Ac-228	44	4	0	48	378	3	0	381
Am-241	89	18	0	107	84	14	0	98
Be-7	540	22	0	564	1800	52	0	1852
Bi-212	28	1	0	29	315	0	0	315
Bi-214	94	1	0	95	375	0	0	375
Ce-144	2483	110	61	2656	2482	94	50	2626
Cm-242	28	1	0	29	28	0	0	28
Cm-	28	1	0	29	28	0	0	28
Co-58	14	13	0	27	14	9	0	23
Co-60	2690	118	61	2871	2649	102	50	2801
Cs-134	2688	118	61	2869	2650	102	50	2802
Cs-137	2690	118	61	2871	2650	102	50	2802
G-Alpha	88	0	0	88	12	0	0	12
H-3	98	2	0	100	(kein)			
I-131	2496	118	59	2675	2453	102	46	2601
In-111	174	8	41	223	209	10	40	259
K-40	2690	118	61	2871	2650	102	50	2802
Kr-85	10	0	17	27	10	0	12	22
Lu-177	67	1	0	69	254	8	0	262
Mn-54	14	13	0	27	14	9	0	23
Pa-234m	<10				18	0	0	18
Pb-210	40	3	0	45	188	6	0	194
Pb-212	81	4	0	85	381	3	0	384
Pb-214	84	1	0	85	598	0	0	598
Pu-238	464	4	0	468	415	0	0	415
Pu-239	35	0	0	35	33	0	0	33

	Abwasser				Klärschlamm			
	Normal	Störfall	Land	Gesamt	Normal	Störfall	Land	Gesamt
Pu-	429	4	0	433	382	0	0	382
Ra-226	93	7	0	100	139	6	0	145
Ru-103	2485	110	61	2658	2482	94	50	2626
Ru-106	60	11	0	71	65	8	0	73
Sb-124	14	13	0	27	14	9	0	23
Sr-90	473	5	0	478	419	0	0	419
Tc-99m	32	10	0	42	40	7	0	47
Te-132	53	10	0	63	66	6	0	72
Th-228	< 10				48	0	0	48
Th-232	<10				10	3	0	13
Tl-201	177	8	34	219	170	10	36	216
Tl-202	198	5	49	252	181	10	40	231
Tl-208	55	1	0	56	262	0	0	262
U-234	480	12	0	492	432	8	0	440
U-235	489	28	0	517	559	21	0	580
U-238	481	12	0	493	545	8	0	553
Summe	23304	1056	566	24945	26502	908	502	27907

Quelle: Autoren

7.3 Angaben zum Datensatz

Für eine Prüfung der projektrelevanten Inhalte der IMIS-Datenbank wurde eine Abfrage in IMIS für den Zeitraum der Probenahmen vom 01.01.2016 bis 01.01.2023 (Jahre 2016 bis 2022) von den in Tabelle 7-4 genannten Parametern durchgeführt. Wie schon im Kapitel 7.2 beschrieben, wurden 53.466 Datensätze extrahiert, von denen aus dem Datensatz A11 (Abwasser) 19 Sätze, die vom Messregime „Übung“ stammen, nicht weiter berücksichtigt werden (siehe Tabelle 7-3).

Die abgefragten Parameter zu den Proben umfassen Angaben zur Probenart und die Probenahmezeiten. Spezifische Angaben, wie die Proben den Klärwerksprozessen zuzuordnen sind, wurden nicht abgefragt. Bezüglich des Abwassers wird von einer Beprobung des gereinigten Abwassers vor Einleitung in die Vorflut (oder ggf. in Schönungsteiche) ausgegangen. Beim Klärschlamm wird angenommen, dass vorzugsweise entwässerter Überschussschlamm ggf. gemischt mit Rohschlamm (Primärschlamm) beprobt wurde. Im Faulschlamm sind die kurzlebigen Radionuklide aufgrund längerer Verweilzeit in den Faulbehältern abgeklungen und daher nicht mehr aufweisbar.

Angaben zur Anzahl der Datensätze der drei erfassten Umweltbereiche sowie der insgesamt in den Datensätzen erfasste Zeitbereich (abgefragt als Min – Max der Parameter „Probenahme Beginn“, „Probenahme Ende“, „Messbeginn der Proben“) sind in Tabelle 7-3 zusammengestellt. Die aus diesen Datensätzen abgeleiteten Ergebnisse werden im Weiteren dargestellt und im Kapitel 9 für die Weiterentwicklung der Messprogramme herangezogen.

Tabelle 7-3: Übersicht über die aus IMIS extrahierten Datensätze

Umwelt-ID	Umwelt-Bereich	Anzahl Datensätze		Probenahme Beginn	Probenahme Ende	Messbeginn
A11	Abwasser	25273 (davon 19 ausgesondert)	Von	01.01.2016	13.01.2016	12.01.2016
			bis	29.12.2022	29.03.2023	06.06.2023
A13	Klärschlamm	28193	Von	04.01.2016	05.01.2016	04.01.2016
			bis	21.12.2022	07.12.2022	09.05.2023

Quelle: Autoren

Tabelle 7-4: Abfragedaten der IMIS-Recherche

Parameter (Kürzel)	Bedeutung	Erläuterung
externe PID	Schlüsselnummer im IMIS-System	
HP-Nr	Schlüsselnummer im IMIS-System	
NP-Nr	Schlüsselnummer im IMIS-System	
Umw-ID	Kürzel zum Umweltbereich	Ausgewählt: A11, A13
Umweltbereich	Zu Umw-ID gehöriger Umweltbereich	A11 - Abwasser aus Kläranlagenablauf A13 - Klärschlamm
Datenbasis	Verweist auf Rechtsbezug	§ 162 StrlSchG
Netzbetreiber	Verantwortlichkeit für das Messnetz	Bundesländer (+ je 1 x ZdB)
Ort-ID	Schlüsselnummer für Orte	
E-Gem-ID	Schlüsselnr. für Gemeinden	
E-Gemeinde	Name der Gemeinde	
Ortszusatz	Ergänzung zu E-Gemeinde	wenn erforderlich
MST/Labor-ID	Laborbezeichnung	Messstellen der Länder
Anlage-Beschr		In Datensätzen keine Einträge
Probenart	Kürzel für Probenart	A11: E(inzel-), M(isch-), S(Sammelprobe) A13: E(inzel-)
Probenahme Beginn	Datum und Uhrzeit	
Probenahme Ende	Datum und Uhrzeit	Nicht in jedem Datensatz angegeben
Messbeginn	Datum und Uhrzeit	
MMT-ID	Kürzel für Messmethode/-technik	Erläuterungen im Textteil
Messgröße	Radionuklid bzw. Parameter	In der Regel: Chem. Symbol-Massezahl
< EG	Kleiner Erkennungsgrenze	Nur Angabe des „<“-Zeichens, keine Werte
Messwert	Messwert	
NWG zur Messung	Nachweisgrenze zur Messung	Nicht für alle Messungen angegeben
Maßeinheit	Maßeinheit	A11: Bq/l; A13: Bq/kg(TM) oder Bq/kg(FM)
rel. Messunsicherh.(%)	Messunsicherheit	Für alle Messwerte angegeben

Parameter (Kürzel)	Bedeutung	Erläuterung
MW/NWG	Verhältnis Messwert zu Nachweisgrenze	Angabe in %; nicht für alle Messungen angegeben.
Messregime	Angabe zum Messregime	Erläuterungen im Kapitel 2.6
Messprogramm-Land	Ergänzende Angaben zu spezifischen Messprogrammen	In dieser Arbeit nicht weiter ausgewertet.
Status	Bewertung zum Status der Messung	Im extrahierten Datensatz nur Messungen aufgenommen, die von Leitstellen* als „plausibel“ bewertet wurden.
Tags	Ergänzende Angaben zu Probe bzw. Messung	In dieser Arbeit nicht weiter ausgewertet.
Test	Ergänzende Angaben	In dieser Arbeit nicht weiter ausgewertet.

*Gem. AVV-IMIS / Punkt 10.5 (AVV-IMIS, 2006) werden alle Daten und Dokumente im Normal- und Störfall-/Intensivbetrieb grundsätzlich erst nach ihrer Plausibilitätsprüfung durch die Leitstellen mit einem Hinweis auf den Plausibilitätsstatus an Dritte weitergegeben.

Quelle: Autoren

7.4 Auswertung der Gesamtdaten Abwasser

Eine Übersicht über alle an den Proben der Jahre 2016 bis 2022 im Abwasser bestimmten Radionuklide bzw. radioaktivitätsbezogenen Parameter (Gesamt-Alpha, Gesamt-Beta) enthält Tabelle 10-1 Anhang I.

Insgesamt werden im Datensatz Abwasser 95 gemessene Parameter ausgewiesen, von denen zwei (G-Alpha, G-Beta) Summenparameter für die Alpha- bzw. Betastrahler sind und einige Parameter auch mehr als ein Radionuklid umfassen (Cm-24344 = Cm-243, Cm-244; Pu-23940 = Pu-239, Pu-240).

Im Zusammenhang mit der Auswertung der Daten werden im Weiteren folgende Begriffe verwendet:

- Als „deklariert“ werden Radionuklide (Parameter) bezeichnet, für die Messung durchgeführt wurde, deren Ergebnis in die IMIS-Datenbank aufgenommen wurde. Das Ergebnis kann auch „< Erkennungsgrenze“ lauten.
- Als „gemessen“ werden Radionuklide (Parameter) bezeichnet, für die ein Messergebnis über der Erkennungsgrenze erhalten wurde, das in die IMIS-Datenbank eingetragen wurde.
- Als „Messung“ werden im hier zu betrachtenden Kontext die Auswertungen von (in der Regel) Spektren Informationen zur Ermittlung eines Radionuklids (Messgröße) bezeichnet.
- Als „Messwert“ werden Messergebnisse bezeichnet, die über der Erkennungsgrenze liegen.

Seit der Umstellung auf IMIS-3 im Jahr 2019 werden die Messwerte in Anlehnung an die Vorgaben der DIN ISO 11929 in die IMIS-Datenbank eingegeben. Ergebnisse oberhalb der Erkennungsgrenze (EKG) werden deshalb mit Angabe des Messwertes, der Nachweisgrenze und der Messunsicherheit in die IMIS-Datenbank aufgenommen. Unterhalb der Erkennungsgrenze erfolgt die Kennzeichnung mit einem „<“-Zeichen sowie die Angabe der Nachweisgrenze. Ist der Messwert oberhalb der Nachweisgrenze, wird nur die relative Messunsicherheit in % aufgeführt.

Die in Tabelle 10-1 Anhang I aufgeführten Mittelwerte der Nachweisgrenzen geben eine allgemeine Orientierung über die Messempfindlichkeit. Einige extreme Werte der Nachweisgrenzen (siehe

Tabelle 7-5) verzerren die Mittelwerte erheblich und wurden daher bei der Auswertung weggelassen. Die Werte der Tabelle 7-5 sind aber (wahrscheinlich) keine Datenfehler, sondern beruhen auf Zerfallskorrekturen kurzlebiger Radionuklide bei (im Vergleich mit der Halbwertszeit) langen Zeiten zwischen Beginn der Probenahme und Beginn der Messung.

Da die Erkennungsgrenze mit ca. 0,5 der Nachweisgrenze veranschlagt werden kann, sollten Messwerte, die wesentlich kleiner sind, nicht vorkommen. Ein Test des Datensatzes, bei dem die Messwerte herausgefiltert wurden, die kleiner 0,4 der Nachweisgrenze sind, enthält Tabelle 7-6. Alle dort aufgeführten Messwerte wurden im Messprogramm Normal-/Routinebetrieb ermittelt.

Der im Verhältnis zur NWG geringste Messwert wurde im Datensatz der MST/Labor-ID 5030; PN 12.04.2016 festgestellt und ist offensichtlich auf eine fehlerhaft angegebene Nachweisgrenze für U-238 von 2,99 Bq/l zurückzuführen. Die aufgeführten relativen Messunsicherheiten werfen aber Fragen auf, da sie für Messwerte deutlich unterhalb der Nachweisgrenze zu gering ausfallen. Die Plausibilität dieser Daten ist zu hinterfragen, wobei aus den Datensätzen (mit Ausnahme der bereits als fehlerhaft benannten Nachweisgrenze U-238 von 2,99 Bq/l) nicht erkennbar ist, ob die Messwerte oder die Nachweisgrenzen unplausibel sind.

Tabelle 7-5: Ausreißerwerte der Nachweisgrenzen bei Abwasseranalysen

Messregime	Externe PID	Beginn Probenahme	Radionuklid	NWG in Bq/l
Störfall/Intensiv	ZDB000000061943Y	10.10.2019 15:00	Nb-97	2,78E+07
Störfall/Intensiv	ZDB000000061942Y	09.10.2019 17:30	Nb-97	1,75E+13
Störfall/Intensiv	ZDB000000061943Y	10.10.2019 15:00	Te-129	1,16E+13
Störfall/Intensiv	ZDB000000061942Y	09.10.2019 17:30	Te-129	1,06E+19
Störfall/Intensiv	ZDB000000061942Y	09.10.2019 17:30	I-132	1,53E+07
Störfall/Intensiv	ZDB000000061942Y	09.10.2019 17:30	La-141	1,59E+06
Störfall/Intensiv	ZDB000000061942Y	09.10.2019 17:30	Sr-92	1,76E+06
Landesmessprogramm	000008053456X	01.01.2016 12:00	In-111	4,44E+09
Landesmessprogramm	000008053456X	01.01.2016 12:00	Tl-201	4,82E+09

Quelle: Autoren

Tabelle 7-6: Liste der Messwerte < 0,4 NWG bei Abwasseranalysen

MST/Labor-ID	Probenahme Beginn	MMT-ID	Mess-große	Mess-wert	NWG	rel. Mess-unsich.-h.	Messwert NWG
				Bq/l	Bq/l	(%)	
9030	14.02.2022	A1	Pu-238	0,00133	0,00432	50	0,31
9030	29.05.2019	A1	Pu-23940	0,00048	0,00134	45	0,36
12020	13.01.2021	AP	Pu-23940	0,000316	0,000799	54	0,40
11010	26.06.2017	BS	Sr-90	0,0022	0,0096	12	0,23
10010	29.06.2018	BS	Sr-90	0,021	0,193	21	0,11
12010	18.12.2019	AU	U-234	0,00041	0,00103	50	0,40
12020	02.11.2021	AU	U-234	0,000245	0,000619	4,05	0,40
16010	14.02.2017	A1	U-235	0,000324	0,00086	58	0,38
9030	19.02.2019	A1	U-235	0,000515	0,00154	47	0,33
5030	12.04.2016	A1	U-238	0,00865	2,99	8	0,0029

Quelle: Autoren

Sowohl Transurane als auch Spaltprodukte wurden in vielen Messungen deklariert, wobei fast immer Werte unter der Nachweisgrenze ausgewiesen wurden.

Mehr als 100 Messungen (die meisten davon im Messprogramm Normal-/Routinebetrieb) ohne einen Messwert gibt es von

- Am-241, Ce-144, Co-60, Cs-134, Ru-103, Tl-201, Tl-202

Wie bereits in Kapitel 7.2 beschrieben, wurden zahlreiche Radionuklide nur im Messprogramm „Störfall-/Intensivbetrieb“ ausgewiesen, wobei in keinem Fall Werte über der Erkennungsgrenze gefunden wurden. In den Messprogrammen „Normal-/Routinebetrieb“ und „Land“ wurden die folgenden Radionuklide mindestens 10-mal, aber weniger als 100-mal ausgewiesen, ohne dass es Messwerte über der Erkennungsgrenze gab:

- Cm-242, Cm-243/44, Co-58, G-Alpha, Kr-85, Mn-54, Pu-239, Ru-106, Sb-124, Te-132.

Die Radionuklide

- Ba-133, Ce-139, Cm-244, Pa-234m, Pu-236, Sr-89, Th-231, Th-232, U-232

wurden maximal 8-mal in den Analysedaten ausgewiesen, stets ohne eigentlichen Messwert. Das bedeutet, dass 70 von den 95 Parametern stets, d. h. in allen drei Messregimen, ohne Messwert analysiert wurden und nur 25 Parameter Messwerte über der Erkennungsgrenze aufwiesen.

Radionuklide, für die mehr als 100 Einträge in der IMIS-Datenbank vorliegen, von denen im Normal-/Routinebetrieb mehr als 10% der Messwerte über der Erkennungsgrenze aufweisen, sind

- H-3, I-131, K-40, Ra-226, Sr-90, U-234, U-235, U-238.

Mehr als 10 Einträge in der IMIS-Datenbank mit mehr als 10% der Messwerte über der Erkennungsgrenze im Normal-Routinebetrieb haben

- Ac-228, Bi-212, Bi-214, Cr-51, Lu-177, Pb-212, Pb-214, Tc-99m, Tl-208.

Für diese letztgenannten Radionuklide kann davon ausgegangen werden, dass die Messverfahren grundsätzlich geeignet sind, die im Abwasser vorhandenen Radionuklide tatsächlich zu erfassen.

Für Cr-51, G-Beta und Th-228 gibt es ein oder zwei Einträge aus dem Normal-/Routineprogramm, für die jeweils auch Messwerte über der Erkennungsgrenze angegeben werden. Für In-111, Pb-210, Bi-212 und Ac-228 sind ebenfalls einzelne Messwerte (maximal 5) über der Erkennungsgrenze angegeben, wobei diesen Werten mehr als 20 Messungen zugrunde liegen.

Gerade bei den trotz zahlreicher Messungen nur selten echt bestimmten Radionukliden stellt sich die Frage, welchen Einfluss die Nachweisgrenze auf die Wahrscheinlichkeit einer Detektion hat. Um diese Frage überblicksartig zu prüfen, wurde der Zusammenhang zwischen dem Anteil der Messwerte an der Gesamtzahl der Messungen und dem Verhältnis des Mittelwertes der Messwerte MW(Messwerte) zum Mittelwert der Nachweisgrenzen MW(NWG) ermittelt. In Abbildung 7-1 sind diese Verhältnisse für alle Radionuklide mit mehr als 20 Einträgen in der IMIS-Datenbank, die auch Messwerte über der Erkennungsgrenze einschließen, dargestellt. Für das Messregime „Störfall“ ist die Zahl der Datensätze allerdings gering und die Streuung der Verhältnisswerte daher hoch. Das Messregime „Land“ fügt sich allerdings gut in die Ergebnisse des Messregimes „Normal“ ein.

Man erkennt, dass vielfach die (mittleren) Messwerte im Bereich der Nachweisgrenzen liegen. Für folgende Radionuklide ergeben sich im Datensatz „Normal-Routinebetrieb“ mittlere Messwerte, die zwischen der Hälfte und dem Doppelten der mittleren Nachweisgrenze liegen (in Klammern jeweils die Verhältnisswerte):

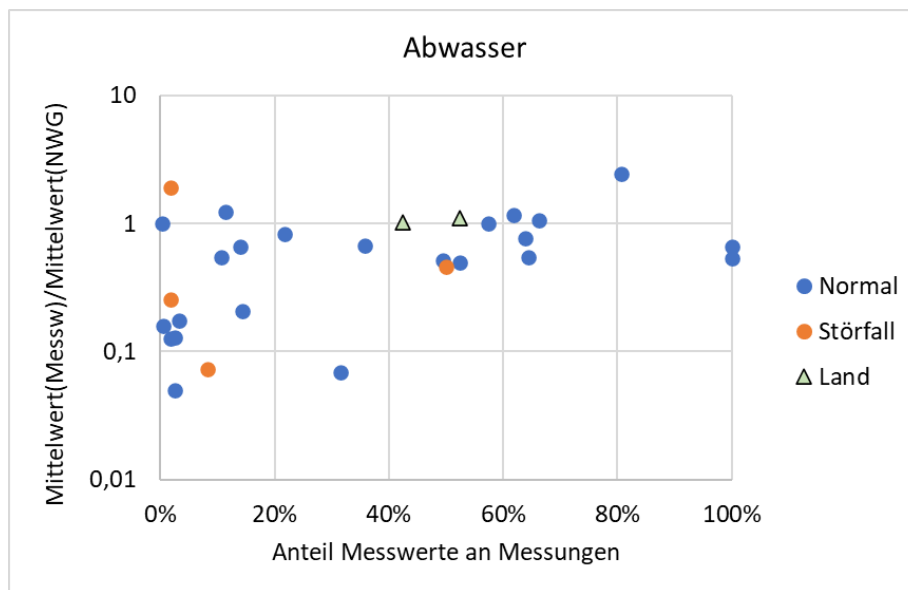
- Cs-137 (1,01), Ac-228 (1,23), Bi-212 (0,54), Bi-214 (0,77), Cr-51 (0,53), Pb-212 (1,18), Tc-99m (0,67), Tl-208 (0,83), H-3 (0,68), K-40 (1,00), Ra-226 (0,66), Sr-90 (0,52), U-234 (1,05), U-238 (0,55).

Die Radionuklide I-131, In-111, Pu-238, Pb-210, Pu-23940, Be-7, deren mittlere Messwerte weniger als 20% der mittleren Nachweisgrenzen betragen, wurden (mit Ausnahme von I-131) nur sehr selten (weniger als 5%) der Messungen mit echten Messwerten ausgewiesen.

Dieses Ergebnis weist darauf hin, dass aus Effizienzgründen kurze Messzeiten genutzt werden. Die Messanleitung zur Gamma-Spektrometrie von Abwasserproben (Fusban et al., 2000) gibt vor, dass die Messzeit der Aufgabenstellung anzupassen ist. Nach Möglichkeit soll die Messzeit so gewählt werden, „dass der kleinste gesuchte Peak eine Nettopeakfläche von 100 Impulsen erhält, so dass der zählstatistische Fehler dieses Peaks 10 bis 15% beträgt“.

Da an dieser Stelle die Mittelwerte der Nachweisgrenzen auch aus den Daten errechnet wurden, bei denen kein Messwert erhalten wurde, sind weitergehende Aussagen nur aus der Auswertung einzelner Datensätze abzuleiten.

Abbildung 7-1: Zusammenhang zwischen Anteil der Messwerte an der Gesamtzahl der Messungen in den drei unterschiedlichen Messprogrammen und dem Verhältnis des Mittelwertes der Messwerte zum Mittelwert der Nachweisgrenzen (NWG)



Quelle: Autoren

7.5 Auswertung der Gesamtdaten Klärschlamm

Eine Übersicht über alle an den Proben der Jahre 2016 bis 2022 im Klärschlamm bestimmten Radionuklide bzw. radioaktivitätsbezogenen Parameter (Gesamt-Alpha, Gesamt-Beta) enthält Tabelle 10-6 Anhang I.

Bei der Zusammenstellung der Werte wurde ein extremer Ausreißer von $8,55E+12$ Bq/kg(TM) für die Nachweisgrenze von Be-7 (Datensatz „Saarland, #0000007406, 10041100; Saarbrücken, Probenahmebeginn 14.10.2020 09:30) nicht berücksichtigt.

Insgesamt werden 88 gemessene Parameter ausgewiesen, von denen einige auch mehr als ein Radionuklid umfassen (Cm-24344 = Cm-243, Cm-244; Pu-23940 = Pu-239, Pu-240).

Nur im Störfall-/Intensivbetrieb gemessen wurden

- Ag-110m, Ag-111, Ba-133, Ba-140, Cd-109, Ce-139, Ce-141, Ce-143, Cs-136, Eu-152, Eu-154, Eu-155, Fe-59, Hg-203, I-132, La-140, Mo-99, Na-22, Nb-95, Nd-147, Np-239, Pm-151, Sb-125, Sb-127, Sb-129, Sn-113, Sr-85, Te-129, Te-129m, Te-131m, Y-88, Zn-65.

Von allen diesen Radionukliden liegen im hier betrachteten Zeitraum maximal 8 Einträge in der IMIS-Datenbank vor und alle diese Einträge weisen Messergebnisse unter der Erkennungsgrenze aus.

Mehr als 100 Einträge ohne einen Messwert gibt es nur von

- Am-241, Ce-144, Ru-103, Tl-201, Tl-202.

Diese Radionuklide wurden in allen drei Messregimen analysiert, wobei der Störfall-/Intensivbetrieb nur ca. 4% bis 5% der Messungen im Normal-/Routinebetrieb ausmachte.

Mehr als 10, aber weniger als 100 Einträge ohne einen Messwert über der Erkennungsgrenze gibt es von

- Am-241*, Cm-242, Cm-24344, Co-58*, Kr-85, Mn-54*, Pu-239, Ru-106*, Sb-124*, Te-132*,

wobei die mit „*“ gekennzeichneten Radionuklide auch im Störfall-/Intensivbetrieb analysiert wurden.

33 weitere Radionuklide wurden weniger als 10-mal in den Analysedaten ausgewiesen, stets ohne eigentlichen Messwert. Mit Ausnahme einer Messung von Pu-236 im Routinebetrieb wurden alle dieser Radionuklide nur im Störfall-/Intensivregime bestimmt.

Insgesamt beläuft sich die Zahl der Parameter, für die kein Messwert ausgewiesen wurde auf 47. Von 37 Parametern wurde mindestens ein Messergebnis erhalten.

Mehr als 100 Einträge mit mindestens 60% Messwerten im Messregime „Normal“ über der Erkennungsgrenze gibt es für

- Ac-228, Be-7, Bi-212, Bi-214, Cs-137, I-131, K-40, Lu-177, Pb-210, Pb-212, Pb-214, Ra-226, Sr-90, Tl-208, U-234, U-235, U-238.

Die Radionuklide

- G-Alpha, Lu-177m, Pa-234m, Ra-228, Tc-99m, Th-228, Th-232

werden nur 10- bis 49-mal im Datensatz „Normal-/Routinebetrieb“ ausgewiesen, davon aber praktisch immer mit einem Messwert über der Erkennungsgrenze.

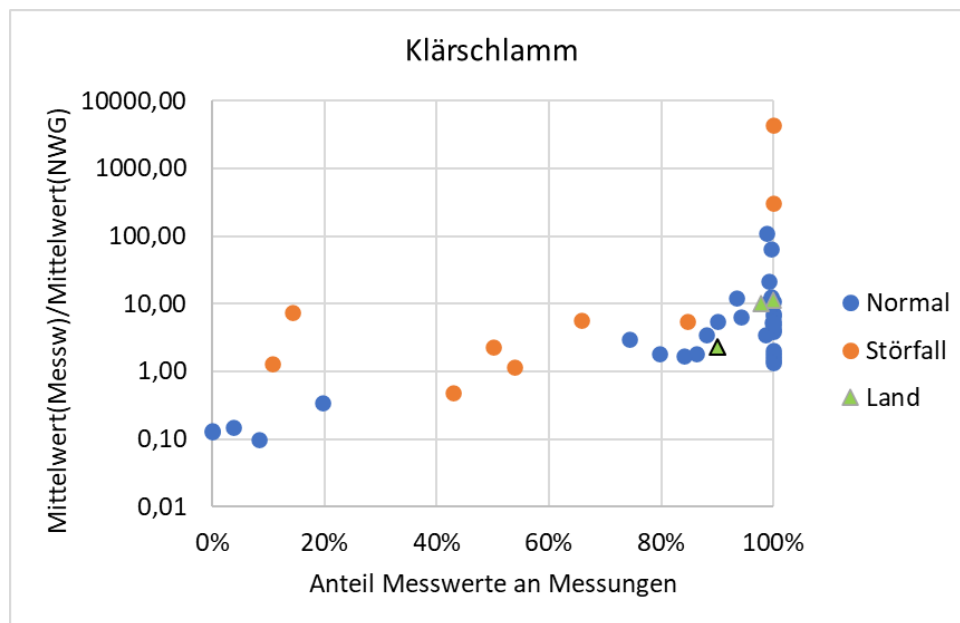
Für alle diese Parameter kann davon ausgegangen werden, dass die Messverfahren geeignet sind, die im Klärschlamm vorhandenen Radionuklide tatsächlich zu erfassen.

Der Zusammenhang zwischen Anteil der Messwerte über der Erkennungsgrenze an der Gesamtzahl der Messungen und dem Verhältnis des Mittelwertes der Messwerte zum Mittelwert der Nachweisgrenzen (NWG) wurde auch hier ausgewertet. Das Ergebnis dieser Auswertung für alle Radionuklide mit mindestens 10 Einträgen in der Datenbank zeigt Abbildung 7-2. Im Unterschied zum Abwasser liegen beim Klärschlamm die realen spezifischen Aktivitäten deutlich über den Nachweisgrenzen, so dass fast immer auch ein Messwert erhalten wird. Nur bei

- Cs-134, Co-60, Pu-238, Pu-23940, In-111

liegen die mittleren Nachweisgrenzen im Normal-/Routinebetrieb deutlich höher als die Mittelwerte der Messwerte und es gab nur in wenigen Fällen positive Messergebnisse (bei Cs-134 und Co-60 zeigten nur 0,04% der Datensätze Messwerte, deren Werte ca. 13% der mittleren Nachweisgrenzen ausmachten).

Abbildung 7-2: Zusammenhang zwischen Anteil der Messwerte über der Erkennungsgrenze an der Gesamtzahl der Messungen in den drei Messprogrammen und dem Verhältnis des Mittelwertes der Messwerte zum Mittelwert der Nachweisgrenze (NWG)



Quelle: Autoren

7.6 Radionuklidspezifische Messwerte und Nachweisgrenzen bei Abwasser

7.6.1 Messverfahren

Um die in der Praxis der Überwachungsmessungen realisierten Verfahren und deren Bezug zu den tatsächlichen Radionuklidkonzentrationen im Abwasser bewerten zu können, wurden die aus der IMIS-Datenbank herausgezogenen Datensätze (siehe Kapitel 7.1) hinsichtlich der Messverfahren, der Messwerte und der Nachweisgrenzen genauer analysiert.

Die von den Messstellen verwendeten Messverfahren beruhen auf den vom BMUV als „Loseblattsammlung“ veröffentlichten Messanleitungen ((AKU, 2020), ausgearbeitet vom AKU des Fachverbandes für Strahlenschutz e.V.), wobei ggf. auch direkt auf Messanleitungen des AKU zurückgegriffen werden kann.

Die Verfahren wurden primär entwickelt, um Ableitungen von Radionukliden aus (kerntechnischen) Anlagen zu überwachen. Für die Messprogramme nach AVV-IMIS sind die in Tabelle 7-7 zusammengestellten Messanleitungen zu verwenden.

Tabelle 7-7: Zusammenstellung der Messanleitungen für Radionuklide im Abwasser im Rahmen der IMIS-Messprogramme RMP (Routinemessprogramm) und IMP (Störfall-/Intensivmessprogramm)

Messanleitung	Stand (jjjj-mm)	RMP	IMP	IMIS- Kennung		
				MMT-ID	MMT	Messgröße
H-γ-SPEKT-AWASS-01	2000-10	X	X	G1	Gamma-spektrometrie	(+)
H-Sr-89/Sr-90-AWASS-01	1992-09	X		BS	Sr-90-Bestimmung	Sr-90
H-Sr-89/Sr-90-AWASS-02	1994-12		X	BX	Sr-Schnellbestimmung	Sr-90
H-α-SPEKT-AWASS-01	1992-09	X		A1	Alphaspektrometrie	(*)
H-α-SPEKT-AWASS-03	1992-09	X		A2	Gesamt-Alpha	G-Alpha
H-α-SPEKT-AWASS-04	1994-12		X			(Pu)
H-U/Pu/Am-AWASS-01	2000-10	X	X	AP; AU	Pu-Bestimmung; U-Bestimmung	
Ohne Angabe				G2, GI, S4, E1, E4, BH		

(+) Alle Gammastrahler, soweit ausgewiesen.

(*) Am-241, Cm-242, Cm-243/44, Cm-244, Pu-236, Pu-238, Pu-239, Pu-239/40, U-232, U-234, U-235, U-238

Quelle: Autoren

Angaben zu den in der Praxis genutzten Messanleitungen mit Messverfahren (gem. IMIS-Kennung) sind in Tabelle 7-7, Tabelle 7-8 und Tabelle 7-9 zusammengestellt. Nicht mit aufgenommen sind Tritium (H-3), das ausschließlich mittels Betamessung (IMIS-Kennung BH) bestimmt wird sowie die Parameter G-Alpha (IMIS-Kennung A2) und G-Beta (IMIS-Kennung B2, nur einmal bestimmt). Die bei weitem überwiegende Zahl der ausgewiesenen Radionuklide wurde mittels Gamma-Spektrometrie (IMIS-Kennung G1) bestimmt. Bei Radionukliden, die mit unterschiedlichen Verfahren bestimmt wurden, kann die Nachweisgrenze sehr unterschiedlich ausfallen, was bei der statistischen Auswertung von Messdaten zu Verzerrungen (Bias) führen kann.

Tabelle 7-8: Zusammenstellung der Radionuklide im Abwasser, die ausschließlich mit einem Messverfahren bestimmt wurden. * - Radionuklid wurde einmal mit anderen Verfahren (IMIS: S4) bestimmt

Ausschließlich mit Gamma-Spektrometrie (IMIS-Kennung G1) bestimmte Radionuklide							
Ac-228	Ce-141	Eu-152	K-40*	Nd-147	Sb-124	Te-123m	Tl-208
Ag-110m	Ce-143	Eu-154	Kr-85	Np-239	Sb-125	Te-129	Y-88
Ag-111	Ce-144*	Eu-155	La-140	Pa-234m	Sb-127	Te-129m	Y-92
Ba-133	Co-57	Fe-59	La-141	Pb-210	Sb-129	Te-131m	Y-93
Ba-140	Co-58	Hf-181	Lu-177	Pb-212	Se-75	Te-132	Zn-65
Be-7	Co-60*	Hg-203	Mn-54	Pb-214	Sn-113	Th-228	Zr-95
Bi-212	Cr-51	I-132	Mo-99	Pm-151	Sr-85	Th-231	Zr-97
Bi-214	Cs-134*	I-133	Na-22	Ra-226	Sr-91	Th-232	
Cd-109	Cs-136	I-135	Nb-95	Ru-103*	Sr-92	Tl-201	
Ce-139	Cs-137*	In-111	Nb-97	Ru-106	Tc-99m	Tl-202	
Ausschließlich mit Alphaspektrometrie (IMIS-Kennung A1) bestimmte Radionuklide							
Cm-242	Pu-236						
Cm-24344	Pu-239						
Cm-244	U-232						

Quelle: Autoren

Tabelle 7-9: Zusammenstellung aller Radionuklide, die mit mehreren Messverfahren bestimmt wurden

	Verfahren (IMIS-Kennung)				Anmerkungen
Am-241	A1		G1		
I-131			G1; G1; G2	E4	
Pu-238	A1; AP				
Pu-23940	A1; AP				
Sr-89		BX, BS*			• BS nur einmal vorkommend
Sr-90		BS, BX			
U-234	A1; AU			E1	Eignung von E1 („Elementbestimmung“) für die Parameter U-234, U-235 fraglich
U-235	A1; AU	G1		E1	
U-238	A1; AU	G1		E1	

Quelle: Autoren

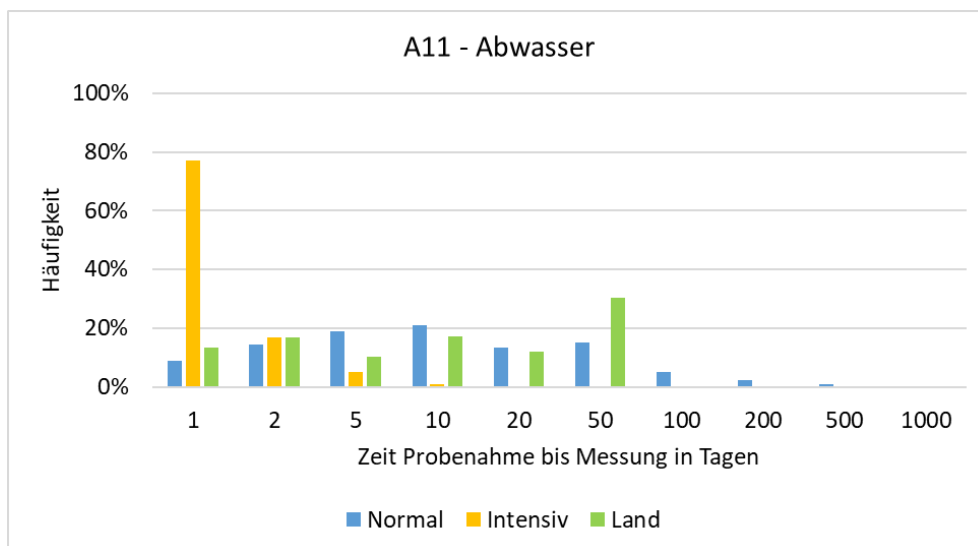
Da bei kurzlebigen Radionukliden die Lagerzeit der Proben nach der Probenahme großen Einfluss auf die Messergebnisse haben kann, wurde dieser Parameter für die drei Messprogramme und die

zwei häufigsten Messverfahren ausgewertet. Als Lagerzeit wurde die Zeitdifferenz zwischen Probenahme (soweit spezifiziert: Ende der Probenahme) und Messbeginn berechnet. Die Ergebnisse dieser Auswertung sind in Abbildung 7-3 und Abbildung 7-4 dargestellt.

Abbildung 7-3 zeigt, dass – wie zu erwarten – die Lagerzeit der Proben im Störfall-/Intensivbetrieb nur wenige Tage beträgt, während im Normal-/Routinebetrieb Lagerzeiten von 1 Woche bis zu 1 Monat sehr häufig sind. In den Messprogrammen „Land“ wurden 30% der Messungen erst im Zeitfenster zwischen 30 und 50 Tagen nach Probenahme ausgeführt.

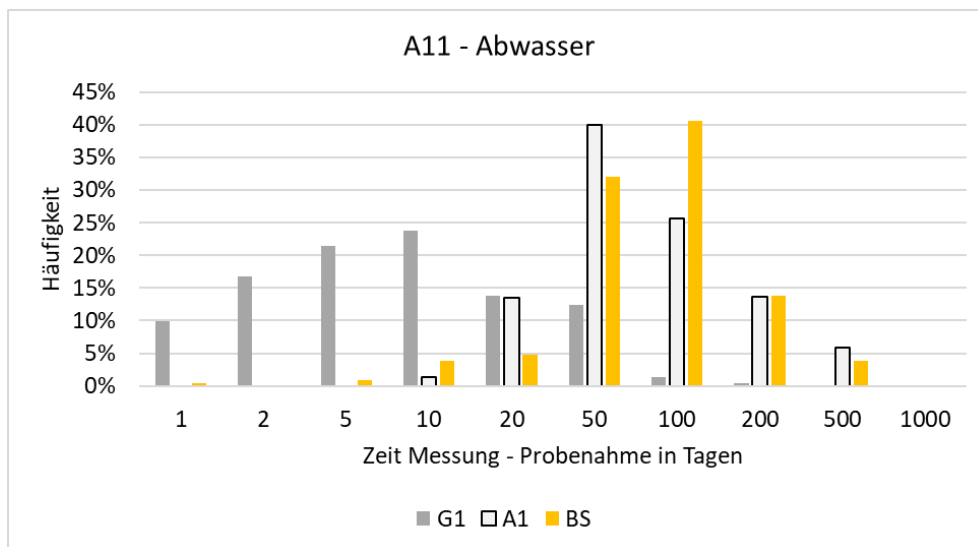
In Abbildung 7-4 sind die Häufigkeitsverteilungen der Lagerzeiten für die Messverfahren Gamma-spektrometrie (G1), Alphaspektrometrie (A1) und Betaspektrometrie (BS, außer einmal Sr-89 nur Sr-90) dargestellt. Ausgewertet wurden hier nur die Daten des Normal-/Routinebetriebs und der Messprogramme „Land“. Diese Auswertung zeigt, dass die hinsichtlich der Probenvorbereitung einfacheren gammaspektrometrische Messungen nach deutlich kürzeren Lagerzeiten ausgeführt werden als alpha- oder betaspektrometrische. Allerdings kommen auch bei gammaspektrometrischen Messungen Lagerzeiten der Proben von mehr als 1 Monat vor.

Abbildung 7-3: Häufigkeitsverteilungen der Lagerzeit der Proben vor der Messung bei den drei Messprogrammen in den Messprogrammen „Normal-/Routinebetrieb“, „Land“ und „Störfall-/Intensivbetrieb“



Quelle: Autoren

Abbildung 7-4: Häufigkeitsverteilungen der Lagerzeit der Proben vor der Messung bei den Messverfahren Gammaskpektrometrie (G1), Alphaspektrometrie (A1) und Betaspektrometrie (BS) in den Messprogrammen „Normal-/Routinebetrieb“ und „Land“



Quelle: Autoren

7.6.2 Probenahmeart

Die in den Messprogrammen untersuchten Abwasserproben wurden als Einzel- (E), Misch- (M) oder Sammelpuben entnommen. Um zu prüfen, ob die Probenart Einfluss auf die Messergebnisse hat, wurden für ausgewählte Radionuklide statistische Kenngrößen der Messwerte bei unterschiedlicher Probenahmeart ermittelt. Ausgewertet wurden nur Daten aus dem Messregime „Normal-/Routinebetrieb“.

Ein Datensatz, der von allen Messstellen regelmäßig ausgewiesen wurde und der auch größtenteils Messwerte über der Erkennungsgrenze enthält ist der Datensatz vom K-40. Für diesen Datensatz sind in Tabelle 7-10 die auf die Werte des gesamten Datensatzes bezogenen relativen Aktivitätskonzentrationen von K-40 aufgeführt. Der (scheinbare) Unterschied zwischen Messergebnissen der Einzelproben und der Mischproben beläuft sich nach diesen Daten auf ca. 20% (112% vs. 88% beim Median). Eine genauere Prüfung zeigt allerdings, dass dieser Unterschied nicht auf die Probenahmeart zurückzuführen ist. Vielmehr wurden alle 224 Mischproben („M“) in Niedersachsen entnommen. Der Unterschied der Ergebnisse widerspiegelt daher eher regionale Unterschiede als Einflüsse der Probenahmeart.

Da allerdings bei kurzlebigen Radionukliden die Dauer der Probenahme Einfluss auf das Ergebnis haben kann, wurde analog zum K-40 der Datensatz von I-131 untersucht. Das Ergebnis ist in Tabelle 7-11 zusammengestellt. Während die Kenngrößen für die Probenahmeart „E“ und „S“ weitgehend übereinstimmen, fällt die Probenahmeart „M“ durch niedrigere Messergebnisse auf. Der Unterschied beträgt bei den Medianwerten fast 50% und könnte damit als erheblich bewertet werden. Allerdings stammen auch hier alle 109 Proben der Probenahmeart „M“ aus Niedersachsen. Ein Einfluss der Probenahmeart kann damit nicht belegt werden. Auch weitere Prüfungen von Ergebnissen anderer

Radionuklide ergaben keine Ergebnisse, die signifikante Einflüsse der Probenahmeart auf die Messergebnisse erkennen lassen.

Tabelle 7-10: Anzahl der Proben aus unterschiedlichen Probenarten sowie zugehörige statistische Kenngrößen normiert auf den gesamten Datensatz für den Parameter K-40

Probenart	E	M	S	Gesamt
Anzahl	854	224	500	1578
Unt. Quartil	112%	105%	82%	100%
Median	112%	88%	87%	100%
Ob. Quartil	110%	81%	95%	100%

Quelle: Autoren

Tabelle 7-11: Anzahl der Proben aus unterschiedlichen Probenarten sowie zugehörige statistische Kenngrößen normiert auf den gesamten Datensatz für den Parameter I-131

Probenart	E	M	S	Gesamt
Anzahl	586	109	115	810
Unt. Quartil	102%	76%	113%	100%
Median	109%	64%	100%	100%
Ob. Quartil	109%	60%	90%	100%

Quelle: Autoren

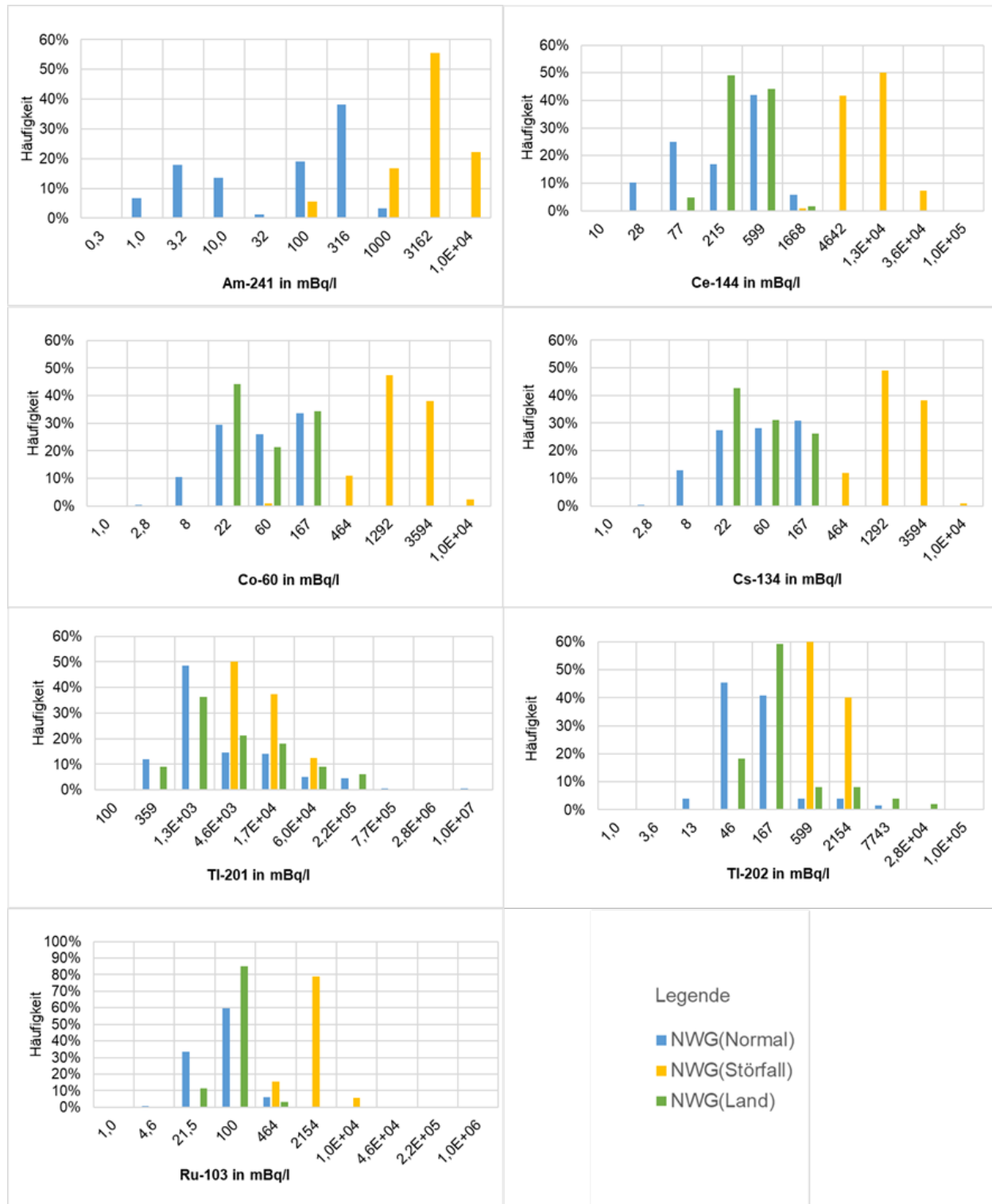
7.6.3 Analyse von Nachweisgrenzen (Radionuklide mit weniger als 3% Messwerten)

Eine wichtige Information zur Eignung von Messverfahren ist die im Verfahren ausgewiesene Nachweisgrenze. Ziel der hier durchgeführten Auswertung ist es, die Größenordnungen der im IMIS-Datensatz ausgewiesenen Nachweisgrenzen (NWG) darzustellen, um sie hinsichtlich ihrer radiologischen Relevanz bewerten zu können. Da die Werte der Nachweisgrenzen genau wie die der gemessenen Aktivitätskonzentrationen über Größenordnungen variieren, wurde die Abszisse logarithmisch in 10 Klassen geteilt. Die in den Diagrammen auf der Abszisse angegebenen Werte geben jeweils die Klassenobergrenze der spezifischen Aktivität bzw. Aktivitätskonzentration an. Der Anfangspunkt der Abszisse wurde aus dem Minimalwert des Datensatzes ermittelt, der Endpunkt der Skala aus dem Maximalwert des Datensatzes. Um die Skalen möglichst mit ganzen Zahlen darstellen zu können, wurden (bis auf wenige Ausnahmen wie H-3, K-40) alle Werte in mBq/l umgerechnet.

Für die sieben Radionuklide, für die bei mehr als 100 Messungen keine Messwerte ausgewiesen wurden, sind die Häufigkeitsdiagramme in Abbildung 7-5 dargestellt. Bezug für die Häufigkeit ist die Zahl der Messungen, wobei jedes Messregime für sich betrachtet wird. Bei allen in Abbildung 7-5 dargestellten Radionukliden variieren die Nachweisgrenzen über ca. 4 Größenordnungen. Dabei

ähneln sich die Messregime „Normal-/Routinebetrieb“ und „Land“, das Messregime „Störfall-/Intensivbetrieb“ weist deutlich höhere Nachweisgrenzen auf.

Abbildung 7-5: Häufigkeitsverteilungen von Nachweisgrenzen (NWG) für häufig ausgewiesene Radionuklide, für die keine Messwerte ausgewiesen sind.



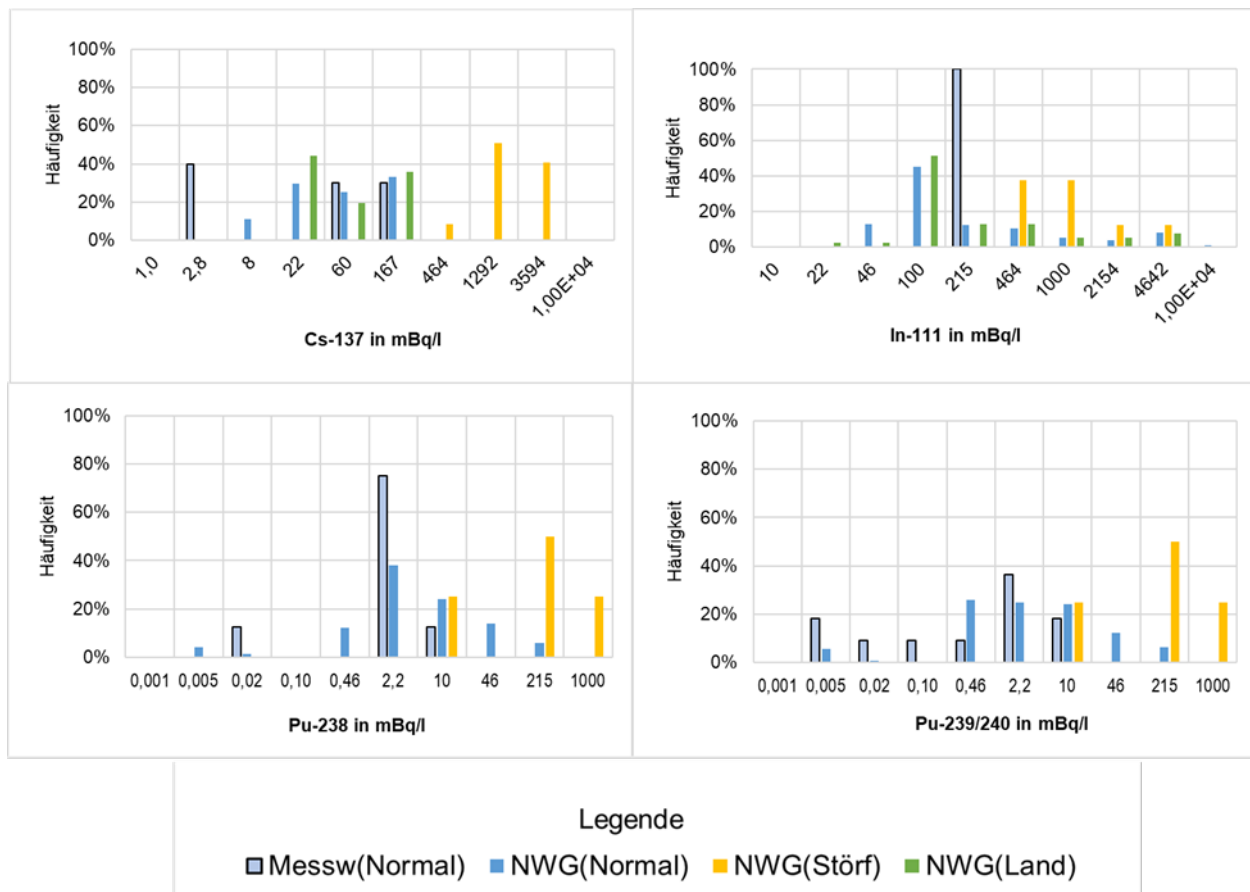
Quelle: Autoren

Für das Radionuklid **Am-241** zeigt das Histogramm der Nachweisgrenzen im Normal-/Routineprogramm einen Doppelpeak, der auf die beiden verwendeten Messverfahren Alphaspektrometrie (Peak bei 3,2 mBq/l) und Gamma-Spektrometrie (Peak bei 316 mBq/l) zurückgeführt werden kann. Im Störfall-/Intensivbetrieb liegen die meisten Nachweisgrenzen über 1000 mBq/l.

Für die Radionuklide **Ce-144, Co-60, Cs-134, Ru-103, Tl-201, Tl-202**: zeigt sich, dass die Nachweisgrenzen im Normal-/Routineprogramm und im Messprogramm „Land“ ähnlich sind, im Störfall-/Intensivbetrieb in der Regel aber deutlich höher ausfallen. Allerdings umfassen die Wertebereiche der Nachweisgrenzen im Normal-/Routineprogramm und im Messprogramm „Land“ zumeist mehr als eine Größenordnung. Da für diese Radionuklide Messwerte ohne besondere Vorkommnisse auch nicht zu erwarten sind, stellt sich die Frage, welche Information die Einträge der Nachweisgrenzen enthalten und ob derartige Einträge im bisher praktizierten Umfang nötig sind.

Ein ähnliches Bild zeigt sich für die Radionuklide Cs-137, In-111, Pu-238 und Pu-23940, für die bei deutlich mehr als 100 Messungen in weniger als 3% der Messungen Messwerte erhalten wurden. In Abbildung 7-6 sind Histogramme der Nachweisgrenzen dargestellt und mit den wenigen Messwerten verglichen. Zur besseren Erkennbarkeit sind die Häufigkeiten der Messwerte nicht auf die Zahl der Datensätze für Messungen, sondern die Gesamtzahl der Messwerte bezogen.

Abbildung 7-6: Häufigkeitsverteilungen von Nachweisgrenzen (NWG) und Messwerten (MW) für Radionuklide, für die nur wenige Messwerte ausgewiesen sind.



Quelle: Autoren

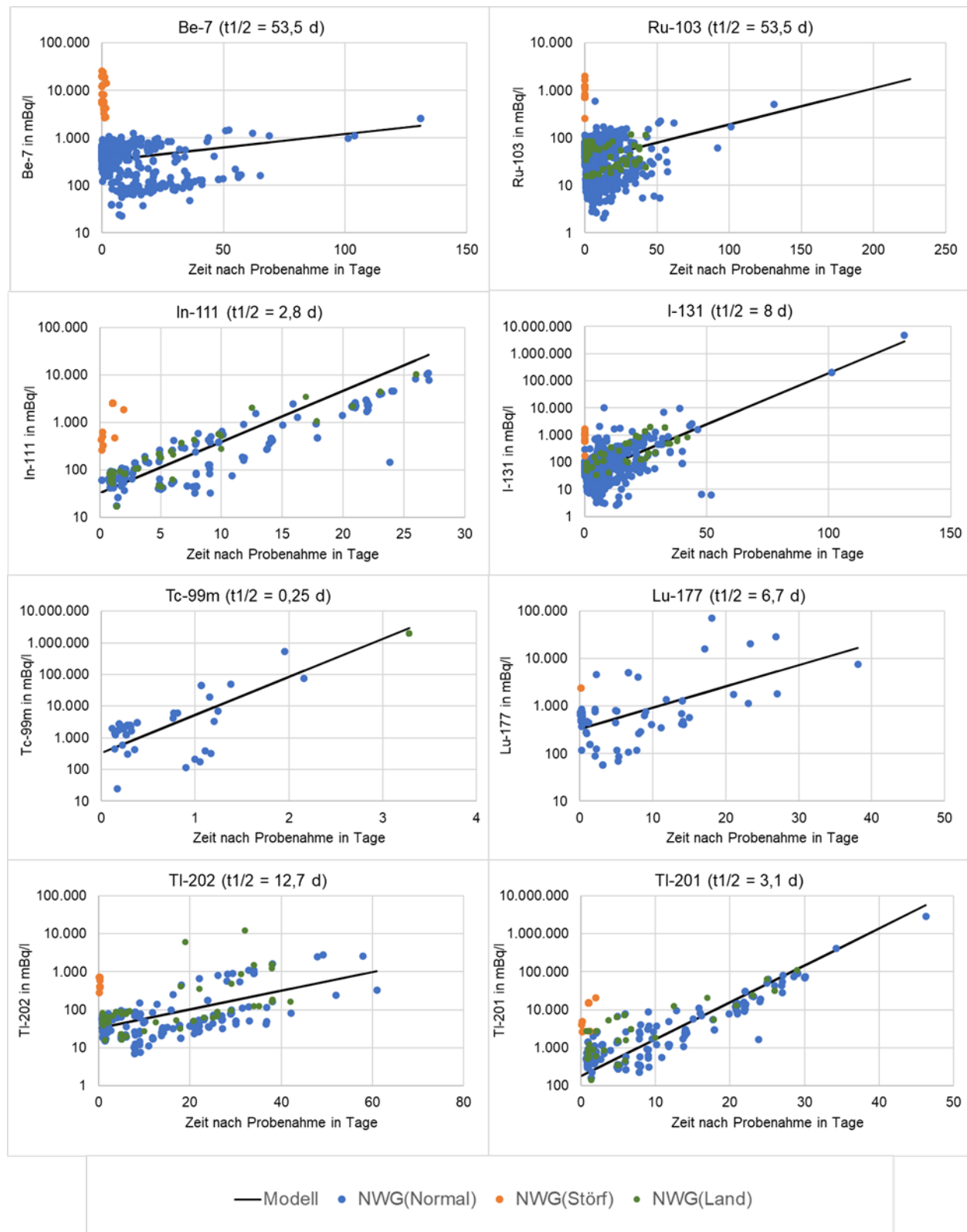
Betrachtet man die zu Abbildung 7-6 gehörenden Messwerte im Einzelnen, dann zeigt sich:

- Die gemessenen Cs-137-Aktivitätskonzentrationen im Bereich von unter 10 mBq/l stimmen praktisch mit den jeweils zugehörigen Nachweisgrenzen überein. Auch die beiden höchsten (jeweils aus Probenahmen im November 2022 in zwei regional weit entfernten Kläranlagen) gemessenen Konzentrationen von 92 mBq/l und 157 mBq/l übersteigen die zugehörige Nachweisgrenze nur um weniger als 32% bzw. 93%.
- Das nur einmal im Abwasser detektierte In-111 wird deutlich seltener als z.B. I-131 appliziert und daher ist bei den stichprobenhaften Beprobungen nicht durchgängig mit einem zum Probenahmezeitpunkt vorliegenden Eintrag auszugehen. Auch bei geringeren Nachweisgrenzen ist daher nur von sporadischen Nachweisen von In-111 im Abwasser auszugehen.
- Die Messwerte der Plutoniumisotope liegen alle im Bereich der Nachweisgrenzen, vielfach auch darunter (vgl. Tabelle 7-12). Bei einer Analytik mit Nachweisgrenzen unter 0,1 mBq/l könnte der Anteil der gemessenen Konzentrationen steigen und die Hintergrundbelastung damit besser erfasst werden.

Eine Auswertung der Datensätze zu den Nachweisgrenzen von Radionukliden mit Halbwertszeiten unter 60 Tagen zeigt Abbildung 7-7. Die eingezeichneten Modellgeraden sind rückgerechnete Zerfallskorrekturen mit den in den Diagrammen angegebenen Halbwertszeiten. Die Modellgeraden sind keine Regressionsgeraden, sondern wurden so in die Punktwolke gelegt, dass die nach größerer Lagerzeit ausgewiesenen Werte annähernd getroffen werden.

Man erkennt in den Diagrammen der Abbildung 7-7, dass eine Probenlagerung die Nachweisgrenze für kurzlebige Radionuklide so nach oben verschiebt und im Messregime „Störfall-/Intensivbetrieb“ die Zeiten zwischen Probenahme und Messung kurz sind. Bei längerer Lagerzeit ist aber zu fragen, ob solche Einträge extremer Nachweisgrenzen wie z.B. bei I-131 in eine Datenbank überhaupt sinnvoll sind.

Abbildung 7-7: Zusammenhänge zwischen Nachweisgrenzen und Lagerzeit der Proben vor der Messung.



Quelle: Autoren

7.6.4 Nachweis- und Erkennungsgrenzen

Um zu prüfen, bei welchen Radionukliden die Messverfahren besonders häufig an die Grenzen der Nachweisbarkeit gelangen, wurden für das Messregime „Normal-Routinebetrieb“ Datensätze mit Messwerten kleiner als die ausgewiesenen Nachweisgrenzen ermittelt und nuklidbezogen ausgewertet. Der Anteil der Messwerte, für die auch Nachweisgrenzen angegeben sind, ist in allen Fällen so groß, dass für die Berechnung von Anteilen der Bezug auf diese Werte hinreichend aussagekräftig ist.

Bei insgesamt 506 Datensätzen von 20 Radionukliden ergab die Abfrage Messwerte unter der Nachweisgrenze. Die größte Anzahl dieser Messwerte (292) liegt mehr als 20% unter der Nachweisgrenze bzw. ihr Wert beträgt weniger als 80% der Nachweisgrenze. Für Cr-51 liegt nur ein einziger Datensatz vor, bei dem der Messwert weniger als 20% unter der Nachweisgrenze liegt.

Die in der Datenbank mit Messwerten aufgeführten 19 Radionuklide, deren Messwerte weniger als 80% der Nachweisgrenze betragen, sind in Tabelle 7-12 zusammengestellt. Bei solchen Messwerten sollte eine Interpretation der Ergebnisse die Messunsicherheit besonders beachten.

Für die meisten in Tabelle 7-12 zusammengestellten Radionuklide ist demnach der Anteil solcher besonders unsicherer Messwerte unter 20%. Die Messverfahren sind damit hinreichend empfindlich, um die im Abwasser vorhandenen Radionuklidaktivitäten zu erfassen. Bei den in Tabelle 7-12 durch farbige Hervorhebung gekennzeichneten Radionukliden Bi-212 (nur 2 Werte!), den Plutoniumisotopen Pu-238 und Pu-23940 sowie bei Ra-226 ist der Anteil dieser unsicheren Messwerte mit über 50% allerdings erheblich. Ob das ein Grund für die auffällig hohen Ra-226-Konzentrationen in Bezug zu den anderen Radionukliden der U-238-Zerfallsreihe ist (siehe Abbildung 7-14), kann aus der Datenanalyse selbst nicht beantwortet werden.

Wie im Kapitel 7-3 (Tabelle 7-6) gezeigt, ist zumindest für einige Messwerte mit den hier geprüften Relationen zur Nachweisgrenze davon auszugehen, dass Messwerte oder Nachweisgrenzen nicht plausibel sind.

Tabelle 7-12: Radionuklide mit Messwerten < 80% der Nachweisgrenze im Normal-/Routinebetrieb

	Anzahl Messwerte	Anzahl Messwerte mit NWG	Anzahl Messwerte < 0,8 NWG	Anteil <0,8 NWG / Messwerte		Anzahl Messwerte	Anzahl Messwerte mit NWG	Anzahl Messwerte < 0,8 NWG	Anteil <0,8 NWG / Messwerte
Ac-228	5	4	1	25%	Pu-238	8	8	4	50%
Be-7	18	13	2	15%	Pu-23940	11	11	8	73%
Bi-212	3	2	2	100%	Ra-226	13	12	6	50%
Bi-214	60	50	1	2%	Sr-90	234	196	17	9%
Cs-137	10	10	1	10%	Tc-99m	32	27	2	7%
H-3	36	32	2	6%	Tl-208	12	9	2	22%
I-131	813	643	41	6%	U-234	318	269	15	6%
K-40	1580	1323	147	11%	U-235	71	66	19	29%
Lu-177	55	43	3	7%	U-238	311	258	15	6%
Pb-212	50	37	4	11%					..

Quelle: Autoren

Einen Vergleich der Nachweisgrenzen für Messungen im Störfall-/Intensivbetrieb bzw. im Landesmessprogramm mit denen im Normal-/Routinebetrieb enthält Abbildung 7-8. Die Diagramme zeigen, dass die Nachweisgrenzen im Störfall-/Intensivbetrieb bei den meisten Radionukliden um mindestens eine, teilweise auch zwei oder mehr Größenordnungen höher als im Normal-/Routinebetrieb liegen. Nur bei den nuklearmedizinischen Radionukliden wurden teilweise sogar niedrigere Nachweisgrenzen im Störfall-/Intensivbetrieb als im Normal-/Routinebetrieb erreicht. Grund dafür dürften die kürzeren Zeiten zwischen Probenahmen und Messung im Störfall-/Intensivbetrieb sein (siehe Abbildung 7-7).

Abbildung 7-8: Verhältnis von Nachweisgrenzen für Messungen im Störfall-/Intensivbetrieb bzw. im Landesmessprogramm mit denen im Normal-/Routinebetrieb



Quelle: Autoren

7.6.5 Nuklearmedizinisch genutzte Radionuklide

Von den nuklearmedizinisch genutzten Radionukliden liegen für Tc-99m, I-131 und Lu-177 Datensätze mit statistisch auswertbaren Messwerten vor. Die Häufigkeitsverteilung dieser Messwerte und der Nachweisgrenzen zeigen die Diagramme in Abbildung 7-9. Für das Radionuklid I-131 wurde dabei die Verteilungen für die Messverfahren G1, G1 und G2 (siehe Tabelle 7-7) separat dargestellt. Bei der Interpretation der Diagramme ist zu beachten:

- Bezugswert für die Häufigkeit der Messwerte ist die Gesamtzahl der Datensätze (Messungen) für das jeweilige Radionuklid.

- Messwerte setzen voraus, dass die zugehörige Nachweisgrenze höchstens in der gleichen Intervallklasse oder in einer Intervallklasse mit geringerer Konzentration liegt.

Abbildung 7-9: Häufigkeitsverteilungen von Messwerten (MW) und Nachweisgrenzen (NWG) von nuklearmedizinisch genutzten Radionukliden im Abwasser in den drei Messprogrammen



Quelle: Autoren

Da die hier betrachteten Radionuklide Halbwertszeiten von wenigen Stunden (Tc-99m) bis wenigen Tagen (Lu-177, I-131) aufweisen, hängen die Nachweisgrenzen stark von der Lagerzeit der Proben ab (siehe Abbildung 7-9, Abbildung 7-7). Es ist daher davon auszugehen, dass Abwasserproben, bei denen aufgrund der Lagerzeit nur ein Messergebnis unter der Erkennungsgrenze ausgewiesen werden konnte, trotzdem das geprüfte Radionuklid in den üblicherweise vorkommenden Wertebereichen enthalten haben können.

Die Diagramme der Abbildung 7-9 machen deutlich:

- Die Nachweisgrenzen bei Messungen im Störfall-/Intensivbetrieb reichen nicht aus, um die allgemeine Kontamination des Abwassers mit den nuklearmedizinischen Radionukliden zu

erfassen. Da Messungen im Störfall-/Intensivbetrieb andere Ziele verfolgen, bedeutet diese Feststellung kein Defizit des Messprogramms. Allerdings sollte bei der Interpretation der Ergebnisse dieser Sachverhalt bekannt sein und beachtet werden.

- Im Normal-/Routinemessprogramm überlappen sich die Verteilungen von Messwerten und Nachweisgrenzen stark. Die Ausweisung eines Messergebnisses hängt damit, vor allem bei Tc-99m und Lu-177 stark von der jeweils erreichten Nachweisgrenze ab. Auch dieser Sachverhalt ist bei der Interpretation von Messergebnissen zu beachten.

Für die weitere Einordnung der Daten sind statistische Kennziffern der Datensätze in Tabelle 7-13 zusammengestellt und in Abbildung 7-10 als Box-Whisker-Plot dargestellt.

Die statistischen Kenngrößen wurden bezogen auf Messwerte über der Erkennungsgrenze berechnet. Zur Einordnung wird in Tabelle 7-13 die Anzahl der Datensätze zum jeweiligen Parameter mit angegeben. Die Differenz der Anzahl der Datensätze und der Anzahl der Messwerte gibt die Anzahl der Messergebnisse unter der Erkennungsgrenze an. Damit können ggf. die oberen Quantilwerte mit Bezug auf alle Datensätze korrigiert werden.

Die Angaben zu den Datensätzen in Tabelle 7-13 zeigen, dass für Tc-99m und Lu-177 offensichtlich vorrangig dann Messwerte an IMIS gemeldet wurden, wenn positive Detektionen vorlagen. Bezieht man die ermittelten Kenngrößen für Tc-99m und Lu-177 auf die Anzahl der Datensätze von I-131, entsprechen bereits die Medianwerte wesentlich höheren Quantilen von weit über 90%. Auch beim I-131 entspricht der Medianwert bezogen auf alle 2496 Datensätze dem 84%-Quantil, und die 200 mBq/l des oberen Quartils der Messwerte entsprechen für den gesamten Datensatz dem 92%-Quantil.

Tabelle 7-13: Statistische Kennziffern der Datensätze von nuklearmedizinisch genutzten Radionukliden im Abwasser. Messprogramm: Normal-/Routinebetrieb

	Tc-99m	I-131	Lu-177
Anzahl Datensätze	32	2496	67
Anzahl Messwerte	32	810	54
Einheit	mBq/l	mBq/l	mBq/l
Min	170	5,5	45
Unteres Quartil	449	57	639
Mittelwert	53.408	183	8.224
Geomittel	2.430	108	2.560
Median	3.060	104	2.795
Oberes Quartil	5.918	200	10.600
Oberer Whisker	1.4120	414	25.541
90%-Quantil*	36.040	400	17.050
Max	1.490.000	3230	82.100
Ausreißer	Ja	Ja	ja

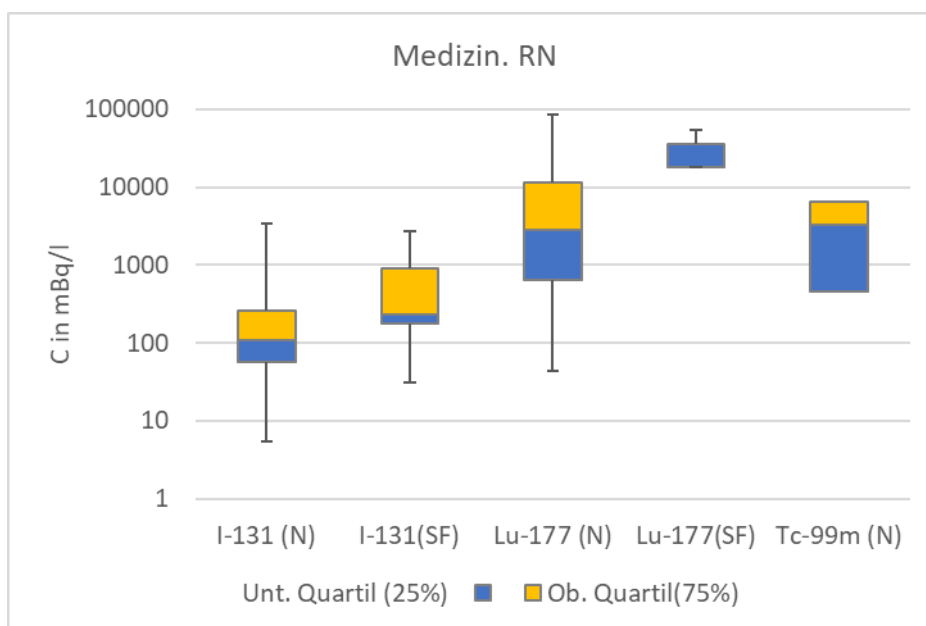
*grün: 90%-Quantil < oberer Whisker; orange: 90%-Quantil > oberer Whisker

Quelle: Autoren

Zur Prüfung auf Ausreißer im Datensatz wird der Obere Whisker eines Box-Plots verwendet. Wie die Daten zeigen, sind die Maximalwerte für alle drei hier geprüften Radionuklide als Ausreißer zu bewerten. Beim Tc-99m ist sogar mehr als das gesamte 90%-Quantil als Ausreißer bewertet.

Durch diese Ausreißer sind die arithmetischen Mittelwerte beim Tc-99m und beim Lu-177 stark erhöht und folglich nicht geeignet, um die realen Konzentrationen zu charakterisieren.

Abbildung 7-10: Box-Whisker-Plot der Messwerte von nuklearmedizinischen Radionukliden im Abwasser (N – Normal-/Routinebetrieb; SF – Störfall-/Intensivbetrieb)



Quelle: Autoren

Insgesamt erlauben die vorliegenden Messwerte der nuklearmedizinisch genutzten Radionuklide im Abwasser eine Abschätzung von plausiblen Wertebereichen und können damit eine Grundlage für Plausibilitätschecks zur Qualitätssicherung in der Zukunft sein. Inwieweit die Plausibilitätsprüfung durch orts- und anlagenbezogene Werte präzisiert werden kann, wird im Kapitel 7.8 untersucht.

7.6.6 Radionuklide des Fallouts

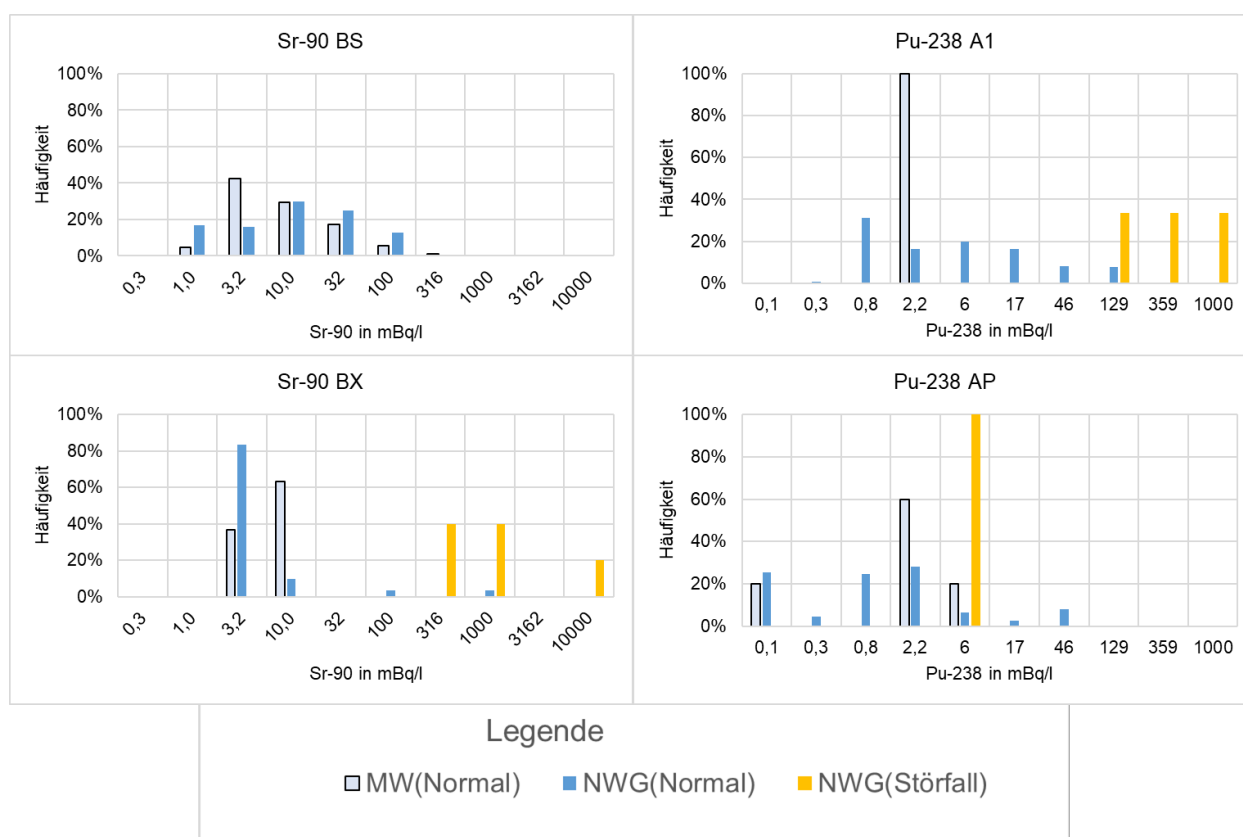
Von den Radionukliden des Fallouts aus den Kernwaffentests der frühen 1960er Jahre und dem Tschernobyl-Fallout wurden von Cs-137 nur 10 Messergebnisse erhalten, deren Häufigkeitsverteilung in Abbildung 7-6 mit enthalten ist. Besser auswertbare Daten liegen für Sr-90 und Pu-238 vor. Die Häufigkeitsverteilungen der Messwerte und Nachweisgrenzen für diese Radionuklide sind in Abbildung 7-11 dargestellt. Auch diese Diagramme zeigen, dass im Störfall-/Intensivbetrieb die Hintergrundbelastungen nicht erfasst werden und die Nachweisgrenzen im Normal-/Routinebetrieb im Bereich der Messwerte liegen.

In den Diagrammen sind außerdem die unterschiedlichen Messverfahren getrennt dargestellt. Die Auswertung zeigt, dass Pu-238 vor allem mit dem Verfahren „A1“ (Alphaspektrometrie) ermittelt wurde (357-mal gegenüber 111-mal Verfahren „AP“ – siehe Tabelle 7-7). Durch die niedrigeren Nachweisgrenzen im Verfahren AP wurden 5 Messwerte über der Erkennungsgrenze ermittelt (in 4,5% der Messungen), während es bei A1 nur 3 Messwerte (0,8% der Messungen) gab. Die gemessenen Pu-238 Aktivitätskonzentrationen beider Verfahren stimmen aber gut überein (Mittelwert AP: 1,37 mBq/l; Mittelwert A1: 1,24 mBq/l).

Bei der Bestimmung von Sr-90 wird überwiegend das Verfahren „BS“ (Betaspektrometrie) verwendet (443 Datensätze). Das Verfahren „BX“ (siehe Tabelle 7-7) wird deutlich weniger eingesetzt (35

Datensätze), allerdings wurden alle Messungen im Störfall-/Intensivbetrieb mit diesem Verfahren ausgeführt. Im Normal-/Routinebetrieb sind die Ergebnisse beider Verfahren gleichwertig. Es ergeben sich ähnliche Anteile von Messwerten über der Erkennungsgrenze (BS: 49% der Messungen; BX 54% der Messungen) und auch die Mittelwerte (BS: 10,4 mBq/l; BX: 4,6 mBq/l) liegen in einer ähnlichen Größenordnung.

Abbildung 7-11: Häufigkeitsverteilungen von Messwerten (MW) und Nachweisgrenzen (NWG) von Fallout-Radionukliden im Abwasser in den unterschiedlichen Messprogrammen. Kürzel hinter den Nuklidsymbolen stehen für die Messverfahren. Erläuterungen s. Textteil



Quelle: Autoren

Für die weitere Einordnung der Daten sind in Tabelle 7-14 statistische Kennziffern der Datensätze zusammengestellt. Hier zeigt sich, dass beim Sr-90 der Mittelwert bei den Messungen im Verfahren BS durch Ausreißerwerte erhöht ist und die beiden Messverfahren ansonsten sehr ähnliche Medianwerte und Geomittel liefern.

In Anbetracht der nur wenigen Messwerte wurde Pu-238 bei der Ermittlung der statistischen Kennziffern in Tabelle 7-14 nicht nach Messverfahren unterschieden.

Auch bei den statistischen Kennziffern der Tabelle 7-14 ist zu beachten, dass die Zahl der Datensätze ohne Messwerte über der Erkennungsgrenze erheblich ist.

Tabelle 7-14: Statistische Kennziffern der Datensätze von Fallout-Radionukliden im Abwasser. Messprogramm: Normal-/Routinebetrieb

	Sr-90 (BS)	Sr-90 (BX)	Cs-137	Pu-238	Pu-23940
Anzahl Datensätze	443	35	2690	464	429
Anzahl Messwerte	215	19	10	8	11
Einheit	mBq/l	mBq/l	mBq/l	mBq/l	mBq/l
Min	0,698	1,66	1,48	0,01	0,002
Unteres Quartil	2,00	2,89	1,99	0,87	0,05
Mittelwert	10,40	4,63	42,4	1,32	1,24
Geomittel	4,68	4,16	14,2	0,76	0,19
Median	3,48	4,78	24,2	1,17	0,48
Oberes Quartil	9,82	5,38	62,0	1,63	1,45
Oberer Whisker	21,6	9,1	152	2,77	3,53
90%-Quantil*	21,6	7,51	98,6	2,30	4,42
Max	184,0	9,5	157	3,0	4,75
Ausreißer	ja	ja	Ja	ja	ja

*grün: 90%-Quantil < oberer Whisker; orange: 90%-Quantil > oberer Whisker

Quelle: Autoren

Insgesamt erlauben die vorliegenden Messwerte der Fallout-Radionuklide im Abwasser eine Abschätzung von plausiblen Wertebereichen nur beim Sr-90 und mit Einschränkungen bei den Plutoniumisotopen. Für Cs-137 sind trotz zahlreicher Auswertungen der Gammaskpektren hinsichtlich dieses Radionuklids die wenigen Messwerte über der Erkennungsgrenze nicht hinreichend, um eine Hintergrundbelastung auch nur grob zu quantifizieren.

Die hier ausgewiesenen Wertebereiche für Sr-90 und mit Einschränkungen für die Plutoniumisotope können damit eine Grundlage für Plausibilitätschecks zur Qualitätssicherung in der Zukunft sein. Inwieweit die Plausibilitätsprüfung durch orts- und anlagenbezogene Werte präzisiert werden kann, wird im Kapitel 7.8 untersucht.

7.6.7 Natürlich vorkommende Radionuklide

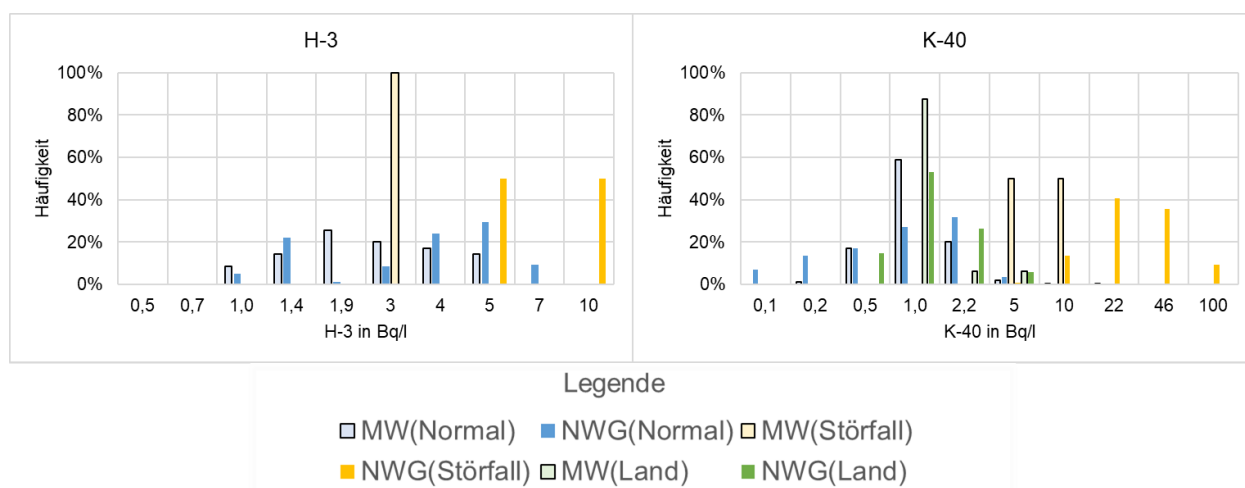
Bei den natürlich vorkommenden Radionukliden sind Tritium (H-3) und K-40 besondere Indikatoren. Tritium ist bei Werten über dem allgemeinen Niederschlagsniveau (1 – 2 Bq/l) ein Indikator für technogenes Tritium. Eine „natürliche“ Referenzkonzentration für K-40 erhält man, wenn man eine durchschnittlich von Menschen ausgeschiedene Menge an Kalium von 4 g pro Tag mit einem durchschnittlichen Wasserverbrauch von Haushalten von ca. 130 l am Tag verdünnt. Mit der spezifischen Aktivität von K-40 im chemischen Element Kalium von 31,6 Bq/g errechnet sich eine K-40-Referenzkonzentration von ca. 1 Bq/l. Durch Anteile von Regenwasser und andere z.B.

kleingewerbliche Abwässer werden die Haushaltswässer verdünnt, so dass im Mittel mit etwas geringeren K-40-Konzentration gerechnet werden muss.

Die Häufigkeitsverteilungen der Messwerte und Nachweisgrenzen für diese Radionuklide sind in Abbildung 7-12 dargestellt. Die Häufigkeitsverteilung der K-40-Werte liegt im erwartbaren Schwankungsbereich von Referenzkonzentration $10^{\pm 0,5}$ Bq/l (bzw. 0,3 bis 3 Bq/l). Deutlich geringere Werte können auf Verdünnungen des kommunalen Abwassers mit Niederschlagswasser zurückzuführen sein. Deutlich höhere Werte, die auf industrielle Einleitungen hinweisen können, sind im Datensatz praktisch nicht enthalten.

Sowohl das Diagramm in Abbildung 7-12 als auch die statistischen Kenndaten in Tabelle 7-15 zeigen bei Tritium (H-3) Werte, die über dem Bereich der natürlichen H-3-Konzentrationen im Niederschlag liegen und auf Einflüsse von technogenem Tritium im Abwasser hinweisen (Diskussion im Kapitel 9).

Abbildung 7-12: Häufigkeitsverteilungen der Messwerte (MW) und Nachweisgrenzen (NWG) für H-3 und K-40 im Abwasser bei unterschiedlichen Messprogrammen



Quelle: Autoren

Tabelle 7-15: Statistische Kennziffern der Datensätze von H-3, K-40 und U-Isotopen im Abwasser. Messprogramm: Normal-/Routinebetrieb

	H-3	Be-7	K-40	U-238	U-234	U-235
Anzahl Datensätze	98	540	2690	481	480	489
Anzahl Messwerte	35	18	1578	310	318	70
Einheit	Bq/l	mBq/l	Bq/l	mBq/l	mBq/l	mBq/l
Min	0,80	23	0,102	0,033	0,052	0,010
Unteres Quartil	1,41	63	0,532	1,06	1,04	0,10
Mittelwert	2,18	161	0,851	7,90	8,28	3,65
Geomittel	1,97	116	0,729	2,51	2,94	0,38
Median	1,97	112	0,742	2,85	3,75	0,42
Oberes Quartil	2,82	229	0,990	7,70	9,00	1,26
Oberer Whisker	4,93	479	1,677	17,7	20,9	2,99
90%-Quantil*	3,70	306	1,31	15,0	18,3	2,01
Max	4,41	534	15,0	569	79	110
Ausreißer	nein	Ja	Ja	ja	Ja	ja

*grün: 90%-Quantil < oberer Whisker; orange: 90%-Quantil > oberer Whisker

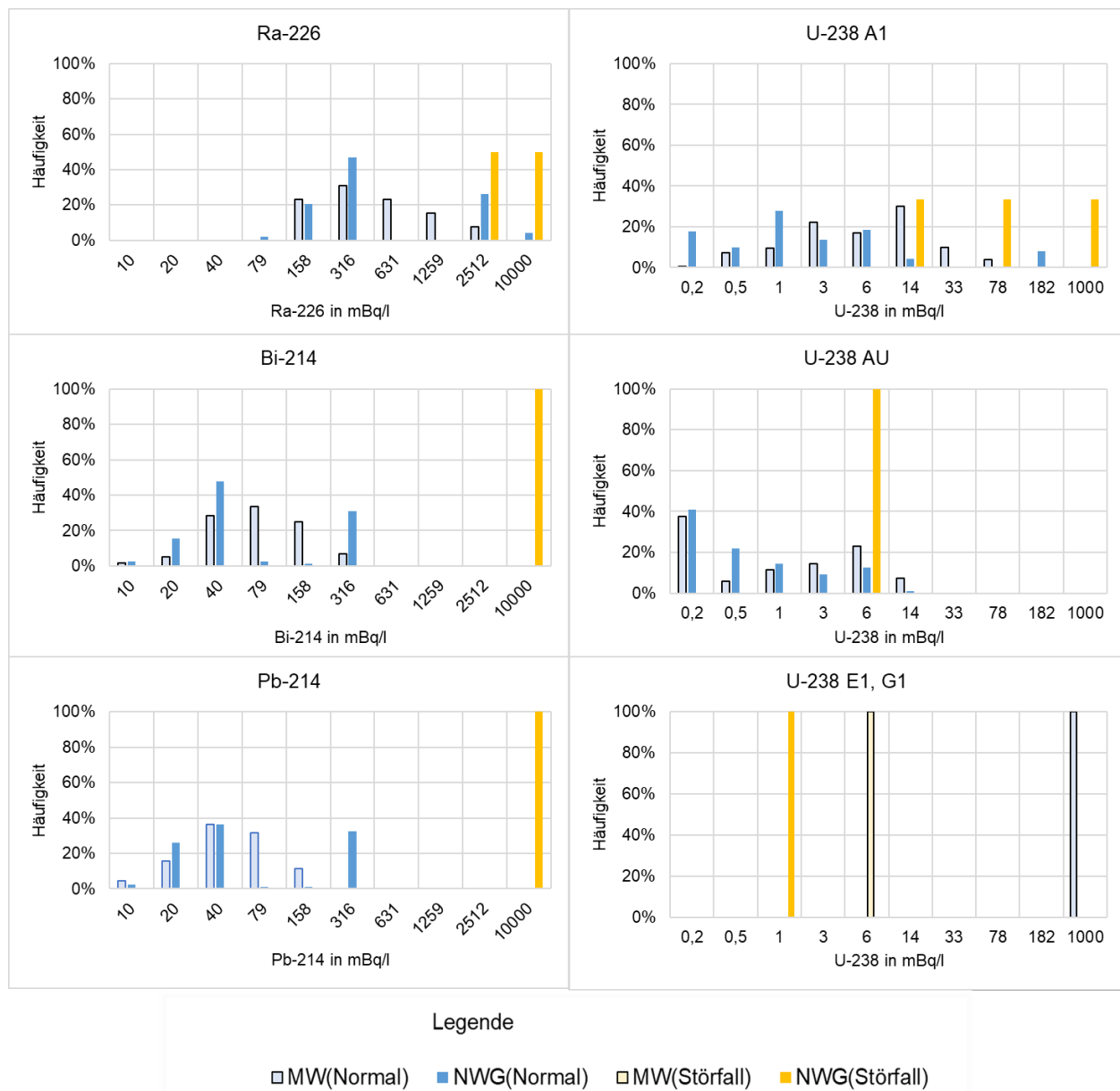
Quelle: Autoren

Für die Radionuklide der natürlichen Zerfallsreihen sind Auswertediagramme von Messwerten und Nachweisgrenzen in Abbildung 7-13 dargestellt. Die Diagramme machen deutlich, dass die Nachweisgrenzen bei Messungen im Störfall-/Intensivbetrieb nicht ausreichen, um die das Hintergrundniveau der von Radionukliden der U-238-Zerfallsreihe zu erfassen. Auch im Normal-/Routinebetrieb sind Nachweisgrenzen vielfach zu hoch, um das allgemeine Hintergrundniveau zuverlässig zu erfassen.

Statistische Kennziffern der zugehörigen Datensätze der Uranisotope U-238, U-234 und U-235 sind in Tabelle 7-15 mit aufgeführt. Die entsprechenden Daten der Zerfallsprodukte aus der U-238- bzw. Th-232-Zerfallsreihe enthält Tabelle 7-16.

Während der Median von U-238 mit 3,3 mBq/l praktisch identisch mit dem in (BfS, 2009) ausgewiesenen Median von U-238 im Trinkwasser in Deutschland ist, liegen die Medianwerte von Ra-226 und seinen Zerfallsprodukten (Tabelle 7-16) mehr als eine Größenordnung höher als der Medianwert von Ra-226 im Trinkwasser in Deutschland, der in (BfS, 2009) mit 5,6 mBq/l angegeben wird. Um die statistischen Kennziffern von Ra-226 und seinen Zerfallsprodukten in Anbetracht der Überlappungen von Nachweisgrenzen und Messwerten einordnen zu können, bedarf es einer detaillierteren Auswertung.

Abbildung 7-13: Häufigkeitsverteilungen der Messwerte (MW) und Nachweisgrenzen (NWG) für Radionuklide der U-238 Zerfallsreihe (Ra-226 und seine Tochternuklide sowie U-238) in den unterschiedlichen Messprogrammen. Kürzel hinter dem Nuklidsymbol geben Analyseverfahren an.



Quelle: Autoren

Tabelle 7-16: Statistische Kennziffern der Datensätze von Radionukliden der natürlichen Zerfallsreihen im Abwasser. Messprogramm: Normal-/Routinebetrieb

	Ra-226	Bi-214 [Ra-226]	Pb-214 [Ra-226]	Ac-228 [Ra-228]	Pb-212 [Ra-224]
Anzahl Datensätze	93	94	84	44	81
Anzahl Messwerte	13	60	44	5	50
Einheit	mBq/l	mBq/l	mBq/l	mBq/l	mBq/l
Min	106	5,9	6,2	16	8,7
Unteres Quartil	179	34	25	42	15
Mittelwert	483	69	41	328	85
Geomittel	326	53	34	111	44
Median	207	50	36	44	27
Oberes Quartil	564	91	47	651	133
Oberer Whisker	1142	178	81	1565	309
90%-Quantil*	1111	125	82	794	215
Max	1640	293	101	889	673
Ausreißer	Ja	Ja	ja	Nein	Ja

*grün: 90%-Quantil < oberer Whisker; orange: 90%-Quantil > oberer Whisker

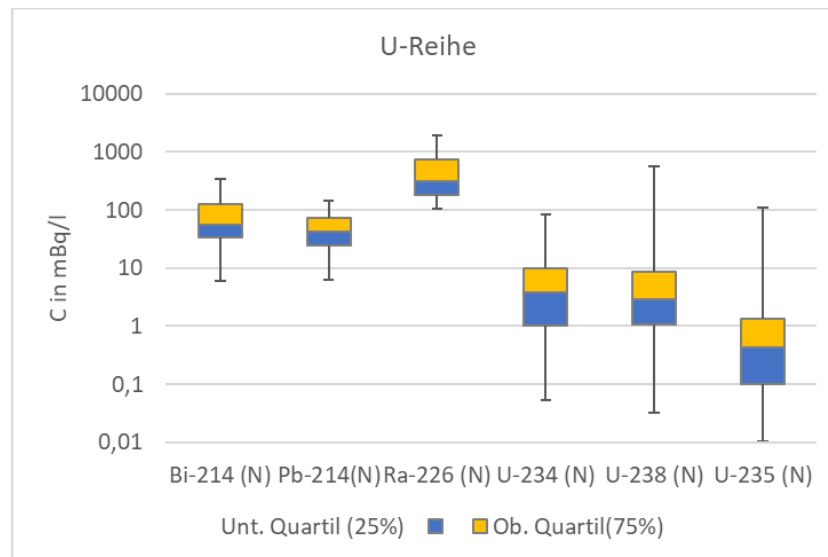
Quelle: Autoren

Bei den direkt als „Ra-226“ in die IMIS-Datenbank eingetragenen Werten liegen die Nachweisgrenzen und die (wenigen) ermittelten Messwerte deutlich höher als bei den Zerfallsprodukten Pb-214, Bi-214. Eine weitergehende Prüfung ergab, dass die 13 Messwerte von Ra-226 aus Kläranlagen in Nordrhein-Westfalen stammen (Bonn, Köln, Bottrop, Münster) und von den Labors 5020 (9x), 5030 (1x) und 5070 (3x) bestimmt wurden. Diese Ra-226-Aktivitätskonzentrationen liegen wesentlich höher als die in (BfS, 2009) ausgewiesenen Maximalwerte von 29 mBq/l Ra-226 im Trinkwasser in diesem Bundesland. Da den Messwerten das Messverfahren G1 (Gamma-spektrometrie) zugrunde lag, ist zu vermuten, dass hier die 186 keV-Gammalinie des Ra-226 als Auswertgrundlage genutzt wurde. Durch Interferenzen mit der sehr nahe liegenden Gammalinie von U-235 (siehe (Kanisch et al., 2019)) kann es hier zu Überschätzungen der realen Ra-226-Konzentration kommen. Es ist daher fraglich, ob die (von drei Messtellen in NRW) ermittelten Ra-226-Konzentrationen, deren Messwerte zu mehr als die Hälfte unter der jeweils spezifizierten Nachweisgrenze liegen, als repräsentativ für das Abwasser anzusehen sind.

Auch die in Tabelle 7-16 aufgeführten statistischen Kennziffern für die Aktivitätskonzentrationen von Bi-214 und Pb-214 können nur als eine erste Orientierung angesehen werden. Diese Werte basieren ebenfalls auf Daten aus nur wenigen Kläranlagen der Länder Berlin, Mecklenburg-Vorpommern und Sachsen-Anhalt. Bei den Daten aus Kläranlagen der Länder Berlin und Mecklenburg-Vorpommern lag die Zeit zwischen Ende der Probenahme und Messbeginn bei mehr

als 2 Wochen, so dass von einem annähernden Gleichgewicht Ra-226 – Rn-222 – Pb-214 – Bi-214 ausgegangen werden kann. Die Messungen in Sachsen-Anhalt begannen im Mittel ein bis vier Tagen nach Ende der Probenahme. Es ist daher möglich, dass die Messergebnisse durch gelöstes Rn-222 beeinflusst sind und dadurch höher ausfallen.

Abbildung 7-14: Box-Whisker-Plot der Messwerte von Radionukliden der U-238-Zerfallsreihe im Abwasser (N – Normal-/Routinebetrieb)

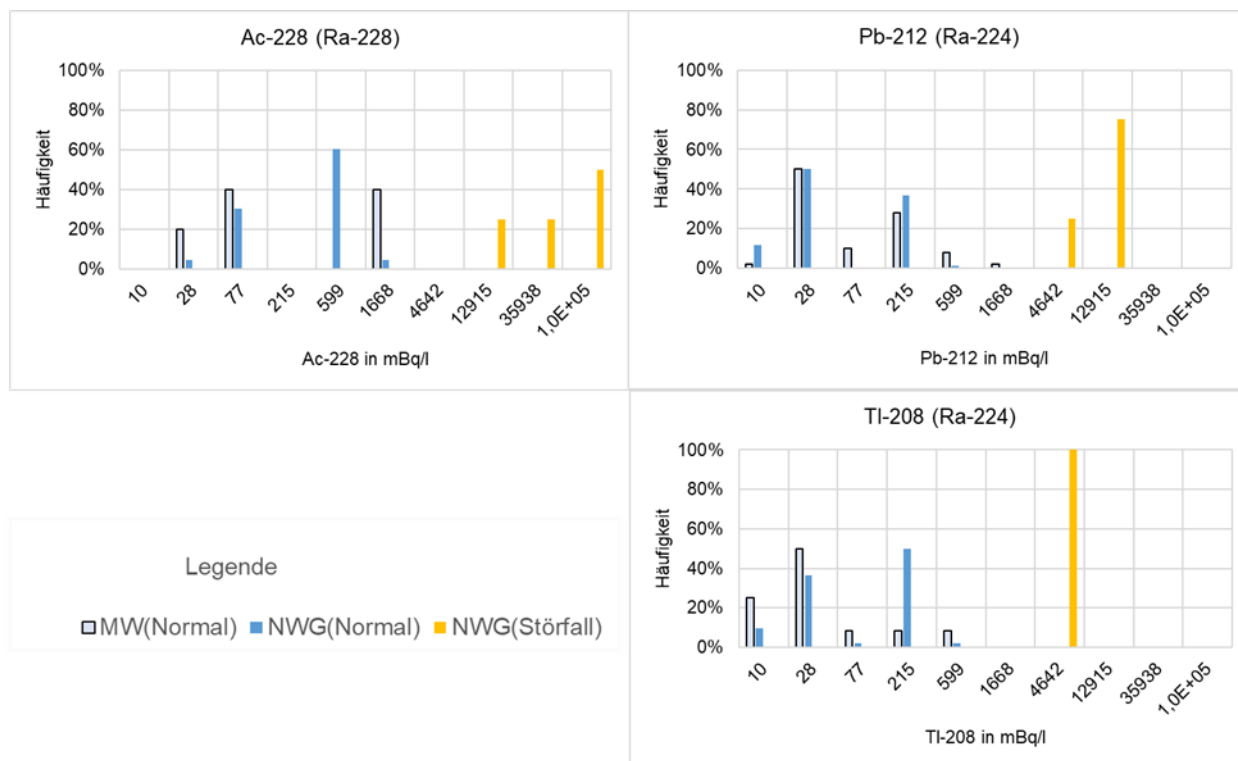


Quelle: Autoren

Die in der IMIS-Datenbank ausgewiesenen kurzlebigen Zerfallsprodukte der Th-232-Zerfallsreihe können als Messgröße für die längerlebigen Vorgängernuklide Ra-228 (gemessen als Ac-228) bzw. Ra-224 (gemessen über Pb-212 oder Tl-208) gesehen werden. Die Entgasungsverluste von Rn-220 sind aufgrund der kurzen Halbwertszeit dieses Radionuklids von 55 s als gering einzuschätzen. Bei der Bewertung von Tl-208 ist zu berücksichtigen, dass seine Aktivität aufgrund einer Verzweigung in der Zerfallsreihe beim Bi-212 nur ca. 36 % der Aktivität von Ra-224 repräsentiert.

Betrachtet man die Diagramme der Verteilungen von Messwerten und der Nachweisgrenzen für die analysierten Radionuklide der Th-232-Zerfallsreihe in Abbildung 7-15), dann zeigen sich die gleichen Befunde wie bei den Diagrammen der Messwerte der zuvor beschriebenen Radionuklide. Auch im Normal-/Routinebetrieb sind Nachweisgrenzen vielfach zu hoch, um das allgemeine Hintergrundniveau zuverlässig zu erfassen. Um die statistischen Kennziffern dieser Radionuklide bewerten zu können, bedarf es ähnlich wie bei der U-238-Zerfallsreihe detaillierterer Auswertungen.

Abbildung 7-15: Häufigkeitsverteilungen der Messwerte (MW) und Nachweisgrenzen (NWG) für Radionuklide der Th-232 Zerfallsreihe in den unterschiedlichen Messprogrammen. Nuklidsymbole in Klammern geben die durch die Messwerte erfassten Vorgängernuklide an.



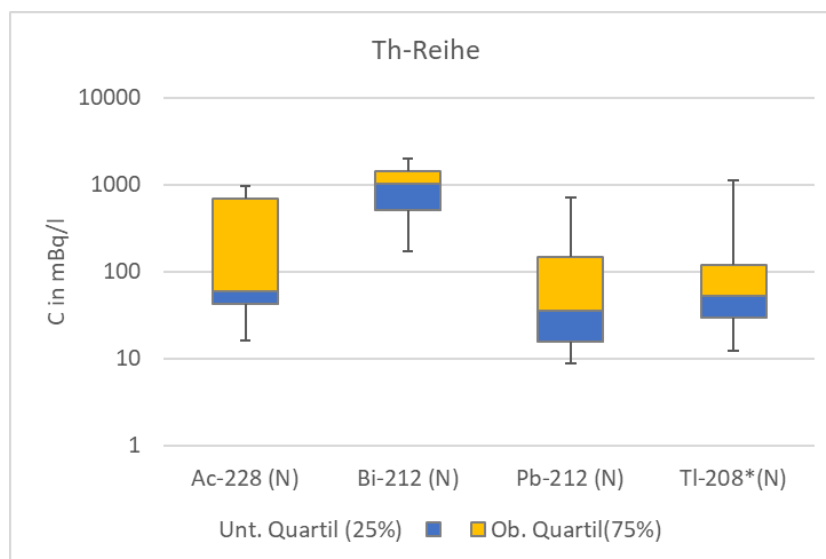
Quelle: Autoren

Aufgrund der Überlappungen von Nachweisgrenzen und Messwerten sind die statistischen Kennziffern in Tabelle 7-15 nur als erste Orientierung für die allgemeinen Aktivitätskonzentrationen der Radionuklide im Abwasser in Deutschland anzusehen. Die Daten stammen von den gleichen wenigen Kläranlagen in Mecklenburg-Vorpommern, Nordrhein-Westfalen und Sachsen-Anhalt, bei denen auch Pb-214 und Bi-214 bestimmt worden sind (Tabelle 7-16). Während bei Pb-212 mit insgesamt 50 Messwerten über der Erkennungsgrenze zumindest ein etwas umfangreicherer Datensatz vorliegt, beschränkt sich die Anzahl der Messwerte über der Erkennungsgrenze bei Tl-208 auf zwölf, bei Ac-228 auf fünf, bei Bi-212 auf drei Werte. Die aus diesen Werten berechneten statistischen Kennziffern sind – mit Ausnahme von Bi-212 – soweit übereinstimmend, dass sie als Orientierung für die Abwasser vorhandenen Konzentrationen interpretiert werden können. Allerdings ist die Zuordnung der Messwerte zu den im Wasser gelösten längerlebigen Vorgängern Ra-224 oder Th-228 beim Pb-212 und seinem sehr kurzlebigen Zerfallsprodukt Tl-208 unterschiedlich zu treffen. Während die Messungen in Sachsen-Anhalt und Nordrhein-Westfalen so wenige Tage nach der Probenahme erfolgten, dass trotz der Halbwertszeit von Pb-212 von ca. 11 h ein Aktivitätsgleichgewicht Pb-212 und Ra-224 (Halbwertszeit 3,6 d) möglich wäre, lagen zwischen Probenahme und Messung in Mecklenburg-Vorpommern in der Regel mehr als 2 Wochen. In solchem Fall sollten die Messwerte von Pb-212 und Tl-208 eher der Aktivität von Th-228 (Halbwertszeit 1,9 a) entsprechen. Bei der Auswertung der Messwerte des aufgrund energiereicherer Gammalinien gut messbaren Tl-208 (Halbwertszeit 4,8 min) wurde die Verzweigung in der

Zerfallsreihe beim Bi-212 nur mit einem Aktivitätsanteil von 36% bezogen auf seine Vorgängernuklide (Bi-212 – Pb-212 – Ra-224) bei der Darstellung in Abbildung 7-15 berücksichtigt.

Die Messwerte von Ac-228 können aufgrund der sehr kurzen Halbwertszeit von 6 h stets dem Vorgänger Ra-228 zugeordnet werden. Mit Medianwerten im Bereich von 30 mBq/l Pb-212, Tl-208* und 44 mBq/l Ac-228 liegen die Aktivitätskonzentrationen weit über den Maximalwerten von Ra-228 im Trinkwasser der jeweiligen Länder nach (BfS, 2009). Es ist aus den Daten der IMIS-Datenbank heraus nicht entscheidbar, ob hier messtechnisch überhöhte Werte ermittelt wurden oder ob es andere Quellen für das Radium im Abwasser gibt. Bei einer jährlichen Ingestion von 40 Bq Ra-226 (und 17 Bq Ra-228) mit der Nahrung (UNSCEAR, 2000) können diese Werte nicht wie beim K-40 (jährliche Ingestion und Ausscheidung ca. 45 kBq!) als Folge menschlicher Ausscheidungen erklärt werden.

Abbildung 7-16: Box-Whisker-Plot der Messwerte von Radionukliden der Th-232-Zerfallsreihe im Abwasser (N – Normal-/Routinebetrieb)



* - Die Messwerte von Tl-208 wurden mit den Verzweigungsanteil von 36 % auf eine mit den Vorgängernukliden vergleichbare Konzentration umgerechnet.

Quelle: Autoren

Betrachtet man die Aktivitätsverhältnisse von U-234/U-238 in Tabelle 7-15 dann erkennt man einen leichten Überschuss der U-234-Aktivität von etwa 30% beim Medianwert und 20% beim oberen Quartil. Da ein solcher Überschuss sowohl im Grund- als auch im Oberflächenwasser typisch ist, sind die statistischen Kenngrößen von U-234 plausibel.

Betrachtet man analog die Aktivitätsverhältnisse von U-235/U-238 in Tabelle 7-15, dann erhält man Verhältniswerte von ca. 15% beim Median und beim oberen Quartil. Diese Werte übersteigen das im Natururan sehr konstante Aktivitätsverhältnis U-235/U-238 von 4,6% (gerundet ca. 5%) deutlich. Um die Ursachen dieses Befundes einzugrenzen, wurden die Datensätze ausgewertet, für die bei gleichzeitiger Probenahme sowohl Ergebnisse von U-238 als auch von U-235 in der Datenbank ausgewiesen sind. Das Histogramm der 69 Datensatzpaare, die sich diesbezüglich auswerten ließen, zeigt Abbildung 7-17. Der Hauptpeak der Aktivitätsverhältnisse liegt korrekterweise im Intervall von 4% bis 6% (Klassenbezeichnung: „6%“). Auffällig ist allerdings ein signifikanter Anteil

an Datensätzen, bei denen das Aktivitätsverhältnis größer als 10% ausfällt. Von diesen Datensätzen ist ein Fall aus der Kläranlage Hamburg, Probenahme 13.10.2020 08:00, ein extremer Ausreißer mit einem Aktivitätsverhältnis von 151.664%. Im Unterschied zu den anderen Messungen mit hohen Aktivitätsverhältnissen wurde die Probe mit unterschiedlichen Verfahren und an verschiedenen Tagen bestimmt:

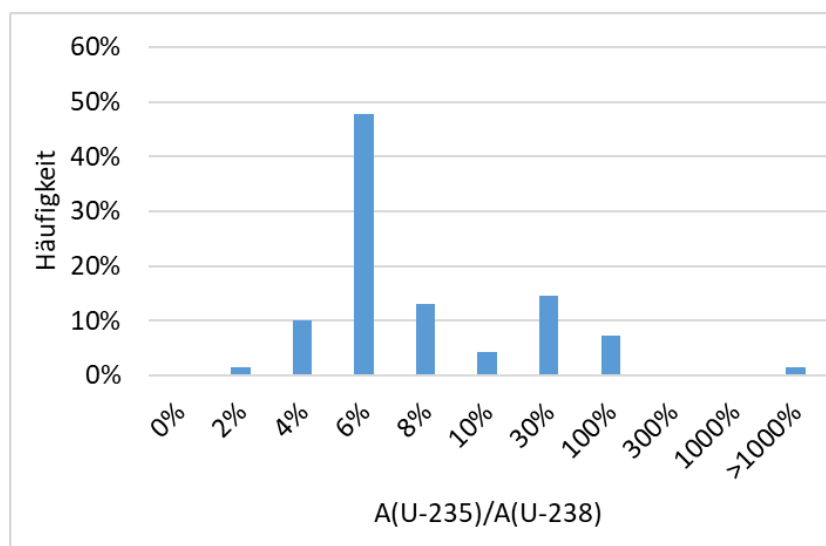
U-238: Verfahren AU Messdatum 14.12.2020 15:24 Ergebnis 6,31E-05 Bq/l

U-235: Verfahren G1 Messdatum 15.10.2020 11:04 Ergebnis 9,57E-02 Bq/l.

Das Ergebnis für U-235 ist als unplausibel überhöht zu bewerten.

Von den weiteren 9 Datensatzpaaren mit Aktivitätsverhältnissen U-235/U-238 über 20% wurde in 8 Fällen die Messmethode „AU“ (siehe Tabelle 7-7) genutzt, nur bei einem Datensatzpaar die Alphaspektrometrie „A1“. Damit sind ca. 50% der Messergebnisse von U-235 mit der Methode „AU“ als auffällig erhöht zu bewerten.

Abbildung 7-17: Histogramm der Aktivitätsverhältnisse U-235/U-238 im Abwasser. Nur Daten aus Normal-/Routinebetrieb. X-Achse bis 10% linear, danach logarithmisch geteilt.



Quelle: Autoren

Insgesamt zeigt die Auswertung der IMIS-Messdaten „Abwasser“ zu den natürlich vorkommenden Radionukliden, dass nur für K-40, U-238, U-234 und (mit Einschränkungen) U-235 aussagekräftige Daten vorliegen, mit denen die allgemeine Hintergrundbelastung hinreichend quantifiziert werden kann. Die ausgewiesenen Wertebereiche können damit eine Grundlage für Plausibilitätschecks zur Qualitätssicherung in der Zukunft sein. Inwieweit die Plausibilitätsprüfung durch orts- und anlagenbezogene Werte präzisiert werden kann, wird im Kapitel 7.8 untersucht.

Für Ra-226 und Ra-228 und deren kurzlebige Zerfallsprodukte von Ra-226 und Ra-228 sind trotz zahlreicher Auswertungen der Gammaspektren hinsichtlich dieser Radionuklide die wenigen Messwerte über der Erkennungsgrenze nicht hinreichend, um eine allgemeine Hintergrundbelastung

zu quantifizieren. Dieser Befund spiegelt wider, dass natürliche Radionuklide nicht im Fokus der Messroutinen der Länder stehen und keine dezidierten Berichtspflichten existieren.

7.7 Radionuklidspezifische Messwerte und Nachweisgrenzen bei Klärschlamm

7.7.1 Messverfahren

Um die in der Praxis realisierten Verfahren und deren Bezug zu der tatsächlichen Radionuklidaktivität im Klärschlamm bewerten zu können, wurden die aus der IMIS-Datenbank herausgezogenen Datensätze (siehe Kapitel 5.1) hinsichtlich der Messverfahren, der Messwerte und der Nachweisgrenzen genauer analysiert.

Die von den Messstellen verwendeten Messverfahren beruhen auch hier auf den vom BMUV als „Loseblattsammlung“ veröffentlichten Messanleitungen (AKU, 2020).

Für die Messprogramme nach AVV-IMIS (AVV-IMIS, 2006) sind die in Tabelle 7-17 zusammengestellten Messanleitungen zu verwenden.

Tabelle 7-17: Zusammenstellung der Messanleitungen für Radionuklide im Klärschlamm im Rahmen der IMIS-Messprogramme RMP (Normal-/Routinemessprogramm) und IMP (Störfall-/Intensivmessprogramm)

Missanleitung	Stand (jjjj-mm)	RMP	IMP	IMIS-Kennung**		
				MMT-ID	MMT	Messgröße
H- γ -SPEKT-KLAER-01	1992-09	X	X	G1	Gammaspektrometrie	(+)
H-Sr-89/Sr-90-KLAER-01	1992-09	X	X			Sr-89, Sr-90
H- α -SPEKT-KLAER-01	1992-09	X	X	A1	Alphaspektrometrie	(*)
H- α -SPEKT-KLAER-03	1992-09	X	X	A2		Pu

(+) Alle Gammastrahler, soweit ausgewiesen.

(*) Am-241, Cm-242, Cm-24344, Cm-244, Pu-236, Pu-238, Pu-239, Pu-23940, U-232, U-234, U-235, U-238

**IMIS Kennung siehe Tabelle 7-7

Quelle: Autoren

Angaben zu den im Rahmen der Messprogramme praktisch genutzten Messverfahren sind in Tabelle 7-18 zusammengestellt. Die bei weitem überwiegende Zahl der ausgewiesenen Radionuklide wurden mittels Gammaspektrometrie (IMIS-Kennung G1, Tabelle 7-7) bestimmt. Bei Radionukliden, die mit unterschiedlichen Verfahren bestimmt wurden, kann die Nachweisgrenze sehr unterschiedlich ausfallen, was bei der statistischen Auswertung von Messdaten zu Verzerrungen (Bias) führen kann.

Tabelle 7-18: Zusammenstellung der Radionuklide und der zu ihrer Bestimmung verwendeten Messverfahren bei Klärschlamm

Ausschließlich mit Gammaspektrometrie (IMIS-Kennung G1)* bestimmte Radionuklide							
Ac-228	Ce-141	Eu-152	Kr-85	Pa-234m	Ru-106	Te-123m	Zr-95
Ag-110m	Ce-143	Eu-154	La-140	Pb-210	Sb-124	Te-129	
Ag-111	Ce-144	Eu-155	Lu-177	Pb-212	Sb-125	Te-129m	
Ba-133	Co-57	Fe-59	Lu-177m	Pb-214	Sb-127	Te-131m	
Ba-140	Co-58	Hg-203	Mn-54	Pm-151	Sb-129	Te-132	
Be-7	Co-60	I-123	Mo-99	Ra-224	Se-75	Tl-201	
Bi-212	Cr-51	I-125	Na-22	Ra-226	Sm-153	Tl-202	
Bi-214	Cs-134	I-132	Nb-95	Ra-228	Sn-113	Tl-208	
Cd-109	Cs-136	In-111	Nd-147	Re-186	Sr-85	Y-88	
Ce-139	Cs-137	K-40	Np-239	Ru-103	Tc-99m	Zn-65	
Ausschließlich mit Alphaspektrometrie (IMIS-Kennung A1)* bestimmte Radionuklide							
Cm-242	Cm-24344	Pu-236	Pu-239	Th-230			
Mit unterschiedlichen Verfahren lt. IMIS-Kennung* bestimmte Radionuklide							
I-131	G1; GI	Sr-90	BS, BX	U-234	A1; AU;E1		
Pu-238	A1, AP	Th-228	A1; G1	U-235	A1;AU;E1;G1		
Pu-23940	A1, AP	Th-232	A1; G1	U-238	A1;AU;E1;G1		

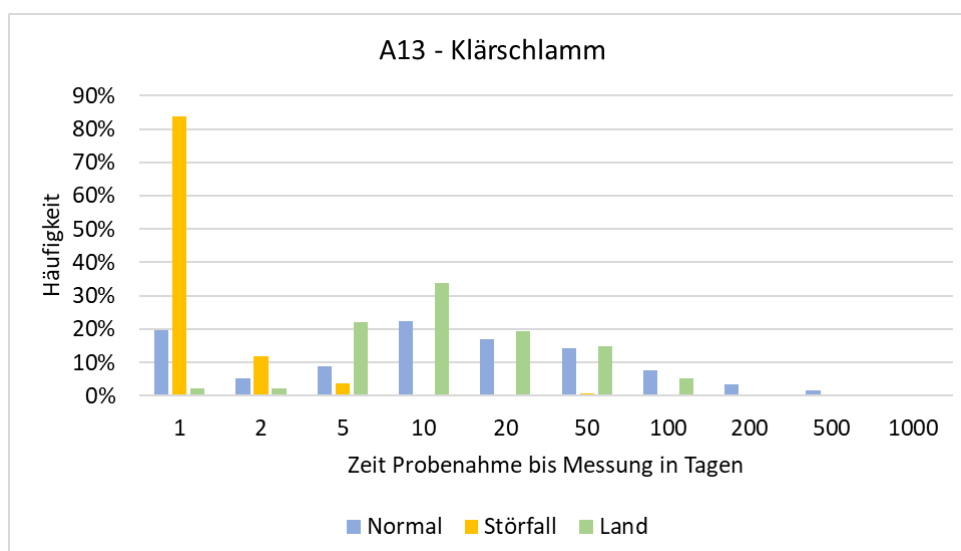
*IMIS Kennung siehe Tabelle 7-7

Quelle: Autoren

Analog zu den Auswertungen in Kapitel 7.4.2 wurde auch für Klärschlamm die Lagerzeit der Proben nach der Probenahme ausgewertet. Die Ergebnisse dieser Auswertung sind in Abbildung 7-18 und Abbildung 7-19 dargestellt. Sie zeigen, dass – wie zu erwarten – die Lagerzeit der Proben im Störfall-/Intensivbetrieb nur wenige Tage beträgt, während im Normal-/Routinebetrieb und in den Messprogrammen „Land“ Lagerzeiten von 1 Woche bis zu 1 Monat sehr häufig sind.

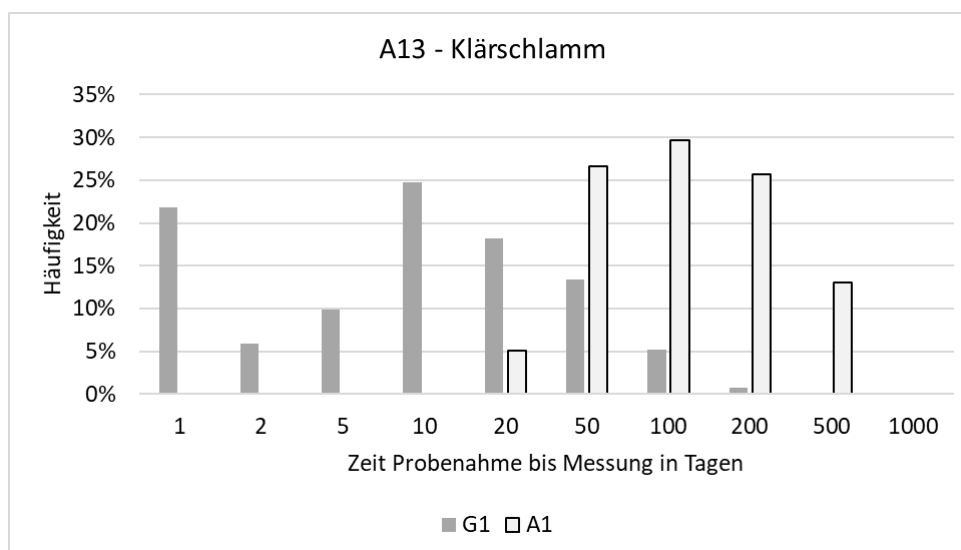
Abbildung 7-18 zeigt Ergebnisse einer Auswertung der Lagerzeiten von Klärschlamm für die Messverfahren Gammaspektrometrie (G1) und Alphaspektrometrie (A1), siehe Tabelle 7-7. Berücksichtigt wurden nur Messungen im Normal-/Routinebetrieb und im Messprogramm „Land“. Auch hier zeigt sich, dass gammaspektrometrische Messungen nach deutlich kürzeren Lagerzeiten ausgeführt werden als alphaspektrometrische. Allerdings kommen auch bei gammaspektrometrischen Messungen Lagerzeiten der Proben von deutlich mehr als 1 Monat vor.

Abbildung 7-18: Häufigkeitsverteilungen der Lagerzeit der Proben vor der Messung bei den drei Messprogrammen



Quelle: Autoren

Abbildung 7-19: Häufigkeitsverteilungen der Lagerzeit der Proben vor der Messung bei den Messverfahren Gammaspektrometrie (G1) und Alphaspektrometrie (A1) in den Messprogramm Normal-/Routinebetrieb und „Land“



Quelle: Autoren

7.7.2 Probenahmeart

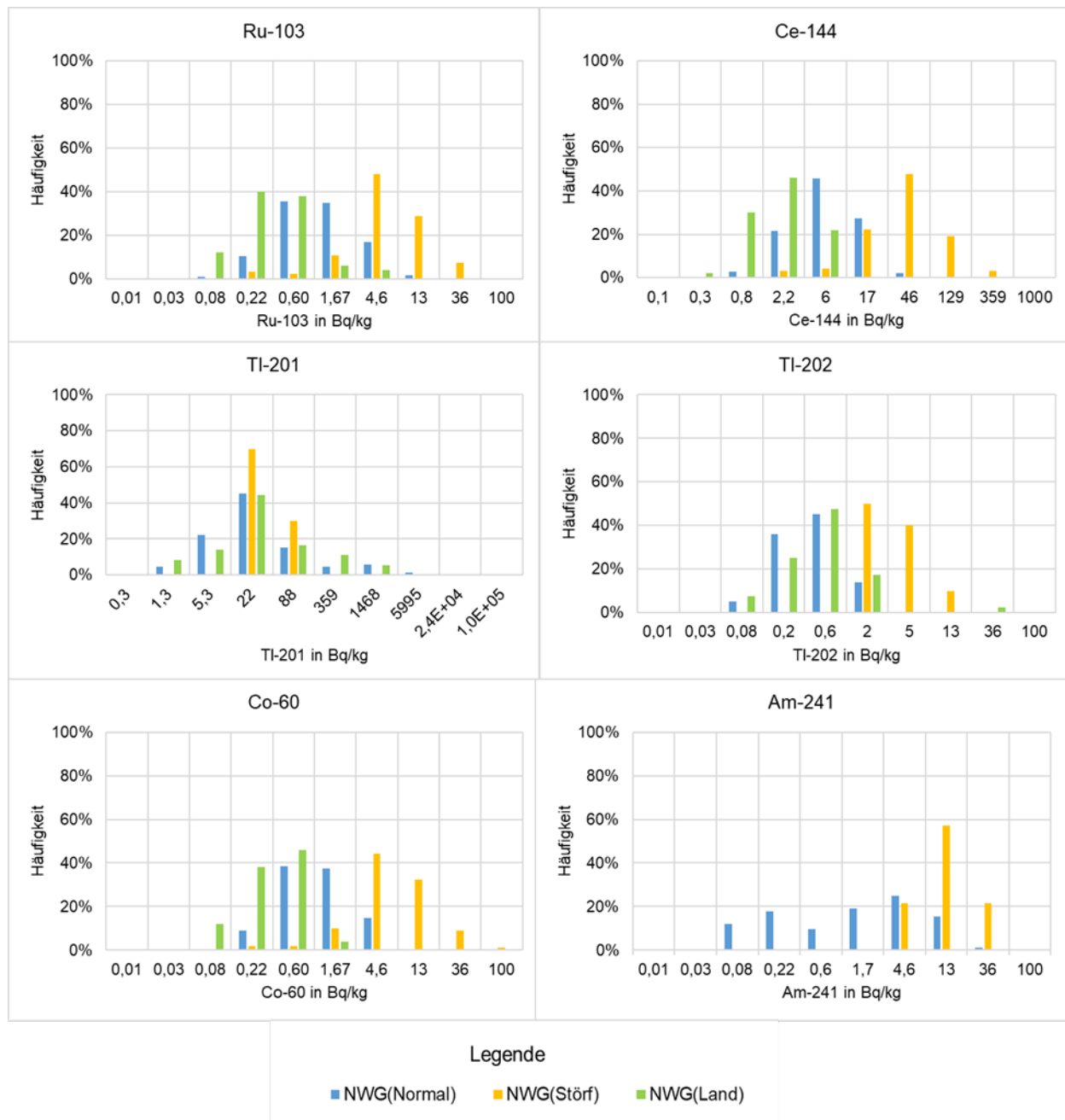
Für die Klärschlammuntersuchungen werden als Probenahmeart Einzelproben (E) und Mischproben (M) angegeben. Die untersuchten Klärschlammproben wurden fast ausschließlich als Einzelproben entnommen. Nur für 30 Probenahmen des gesamten Datensatzes wird als Probenahmeart "M" angegeben. Diese Proben stammen überwiegend aus dem Saarland. Eine Prüfung von Einflüssen

der Probenahmeart auf die Messergebnisse mit statistischen Methoden erwies sich in Anbetracht der wenigen Daten zur Probenahmeart "M" als nicht aussagefähig.

7.7.3 Analyse von Nachweisgrenzen (Radionuklide mit weniger als 3% Messwerten)

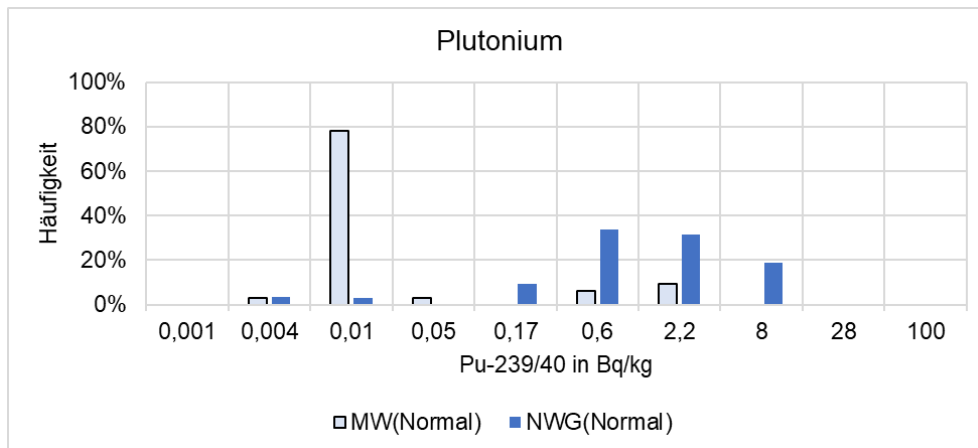
Für Radionuklide, für die bei mehr als 100 Messungen keine (Ce-144, Ru-103, Tl-201, Tl-202), bzw. weniger als 3% Messwerte ausgewiesen wurden (Am-241 und Co-60), sind die Häufigkeitsdiagramme der Nachweisgrenzen in Abbildung 7-20 dargestellt. Eine analoge Auswertung für Pu-239/40 (Anteil Messwerte an Datensätzen 8%) zeigt Abbildung 7-21. Wie bei der Auswertung der Abwasserdaten ist der Bezugswert für die Häufigkeit stets die Gesamtzahl der für das jeweilige Radionuklid ausgewiesenen Messungen.

Abbildung 7-20: Häufigkeitsverteilungen von Nachweisgrenzen für Radionuklide, für die bei Klärschlamm keine oder maximal 3% Messwerte ausgewiesen sind



Quelle: Autoren

Abbildung 7-21: Häufigkeitsverteilungen von Nachweisgrenzen (NWG) und Messwerten (MW) im Normal-/Routinebetrieb für Pu-239/40



Quelle: Autoren

Soweit die Nachweisgrenzen für Radionuklide, für die nur wenige Messergebnisse erhalten wurden, mit den in der Natur oder sogar im Klärschlamm zu erwartenden spezifischen Aktivitäten verglichen werden können, zeigt sich, ob die fehlenden Messergebnisse auf zu hohe Nachweisgrenzen oder besonders niedrige spezifische Aktivitäten im Klärschlamm zurückzuführen sind.

Von den in Abbildung 7-20 und Abbildung 7-21 aufgeführten Radionukliden, für die Bezugswerte für einen Vergleich verfügbar sind, werden in Tabelle 7-19 die typischen Nachweisgrenzen im IMIS-Messprogramm Normal-/Routinebetrieb hinsichtlich der Erfassung eines allgemeinen Hintergrundniveaus bewertet. Ob dieses Hintergrundniveau als Bezug für Messaufgaben des IMIS-Programms ein geeigneter Maßstab ist, wird hier nicht bewertet.

Für Am-241 und Pu-239/40 wurden als Hintergrundniveau Kontaminationen der deutschen Ackerböden von 0,052 Bq/kg(TM) für Am-241 und 0,115 Bq/kg(TM) für Pu-239/40 (Tait & Kock, 2013) herangezogen.

Eine detailliertere Auswertung der Nachweisgrenzen und Messwerte für nuklearmedizinisch genutzte Radionuklide zeigt Abbildung 7-22. Vor allem beim I-131 zeigt sich, dass die Messwerte (zumeist) deutlich über den Nachweisgrenzen liegen. Der Datensatz der Messwerte kann damit als belastbar für die Ermittlung repräsentativer statistischer Kenngrößen angesehen werden.

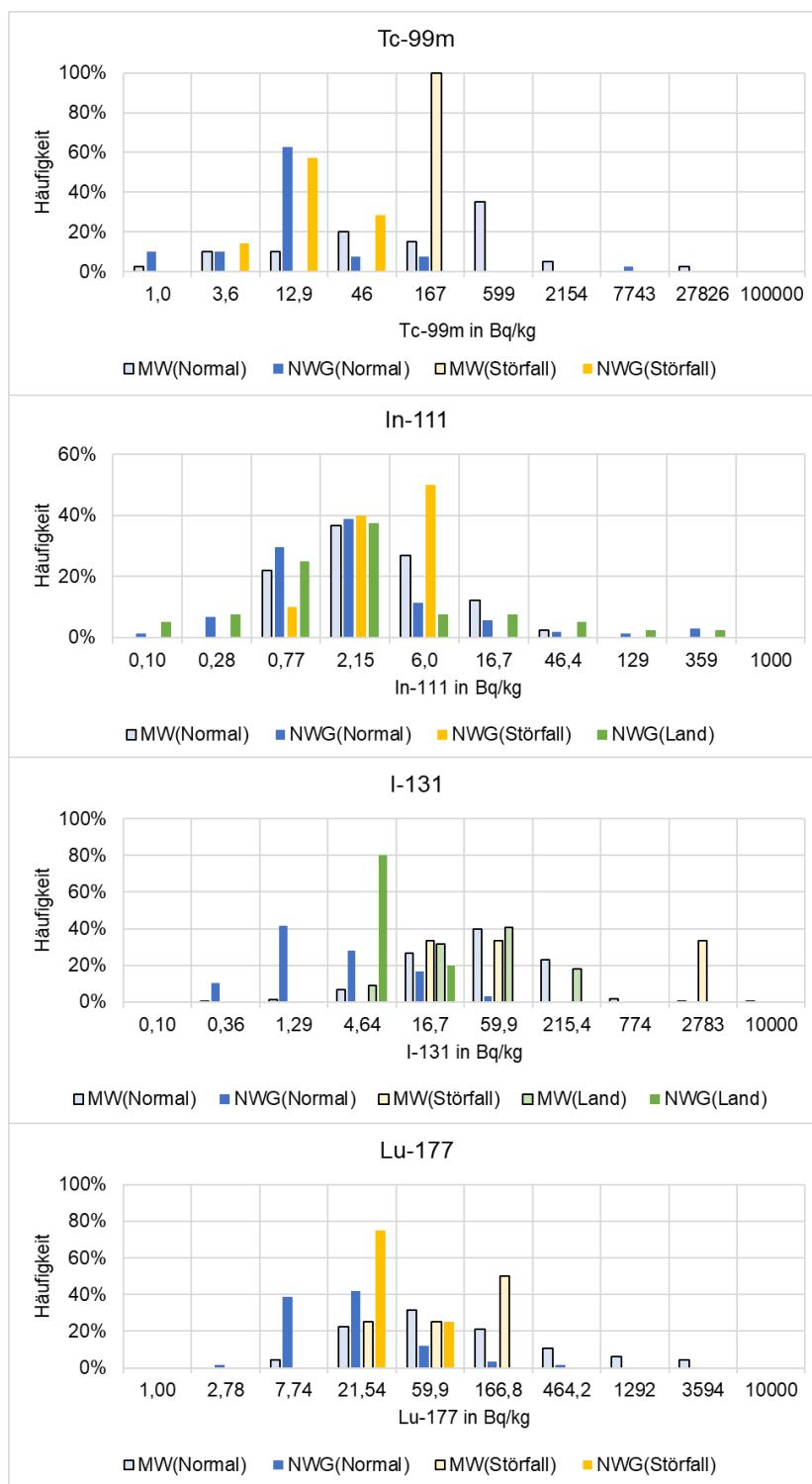
Tabelle 7-19: Bewertung von Nachweisgrenzen ausgewählter Radionuklide

Radionuklid	Häufigste NWG (IMIS)	Vergleichswert	Bewertung
Am-241	1,7 – 4,6 Bq/kg 0,08 – 0,22 Bq/kg	0,052 Bq/kg in Ackerböden (Tait und Kock, 2013)	Nachweisgrenze zu hoch für Hintergrundniveau
In-111	0,46 – 1,7 Bq/kg	1,48 Bq/kg 95. Perzentil nach (ISCORS, 2003)	Vergleichswert aus USA zeigt, dass bei den realisierten NWG der obere Bereich der Häufigkeitsverteilung hinreichend erfasst werden kann.
Tl-201	5,3 – 22 Bq/kg	1.702 Bq/kg 95. Perzentil nach (ISCORS, 2003)	Vergleichswert aus USA zeigt, dass bei den realisierten NWG der obere Bereich der Häufigkeitsverteilung hinreichend erfasst werden konnte. Es muss nach den Befunden davon ausgegangen werden, dass keine / kaum Einträge stattfinden.
Tl-202	0,2 – 0,6 Bq/kg	19,6 Bq/kg 95. Perzentil nach (ISCORS, 2003)	
Pu-238	0,17 – 0,6 Bq/kg	0,37 Bq/kg Median nach (ISCORS, 2003)	Nachweisgrenzen sollten hinreichen, um den oberen Bereich der Häufigkeitsverteilung zu erfassen.
Pu-239/40	0,17 – 0,6 Bq/kg	0,11 Bq/kg Median nach (ISCORS, 2003) und Ackerböden (Tait und Kock, 2013)	Praxis zeigt, dass Messwerte hauptsächlich bestimmt werden, wenn NWG im Bereich 0,01 Bq/kg und tiefer liegt.

Quelle: Autoren

Bei den anderen in Abbildung 7-22 ausgewerteten Radionukliden überlappen sich Messwerte und Nachweisgrenzen stärker, so dass man davon ausgehen muss, dass ein Teil der zum Probenahmezeitpunkt im Klärschlamm vorhandenen Aktivität durch die Messung nicht erkannt wurde.

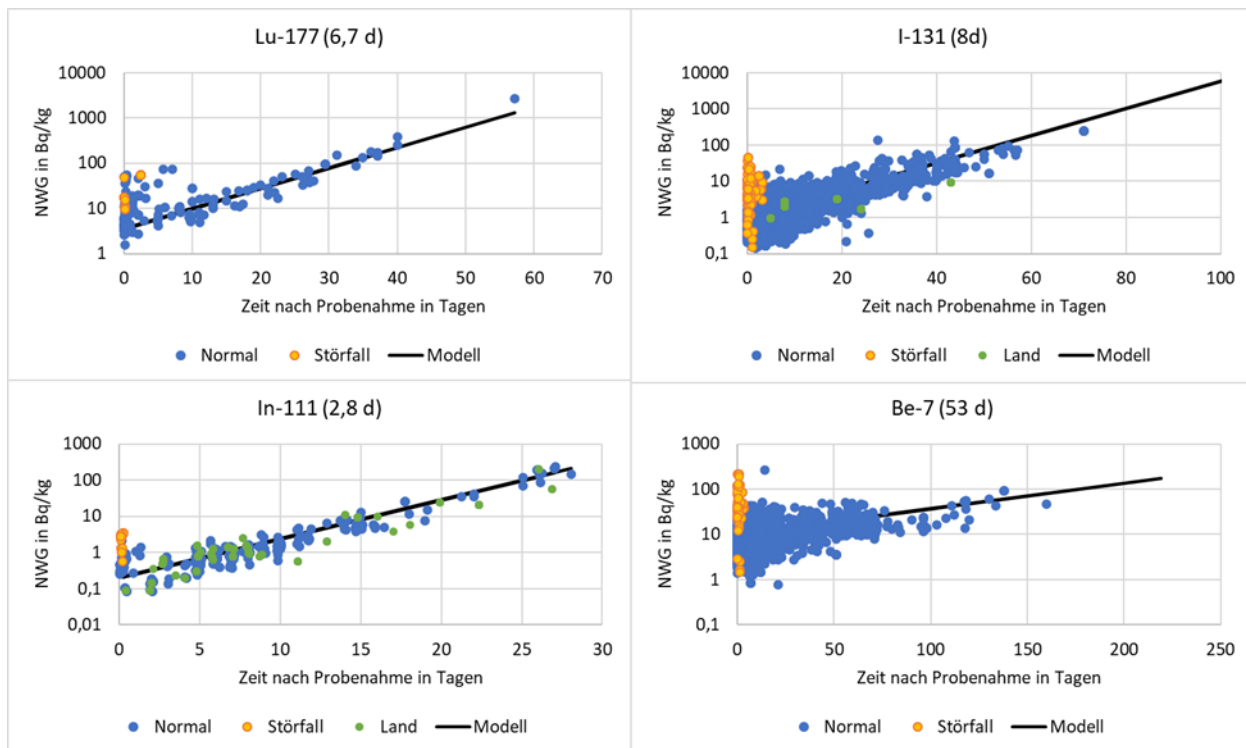
Abbildung 7-22: Häufigkeitsverteilungen von Nachweisgrenzen (NWG) und Messwerten (MW) für nuklearmedizinisch genutzte Radionuklide in den unterschiedlichen Messprogrammen



Quelle: Autoren

Ähnlich wie bei den Abwasserproben zeigt sich auch beim Klärschlamm, dass die Lagerzeit bis zur Messung bei kurzlebigen Radionukliden zu einem erheblichen Anstieg der Nachweisgrenzen führt (siehe Abbildung 7-23).

Abbildung 7-23: Zusammenhänge zwischen Nachweisgrenzen und Lagerzeit der Proben vor der Messung. Die Angaben nach dem Nuklidkürzel sind die zugehörigen Werte der Halbwertszeit



Quelle: Autoren

7.7.4 Nachweis- und Erkennungsgrenzen

Analog zu Kapitel 7.6.4 wurde auch für den Datensatz der Klärschlammanalyse geprüft, ob für bestimmte Radionuklide die spezifischen Aktivitäten in einem Bereich liegen, der mit den verwendeten Messverfahren nur unsicher erfasst werden kann. Als Kriterium wurde dazu wieder die Anzahl der Messwerte ermittelt, bei denen die spezifische Aktivität kleiner als 80% der angegebenen Nachweisgrenze beträgt. Die Ergebnisse dieser Abfrage sind in Tabelle 7-20 zusammengestellt. Sieht man von den Radionukliden ab, für die nur ein Messwert vorliegt, fallen nur beim Pu-238 in mehr als einem Drittel der Fälle die Messwerte in den Bereich erhöhter Messunsicherheit (in Tabelle 7-20 markiert). Für alle anderen Radionuklide sind die Verfahren vor allem im Normal-/Routinebetrieb hinreichend empfindlich, um die spezifischen Aktivitäten zu ermitteln.

Tabelle 7-20: Radionuklide mit Messdaten als Anzahl Messwerte (MW) unter 80% der Nachweisgrenze (NWG) im Klärschlamm im Messregime Normal-/Routinebetrieb

	Normal-/Routinebetrieb			Störfall-/Intensivbetrieb		
	Anzahl	Anzahl	Anteil	Anzahl	Anzahl	Anteil
	MW	< 0,8 NWG	< 0,8 NWG/MW	MW	< 0,8 NWG	< 0,8 NWG/MW
Be-7	1784	0		44	1	2%
Bi-212	294	9	3%	0	0	
Co-57	1	1	100%	0	0	
Co-60	1	1	100%	0	0	
Cs-137	1970	76	4%	11	2	18%
I-131	2158	10	0,5%	67	1	1,5%
K-40	2623	3	0,1%	55	4	7%
Lu-177	239	11	5%	4	1	25%
Pa-234m	18	2	11%	0	0	
Pb-210	158	5	3%	0	0	
Pb-214	591	1	0,2%	0	0	
Pu-238	16	6	38%	0	0	
Pu-23940	32	4	13%	0	0	
Sr-90	361	4	1%	0	0	
Tc-99m	40	3	8%	1	0	0,0%
Te-123m	1	1	100%	0	0	
U-235	445	20	4%	9	0	
U-238	543	1	0,2%	8	0	0,0%

Quelle: Autoren

7.7.5 Nuklearmedizinisch genutzte Radionuklide

Analog zur Auswertung der Daten von Abwasseruntersuchungen sind in Tabelle 7-21 statistische Kennziffern der Datensätze von nuklearmedizinisch genutzten Radionukliden zusammengestellt. Die Kenngrößen wurden bezogen auf die „echten“ Messwerte berechnet. Zur Einordnung wird die Anzahl der Datensätze zum jeweiligen Parameter mit angegeben. Die Differenz der Anzahl der Datensätze und der Anzahl der „echten“ Messwerte gibt die Anzahl der Messergebnisse unter der Erkennungsgrenze an. Damit können ggf. die oberen Quantilwerte mit Bezug auf alle Datensätze korrigiert werden. Allerdings zeigen die Angaben zu Tc-99m und Lu-177m, dass diese Radionuklide nur dann als gemessen gemeldet wurden, wenn auch ein Messwert über der Erkennungsgrenze erhalten wurde. Ähnliches ist für Lu-177 anzunehmen. Man muss daher davon ausgehen, dass die aus den Messwerten errechneten spezifischen Aktivitäten die allgemeinen Werte im Klärschlamm

überschätzen. Da die Nachweisgrenzen der nicht dokumentierten Messungen nicht bekannt sind, ist eine Quantifizierung der Überschätzung nicht möglich.

Tabelle 7-21: Statistische Kennziffern der Messwerte des Klärschlammes von nuklear-medizinisch genutzten Radionukliden: Normal-/Routinemessprogramm und „Land“ (N), Störfall-/Intensivmessprogramm (SF)

	Tc-99m (N)	In-111 (N)	I-131 (N)	I-131 (SF)	Lu-177 (N)	Lu-177 (SF)	Lu-177m (N)
Anzahl Datensätze	40	249	2499	102	254	8	10
Anzahl Messwerte	40	41	2203	67	239	4	10
Einheit	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg
Min	1,0	0,38	0,26	1,07	3,6	17,6	0,6
Unteres Quartil	15	0,89	12	8	20	35	0,8
Mittelwert	581	2,97	48	39	195	50	1,2
Geom. Mittelwert	68	1,82	(k.A.)	17	57	44	1,1
Median	143	1,79	28	16	46	52	1,1
Oberes Quartil	344	3,01	58	36	137	68	1,3
Oberer Whisker	837	6,19	127	79	313	117	1,9
90%-Quantil*	428	7,00	100	66	513	75	1,6
Max	15.100	20,0	3.420	900	2.750	80	3
Ausreißer	ja	Ja	Ja	Ja	Ja	nein	ja

*grün: 90%-Quantil < oberer Whisker; orange: 90%-Quantil > oberer Whisker

Quelle: Autoren

Für In-111 und I-131 gibt es in Tabelle 2-3 Vergleichswerte aus den USA. Schließt man die Maximalwerte als wenig aussagefähig aus und korrigiert die Quartilwerte auf die Gesamtzahl der Datensätze, dann entspricht für In-111 der Wert des oberen Quartils der Messwerte von 3,01 Bq/kg dem 96. Perzentil der Datensätze und ist mit dem 95. Perzentil nach Tabelle 2-3 von 1,48 Bq/kg zu vergleichen. In Anbetracht der zahlreichen Faktoren, die diese Ergebnisse beeinflussen können (applizierte Aktivitäten je Einwohner, Ausscheideraten von In-111 in die öffentlichen Abwassersysteme, Repräsentanz der Proben) ist die Übereinstimmung sehr gut.

Für I-131 beträgt der Vergleichswert in den USA 66,6 Bq/g für den Median und 1.887 Bq/kg für das 95. Perzentil. Während sich die Medianwerte weniger als ½ Größenordnung (Faktor 3) unterscheiden und damit als ähnlich bewertet werden können, ist das 90%-Quantil deutlich geringer als das 95. Perzentil der US-Daten. Hier könnte in den USA eine bundesstaatlich unterschiedliche Praxis bei der Behandlung und Entlassung von Patienten eine Rolle spielen.

Bei den Angaben zu Lu-177 und besonders für Lu-177m fällt auf, dass wenige (bei Lu-177m keine) Daten zu IMIS geliefert wurden, wenn die Erkennungsgrenze unterschritten war. Durch diesen

„Auswahl-Bias“ können die statistischen Kennziffern bezogen auf die Gesamtheit des Klärschlammes in Deutschland deutlich überschätzend sein.

Zur Prüfung auf Ausreißer im Datensatz wird der Obere Whisker eines Box-Plots verwendet. Wie die Daten der Tabelle 7-21 zeigen, sind die Maximalwerte für hier geprüften Radionuklide als Ausreißer zu bewerten. Beim In-111 und Lu-177 wird mehr als das gesamte 90%-Quantil als Ausreißer bewertet. Durch die Ausreißer sind die Mittelwerte vielfach erhöht und nicht geeignet, um Aussagen über mittlere spezifische Aktivitäten der Radionuklide im Klärschlamm zu treffen.

7.7.6 Radionuklide des Fallouts

Statistische Kennziffern der Datensätze von den Radionukliden des Fallouts sind in Tabelle 7-22 zusammengestellt.

Für eine Einordnung der Kennziffern für Sr-90 und Cs-137 können die spezifischen Aktivitäten in Böden herangezogen werden. Im Jahresbericht 2019 „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung“ (BMUV 2019) sind Mittelwerte der Bodenkontamination für alle Bundesländer für die hier relevanten Jahre 2017 – 2019 aufgeführt. Die aus diesen Angaben abzuleitenden Medianwerte liegen bei Sr-90 bei 0,75 Bq/kg (Ackerboden, 0-30 cm) und 1 Bq/kg (Weideboden, 0-10 cm). Für Cs-137 betragen die Medianwerte 6,4 Bq/kg im Ackerboden und 13 Bq/kg im Weideboden. Der Medianwert von Sr-90 im Klärschlamm stimmt mit den Bodenwertes sehr gut überein, der entsprechende Wert für Cs-137 liegt im Klärschlamm aber deutlich niedriger. Damit ist auch das Aktivitätsverhältnis Cs-137/Sr-90 im Klärschlamm mit ca. 1 (10^0) wesentlich geringer als im Boden, wo es ca. 10 (10^1) beträgt. Der Befund weist auf die bessere Löslichkeit des Alkalimetalls Strontium als das Erdalkalimetall Cäsium hin. Die K_r^{Se} -Werte nach AVV Tabelle 7-30 stützen diese Annahme.

Ein Vergleich des 90%-Quantils von 5,7 Bq/kg Cs-137 in Deutschland mit dem 95. Perzentil der US-Daten von 4,07 Bq/kg (siehe Tabelle 2-3) zeigt ähnliche Werte.

Die im Normal-/Routinebetrieb gemessenen spezifischen Aktivitäten von Cs-137 sind deutlich geringer als die spezifischen Aktivitäten von Cs-137 im Schwebstoff großer deutscher Flüsse, die nach Angaben in (BMUV, 2019) für die Jahre 2018 und 2019 Medianwerte von ca. 10 Bq/kg(TM) aufwiesen. Die wenigen Messwerte von Cs-137, die im Störfall-/Intensivbetrieb gemessen wurden, sind höher als die entsprechenden Werte im Normalmessprogramm. Es ist aber hier nicht entscheidbar, ob das an dem Messverfahren liegt oder ob die untersuchten Proben höhere Cs-137-Aktivitäten aufwiesen.

Vor allem bei den Werten für Plutonium ist zu beachten, dass die in Tabelle 7-16 ausgewiesenen statistischen Kennziffern sich auf die wenigen „echten“ Messwerte beziehen, die vielen Messungen, bei denen kein Plutonium gefunden wurde, in diese Statistik nicht eingingen. Verglichen mit den Pu-239/40 Kontaminationen der deutschen Ackerböden von 0,115 Bq/kg(TM) (Tait und Kock, 2013) sind die Messwerte im Klärschlamm sehr niedrig. Das gilt auch für einen Vergleich mit den Messwerten aus den USA, die als Medianwerte von Pu-238 0,37 Bq/kg(TM) angeben, für Pu-239 0,11 Bq/kg(TM).

Tabelle 7-22: Statistische Kennziffern der Messwerte von Fallout-Radionukliden im Klärschlamm: Normal-/Routinemessprogramm und „Land“ (N), Störfall-/Intensivmessprogramm (SF)

	Sr-90 (N)	Cs-137 (N)	Cs-137 (SF)	Pu-238 (N)	Pu-23940 (N)
Anzahl Datensätze	419	2699	102	415	415
Anzahl Messwerte	361	2014	11	15	32
Einheit	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg
Min	0,13	0,10	0,49	0,0013	0,003
Unteres Quartil	0,86	0,9	2,2	0,0041	0,008
Mittelwert	1,82	3,0	9,2	0,24	0,131
Geom. Mittelwert	1,38	1,7	5,0	0,01	0,016
Median	1,27	1,6	8,4	0,005	0,009
Oberes Quartil	2,00	2,9	12	0,06	0,011
Oberer Whisker	3,71	5,9	27	0,15	0,015
90%-Quantil*	3,51	5,7	22	0,66	0,574
Max	16,6	37	26	2,33	1,19
Ausreißer	ja	ja	nein	ja	ja

*grün: 90%-Quantil < oberer Whisker; orange: 90%-Quantil > oberer Whisker

Quelle: Autoren

Zur Prüfung auf Ausreißer im Datensatz wird der Obere Whisker eines Box-Plots verwendet. Wie die Daten der Tabelle 7-22 zeigen, sind bei den Plutoniumisotopen bereits die 90%-Quantile als Ausreißer zu bewerten. Bei Sr-90 und Cs-137 sind nur die Maximalwerte Ausreißer.

7.7.7 Natürlich vorkommende Radionuklide

Die statistischen Kennziffern der Datensätze für die natürlich vorkommenden Radionuklide sind in Tabelle 7-23 bis Tabelle 7-25 zusammengestellt. Zur Prüfung auf Ausreißer im Datensatz wird der Obere Whisker eines Box-Plots verwendet. Wie die Daten der Tabellen zeigen, sind die Maximalwerte generell als Ausreißer zu bewerten. Die arithmetischen Mittelwerte sind daher zu höheren Werten verschoben und liegen über den geometrischen Mittelwerten bzw. den Medianwerten. Zur Einordnung des Medianwertes von **Be-7** kann der Vergleichswert aus den USA nach (ISCORS, 2003) herangezogen werden. Der aus dem IMIS-Datensatz berechnete Medianwert von 168 Bq/kg ist deutlich höher als der in (ISCORS, 2003) genannte Medianwert von 44,4 Bq/kg in den USA. Die Unterschiede sind allerdings bei höheren Quantilwerten geringer. Da Be-7 als kosmogenes Radionuklid global in ähnlichen Aktivitäten vorkommt, sind die Unterschiede, insbesondere da andere Vergleichswerte kurzlebiger Radionuklide übereinstimmen, evtl. auf unterschiedliche Anteile von Grundwasser (enthält kein Be-7) an der örtlichen Wasserversorgung zurückzuführen.

Tabelle 7-23: Statistische Kennziffern der Datensätze von K-40 und Uran-Isotopen im Klärschlamm. Messprogramme Normal-/Routinebetrieb und „Land“

	Be-7	K-40	U-235	U-234	U-238
Anzahl Datensätze	1800	2700	559	432	545
Anzahl Messwerte	1784	2673	445	430	543
Einheit	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg
Min	1,14	14,00	0,18	3,80	3,58
Unteres Quartil	73	85	1,00	14,6	14,7
Mittelwert	252	163	2,57	49,5	43,6
Geom. Mittelwert	156	(k.A.)	1,84	33,1	31,4
Median	168	120	1,89	36,7	35,6
Oberes Quartil	347	185	3,47	68,1	63,3
Oberer Whisker	756	335	7,18	148	136
90%-Quantil*	573	302	5,17	114	88
Max	1940	1790	19,80	281	246
Ausreißer	ja	ja	ja	ja	ja

*grün: 90%-Quantil < oberer Whisker; orange: 90%-Quantil > oberer Whisker

Quelle: Autoren

Nutzt man zur generellen Beurteilung der Kennziffern die in (UNSCEAR, 2008) angeführten Werte für die weltweiten Mittelwerte in Böden von K-40: (400±24) Bq/kg), U-238: (37 ± 4) Bq/kg und Th-232: (33± 3) Bq/kg, dann sind die Werte wie folgt einzuordnen:

- **K-40:** Der Median im Klärschlamm ist deutlich geringer als der Mittelwert von K-40 in Böden. Dieser Befund ist aufgrund der guten Löslichkeit von Kalium plausibel. Der Medianwert aus den IMIS-Messungen (120 Bq/kg) stimmt auch sehr gut mit dem Medianwert aus (ISCORS, 2003) von 168 Bq/kg überein.
- **U-238:** Der Median von 35,5 Bq/kg entspricht fast exakt dem Mittelwert von U-238 in Böden nach (UNSCEAR, 2008). Der Vergleichswert aus den USA von 51,8 Bq/kg passt hinreichend zu dem Median aus IMIS-Daten.
- **U-234:** Die statistischen Kennziffern weisen eine geringfügig höhere spezifische Aktivität als bei U-238 aus. Dieser Befund ist plausibel, da dieser leichte Aktivitätsüberschuss im Grund- und Oberflächenwasser typisch ist und im Abwasser ebenfalls festgestellt wurde (siehe Kapitel 7.4.6). Auch in den Daten der USA ist der Median höher als beim U-238.
- **U-235:** Die aus den Kennziffern der Tabelle 7-23 ableitbaren Aktivitätsverhältnisse U-235/U-238 liegen mit ca. 6% etwas über dem entsprechenden Aktivitätsverhältnis von Natururan, das bei

4,6% liegt. Dieser Effekt ist bei gammaspektrometrischen Analysen häufig festzustellen. Hinweise auf Einträge von angereichertem Uran sind daraus nicht abzuleiten.

- **Ra-226 (Pb-214, Bi-214):** Die spezifischen Aktivitäten von Ra-226 sind geringer als die von U-238. Die Medianwerte der Ra-226 Folgeprodukte (Bi-214, Pb-214) weisen mit ca. 6 – 7 Bq/kg ein deutliches Defizit zu Ra-226 (ca. 12 Bq/kg) auf. Auch in den Daten aus (ISCORS, 2003) zeigt sich dieser Unterschied mit einem Median von Pb-214 und Bi-214 von ca. 11 Bq/kg und Ra-226 von 74 Bq/kg. Diese Befunde weisen darauf hin, dass bei den Analysen das Rn-222 nicht ins Gleichgewicht mit Ra-226 nachgewachsen war. Die häufig kurze Zeit zwischen Probenahme und Messung bei gammaspektrometrischen Proben (Abbildung 7-4) macht diese Einschätzung plausibel.
- Bei einem Klärschlammanfall von 0,19 kg(TM) je m³ Abwasser (siehe Kapitel 3.3) ist die im Klärschlamm enthaltene Aktivität von 7,2 Bq/m³ U-238 (Medianwert Klärschlamm 35,6 Bq/kg(TM)) nicht ausreichend, um bei Annahme eines Gleichgewichtes in der Zerfallsreihe und Lösung von Ra-226 aus dem Feststoff den Überschuss von Ra-226 im Abwasser (ca. 50 Bq/m³ s. Kapitel 7.4.6) zu erklären.

Tabelle 7-24: Statistische Kennziffern der Datensätze von Radionukliden aus der U-238 Zerfallsreihe im Klärschlamm. Messprogramme Normal-/Routinebetrieb und „Land“

	Ra-226	Bi-214 [Ra-226]	Pb-214 [Ra-226]	Pb-210
Anzahl Datensätze	139	375	598	188
Anzahl Messwerte	139	374	591	158
Einheit	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg
Min	0,26	1,72	1,71	17,6
Unteres Quartil	8,8	4,1	4,87	37,5
Mittelwert	29,4	7,8	324	76,0
Geomittel	17,1	6,5	8,39	57,9
Median	12,1	6,2	6,91	53,1
Oberes Quartil	32,5	10,3	10,80	79,3
Oberer Whisker	68,1	19,6	19,70	142
90%-Quantil*	95,6	14,6	16,80	139
Max	140	35,0	112000	767
Ausreißer	ja	ja	ja	ja

*grün: 90%-Quantil < oberer Whisker; orange: 90%-Quantil > oberer Whisker

Quelle: Autoren

- **Pb-210:** Die spezifischen Aktivitäten von Pb-210 sind deutlich höher als die des langlebigen Vorgängers Ra-226. Sie widerspiegeln den Einfluss der atmosphärischen Deposition von Pb-210.

Der Vergleichswert des 95. Perzentils aus den Untersuchungen in den USA (ISCORS 2003) ist mit 148 Bq/kg ebenfalls passend zu 90%-Quantil der IMIS-Daten.

- **Ra-228 (Ac-228):** Die spezifischen Aktivitäten von Ra-228 und Ac-228 stimmen gut überein. Da Ac-228 aufgrund seiner kurzen Halbwertszeit mit Ra-228 im Gleichgewicht steht, zeigt die bei stark unterschiedlicher Anzahl der Messwerte gute Übereinstimmung, dass die statistischen Kennziffern die realen spezifischen Aktivitäten widerspiegeln. Der Vergleichswert aus den Untersuchungen in den USA (ISCORS 2003) ist mit 30,3 Bq/kg ebenfalls passend dazu.
- **Th-228 (Pb-212, Bi-212, Tl-208):** Die Radionuklide Pb-212, Bi-212, Tl-208 stehen als kurzlebige Zerfallsprodukte in engem Bezug zum langlebigen Th-228. Aus den Daten der Tabelle 7-25 ergibt sich als spezifische Aktivität von Th-228 ein Medianwert von ca. 9 Bq/kg. Dieser Wert ist signifikant geringer als die entsprechende spezifische Aktivität von Ra-228. Der Vergleichswert aus den Untersuchungen in den USA (ISCORS 2003) ist mit 22,4 Bq/kg zwar höher, ist aber in Relation zum Ra-228 ebenfalls niedriger.

Tabelle 7-25: Statistische Kennziffern der Datensätze von Radionukliden der Th-232-Zerfallsreihe. Messprogramme Normal-/Routinebetrieb und „Land“

	Ra-228	Ac-228 [Ra-228]	Pb-212 [Th-228]	Bi-212 [Th-228]	Tl-208 [Th-228]	Tl-208* [Th-228]
Anzahl Datensätze	49	378	381	315	262	
Anzahl Messwerte	49***	378	381	294	258	
Einheit	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg
Min	13,90	7,6	2,10	2,93	1,13	3,14
Unteres Quartil	20,30	19,6	5,73	7,6	2,34	6,31
Mittelwert	25,5	28,0	8,04	101,0	4,63	12,8
Geomittel	24,6	25,7	7,50	12,6	3,79	10,3
Median	24,3	24,9	7,15	9,7	3,27	8,86
Oberes Quartil	28,8	31,7	9,70	13,6	5,76	15,9
Oberer Whisker	41,6	49,8	15,66	22,5	10,88	30,4
90%-Quantil**	35,5	41,5	12,60	19,6	9,62	26,9
Max	49	79,6	23,30	8540	16,80	61,4
Ausreißer	ja	ja	ja	ja	ja	

* Auf das Verzweungsverhältnis Bi-212 → Tl-208 (0,36) korrigierte Werte

** grün: 90%-Quantil < oberer Whisker; orange: 90%-Quantil > oberer Whisker

*** davon 45 Messwerte aus der Kläranlage Hamburg Köhlbrandhöft

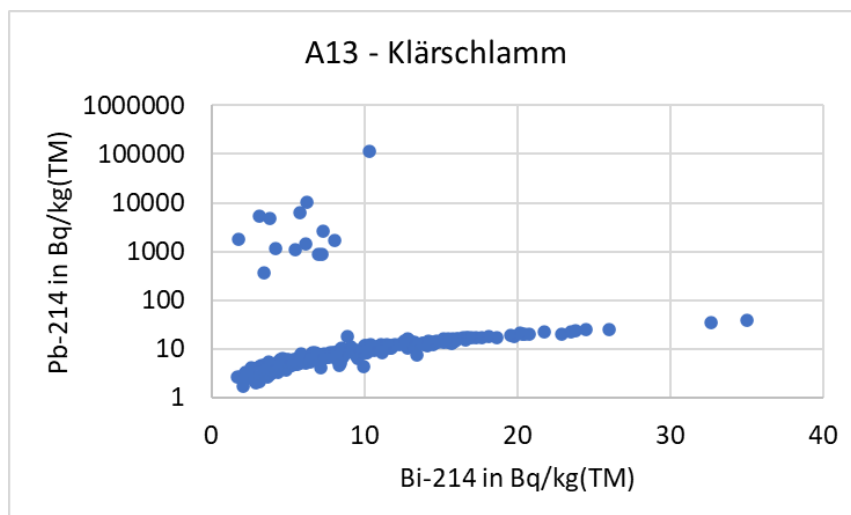
Quelle: Autoren

Beim Pb-214 und Bi-212 liegen die jeweiligen Maximalwerte weit über dem allgemeinen Umweltniveau dieser Radionuklide und unterscheiden sich auch um zwei Größenordnungen und

mehr von den Maximalwerten für Bi-214 bzw. Pb-212. Da die Nuklidpaare Pb-214 – Bi-214 und Pb-212 – Bi-212 kurzlebige Tochternuklide von Ra-226 bzw. Th-232 sind und Einträge einzelner dieser Radionuklide mit dem Abwasser praktisch ausgeschlossen werden können, sollte im Klärschlamm zumindest ein annäherndes Gleichgewicht in diesen Nuklidpaaren vorliegen.

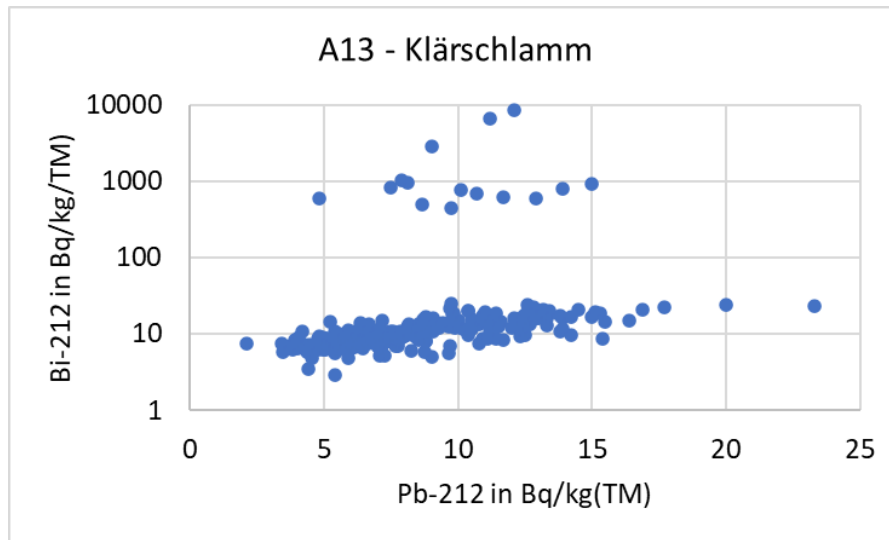
Eine detailliertere Auswertung, bei der Messergebnisse dieser Nuklidpaare aus jeweils zeitgleicher Probenahme und gleicher Kläranlage betrachtet werden, zeigen die Abbildung 7-24 und Abbildung 7-25. In beiden Abbildungen wird deutlich, dass es einen engen Zusammenhang zwischen den Messwerten der jeweiligen Nuklidpaare Pb-214 – Bi-214 und Bi-212 – Pb-212 gibt, von dem sich eine kleinere Gruppe von Werten deutlich abhebt. Alle diese Ausreißer stammen aus Messungen des Labors 15010 an Proben aus den Kläranlagen Dessau, Gerwisch, Halle–Nord und Silstedt. Eine fehlerhafte Anwendung von Zerfallskorrekturen, d. h. eine Annahme von isolierten Einzelnukliden ohne Berücksichtigung des Sachverhaltes, dass die Radionuklide Teil einer Zerfallskette sind, reicht bei den in der Datenbank aufgeführten kurzen Zeiträumen zwischen Probenahme und Messbeginn nicht aus. Durch eine weiterentwickelte Plausibilitätsprüfung können derartige Ausreißer vermieden werden.

Abbildung 7-24: Messwerte von Pb-214 und Bi-214 an gleichzeitig entnommenen Proben



Quelle: Autoren

Abbildung 7-25: Messwerte von Pb-212 und Bi-212 an gleichzeitig entnommenen Proben



Quelle: Autoren

7.8 Weitergehende Auswertungen Abwasser

7.8.1 Messstellenbezogene Auswertungen

Um die Messprogramme für die Überwachung der kommunalen Abwässer weiter entwickeln zu können, sind neben den Kenntnissen zu allgemeinen statistischen Kenngrößen des Datensatzes auch Informationen über die regionale Verbreitung von Messwerten und die Umsetzung der Messprogramme durch die einzelnen Messstellen von Bedeutung. Dazu werden in diesem Kapitel Auswertungen vorgenommen.

Wie bereits im Kapitel 7-1 beschrieben, ist die Überwachung von Abwasser und Klärschlamm Aufgabe der Bundesländer. Die folgenden Auswertungen hinterfragen nicht die Aufteilung der Aufgaben und die zugehörigen Proben- und Untersuchungspläne. Oftmals teilen sich die Messstellen (Kürzel: „MST“) im Bundesland die Messaufgaben. Vielmehr soll geprüft werden, ob sich aus den vorliegenden Daten Fragen ergeben, die im Rahmen der Weiterentwicklung der Messprogramme berücksichtigt werden sollten.

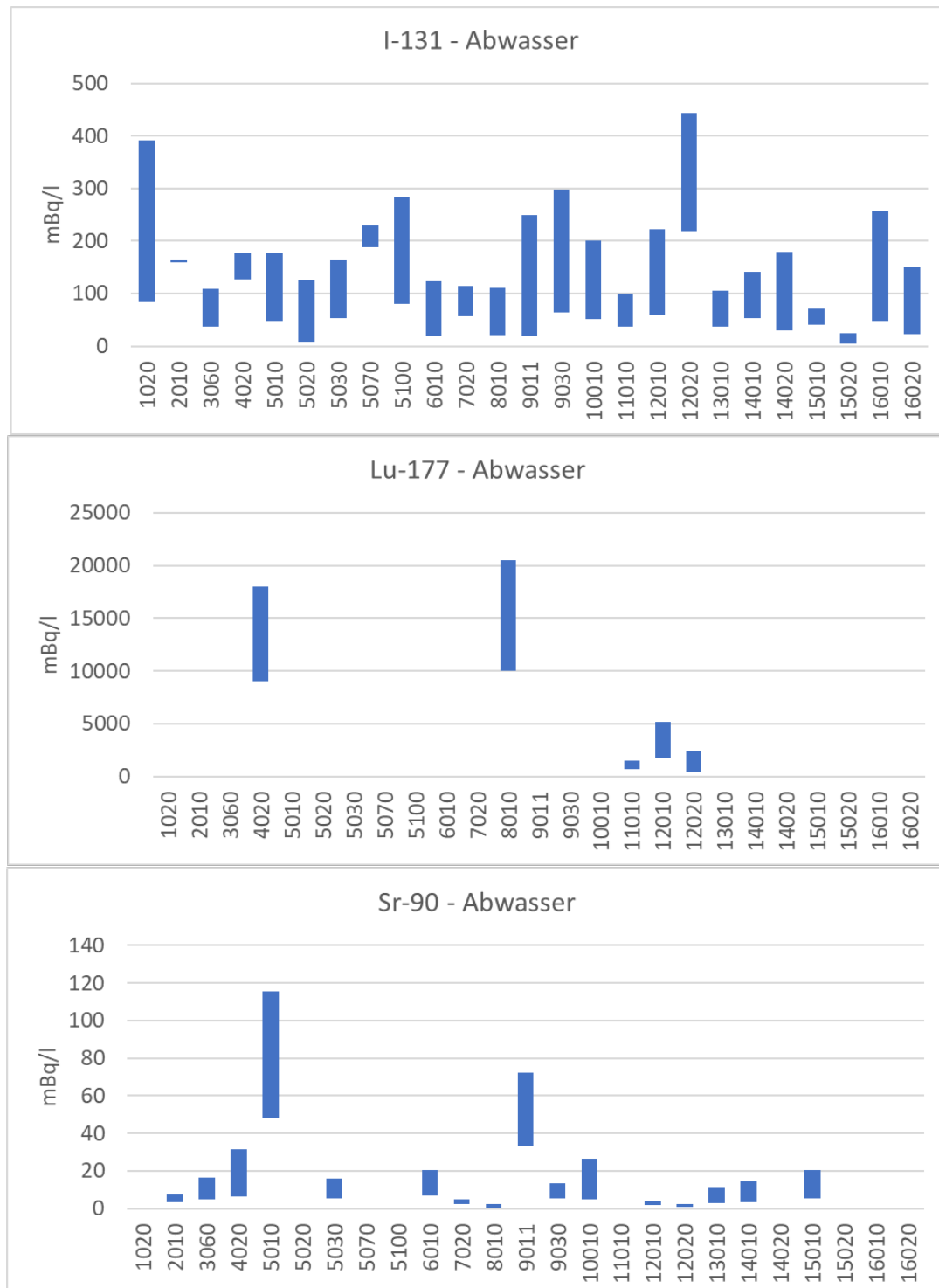
Die nur selten mit Messwerten über der Erkennungsgrenze analysierten Radionuklide Be-7 und Tritium (H-3) wurden im Abwasser nur von wenigen Messstellen (Be-7: 10; H-3: 7) untersucht. Nur in drei Messstellen (Kürzel: „MST“, 10010, 13010, 5010) wurden Messwerte von Be-7, nur in MST 2010 (Hamburg) und MST 7020 (Rheinland-Pfalz) wurden Messwerte von Tritium ermittelt. In beiden Labors wurden Messwerte von H-3 erhalten, die gemessen an einem Maßstab $H-3 > 2 \text{ Bq/l}$ in 16 von 35 Fällen eine Indikation von technogenem Tritium anzeigen.

Von den Radionukliden, die über den Fallout in die Umwelt gelangt sind, wurde Cs-137 von 27 Messstellen, Sr-90 und die Plutoniumisotope (ausgewertet Pu-23940) von 21 bzw. 20 Messstellen untersucht. Messwerte von Cs-137 und den Plutoniumisotopen wurden nur von wenigen Messstellen ausgewiesen, davon häufig nur ein (!) Messwert in den hier ausgewerteten 7 Jahren.

Eine Analyse der Messwerte von Radionukliden, die häufig von allen Messstellen bestimmt wurden, zeigen Abbildung 7-26 und Abbildung 7-27. Dargestellt sind die Wertebereiche der arithmetischen Mittelwerte aus den Messergebnissen der Messprogramme Normal-/Routinebetrieb und „Land“, gemittelt über die Gesamtzahl der jeweiligen Analysen als untere Grenze sowie die arithmetischen Mittelwerte aus den Messergebnissen, gemittelt über die Zahl der „echten“ Messwerte. Die Spreizung des Wertebereiches ist groß, wenn die Zahl der „echten Messwerte“ klein in Relation zu den insgesamt ausgeführten Analysen (und deren Werte unter der Erkennungsgrenze) ist.

Die Wertebereiche von I-131 im Abwasser unterscheiden sich nicht auffällig. Beim Lu-177 wurden nur von wenigen Messstellen Messwerte erhalten. Beim Sr-90 fallen die beiden Messstellen MST 5010 und MST 9011 durch auffällig hohe Werte auf. Während die MST 9011 den Osten Bayerns (beim Sr-90: Schwandorf) erfasste, untersuchte MST 5010 Kläranlagen im zentralen NRW und damit in einem Gebiet, in dem erhöhte Sr-90-Aktivitäten weniger wahrscheinlich als im Osten Bayerns sind. Die Ursachen dieses Befundes sind aus den Messdaten allein nicht abzuleiten.

Abbildung 7-26: Aus den Messdaten errechnete messstellenbezogenen Mittelwerte von I-131, Lu-177 und Sr-90. Abszisse: Messstellennummer aus IMIS

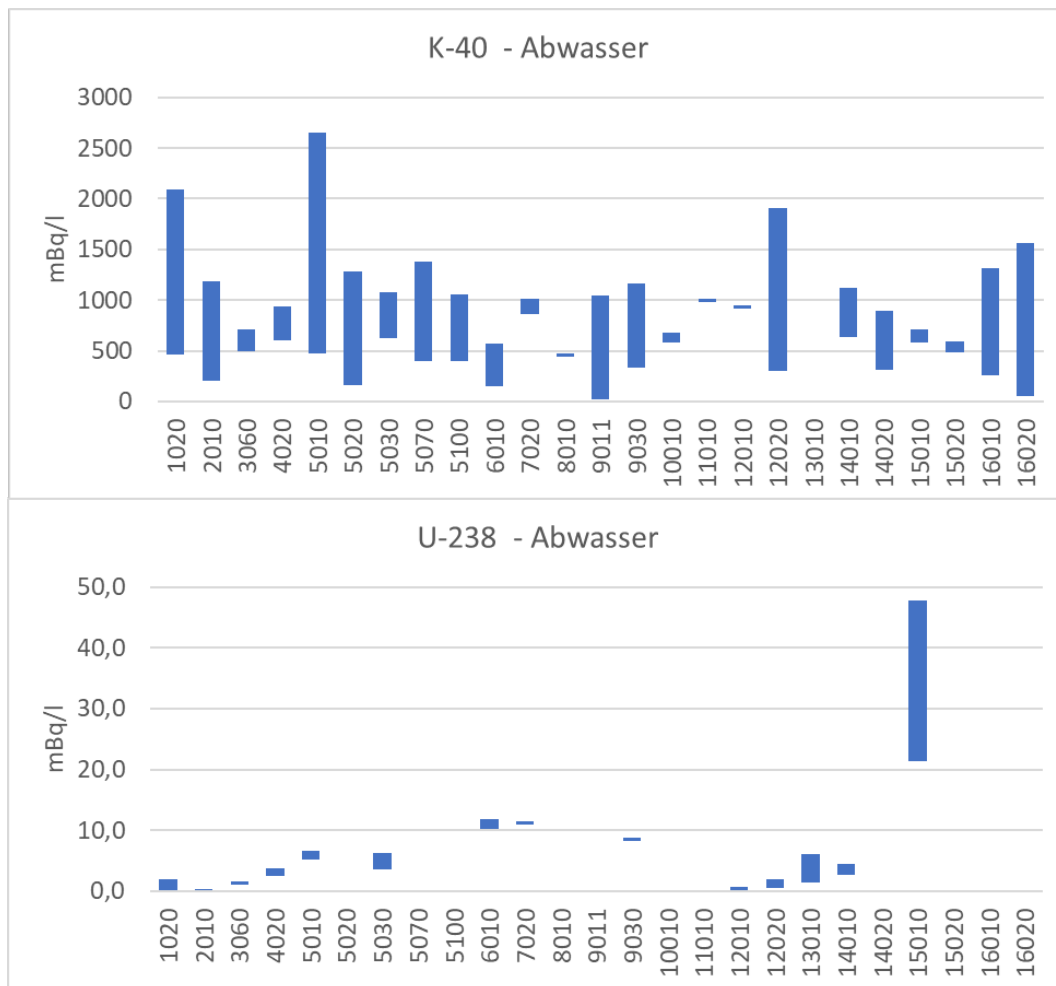


Quelle: Autoren

Auch beim K-40 weist die MST 5010 einen Wertebereich auf, der tendenziell erhöht ist (Abbildung 7-27). MST 9011 und MST 16020 haben demgegenüber besonders geringe untere Werte beim K-

40. Grund dafür ist, dass MST 9011 nur in zwei von 100 Analysen, MST 16020 nur in einer von 27 Analysen einen „echten“ Messwert ermittelte. Beim U-238 fällt die MST 15010 (Sachsen-Anhalt) mit einem sehr hohen Wertebereich auf, der als Ausreißer einzustufen ist. Werte über 10 mBq/l haben auch die MST 6010 (Hessen) und MST 7020 (Rheinland-Pfalz). Die Werte der beiden letztgenannten Messstellen liegen aber im plausiblen Wertebereich.

Abbildung 7-27: Aus den Messdaten errechnete messstellenbezogenen Mittelwerte von K- 40 und U-238. Abszisse: Messstellennummer aus IMIS



Quelle: Autoren

7.8.2 Ortsbezogene Auswertungen

Um die regionale Variabilität von Radionuklidkonzentrationen im Abwasser bewerten zu können und ggf. einen anlagenbezogenen Wertebereich für die Plausibilitätsprüfung zu erhalten, wurden von Radionukliden, für die eine hinreichende Anzahl an Messwerten vorliegt, die Aktivitätskonzentrationen im Abwasser einzelner Kläranlagen ermittelt. Ausgewertet wurden dabei nur Analysen aus den Messprogrammen Normal-/Routinebetrieb und „Land“.

Im Datensatz „Abwasser“ sind 102 Anlagen angegeben, die im Rahmen der IMIS-Messungen beprobt wurden. Eine Kenngröße, die bei der Bewertung der Ergebnisse der nachfolgenden

Auswertungen zu beachten ist, ist die Anzahl der Proben, die den Datensätzen der einzelnen Kläranlagen zugrunde liegen.

Typischerweise werden im Rahmen des Normal-/Routinemessprogramms quartalsweise Proben genommen und analysiert. Für den hier betrachteten Zeitraum (Januar) 2016 bis (Dezember) 2022 ergibt das 28 Proben. Diese Probenzahl kann etwas geringer ausfallen, wenn das zugehörige Radionuklid bei den Einträgen im Einzelfall nicht gemeldet wurde. Durch zusätzliche Messungen im Messprogramm „Land“ können aber auch Datensätze mit deutlich mehr Probenahmen vorkommen. Eine höhere Anzahl von Datensätzen ergibt sich bei einigen Kläranlagen durch Einträge von Doppelmessungen, bei denen Proben mit gleichem Probenahmedatum, zumeist zeitlich etwas versetzt, noch einmal analysiert wurden.

In der Kläranlage Finsterwalde wurden nur zwei Probennahmen jährlich durchgeführt. Von einigen weiteren Kläranlagen (Brandenburg an der Havel, Bayreuth, Freising, Ingolstadt) liegen nur Daten ab 2021 vor, von Jena ab 2019 (16 Datensätze).

Als Basisfall der Auswertung wurden arithmetische Mittelwerte der Messwerte bestimmt. Diese Mittelwerte können die realen mittleren Konzentrationen überschätzen, wenn ein signifikanter Anteil der Messungen zu Ergebnissen unter der Erkennungsgrenze geführt hat. Eine diesbezüglich detailliertere Auswertung wird für U-238 vorgenommen.

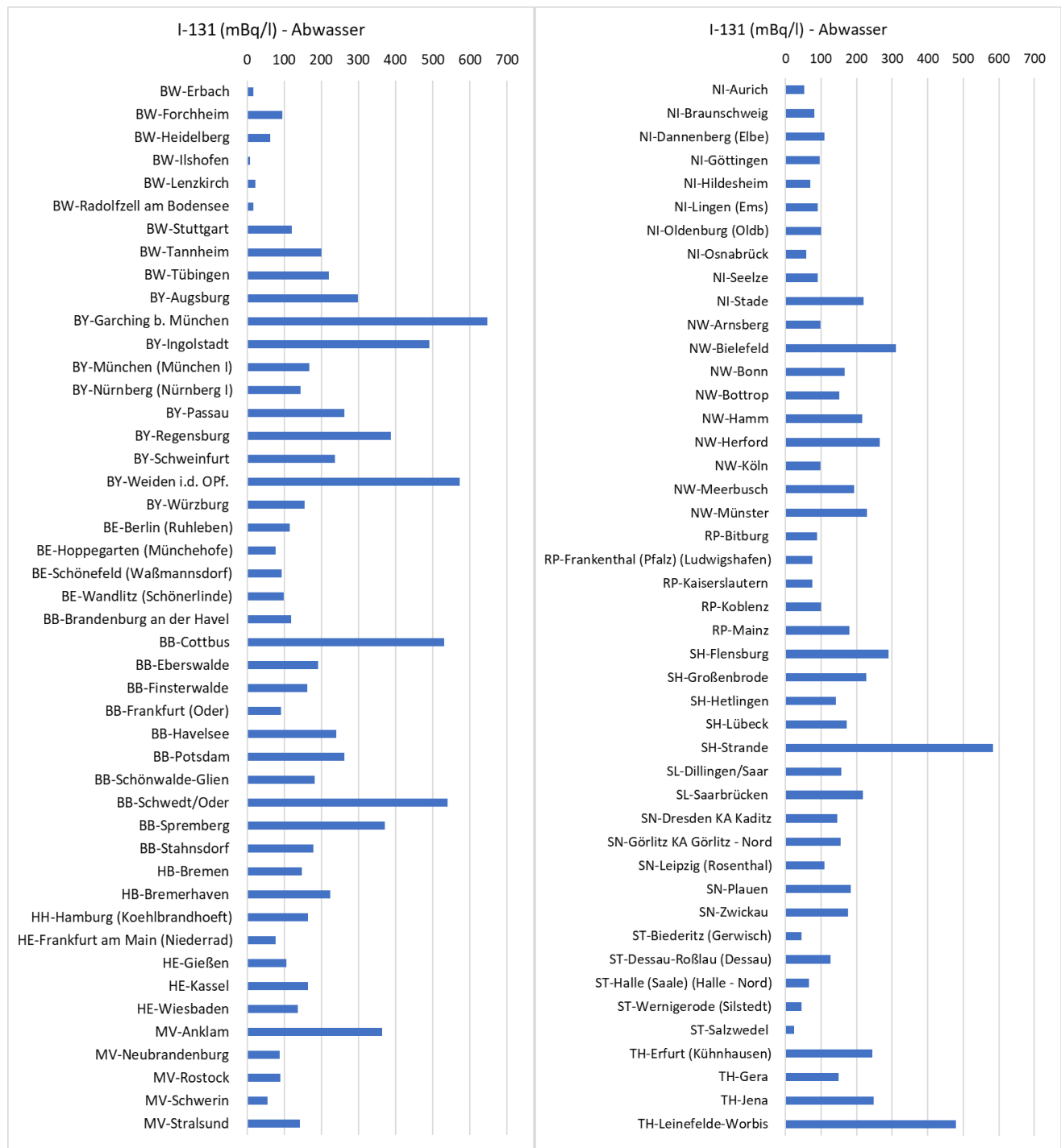
Die Mittelwerte der gemessenen I-131-Konzentrationen an den in der IMIS-Datenbank ausgewiesenen Orten sind in Abbildung 7-28 übersichtsartig dargestellt. Soweit die zugehörigen Kläranlagen abweichende Ortsbezeichnungen aufweisen, sind diese Bezeichnungen ergänzend aufgeführt. Orte, für die keine Messwerte vorlagen, sind nicht mit aufgeführt.

Die Sortierung der Orte erfolgte gruppiert nach Bundesländern und danach alphabetisch.

Zum Vergleich sind in Tabelle 7-26 Jahresmittelwerte aus den beiden BfS-Vorhaben (OSPAR, 2017) aufgeführt. Die Daten zeigen, dass die im IMIS-Messprogramm ermittelten Werte plausibel sind und den erwarteten Wertebereich gut abdecken.

Betrachtet man die höchsten Mittelwerte von I-131, dann fällt auf, dass sie zumeist von kleineren oder mittelgroßen Städten stammen. Da die Konzentrationen sehr stark von der (Ab-)Wasserbilanz beeinflusst werden, sind hier größere Unterschiede möglich, wenn sich die m³ Abwasser je Einwohner unterscheiden.

Abbildung 7-28: Mittelwerte der gemessenen I-131-Konzentrationen im Abwasser einzelner Kläranlagen



Quelle: Autoren

Tabelle 7-26: Jahresmittelwerte I-131 im Abwasser großer norddeutscher Kläranlagen

	Zulauf (Schmutzwasser)			Ablauf (Klärwasser)		
	Wertebereich	Mittelwert	STABW*	Wertebereich (gelöst + Partikel)	Mittelwert	STABW*
Kläranlage	mBq/l	mBq/l	mBq/l	mBq/l	mBq/l	mBq/l
Magdeburg-Gerwisch				39 - 279	132	
Bremen-Seehausen				84 - 419	197	
Lingen				< 14 - 503	117	
Dinslaken				< 16 - 255	97	
	<37 – 428	103	117	26,9 - 135	65,5	37,8
Hannover-Gümmerwald	21,9 – 534	163	167	27,2 - 290	64,2	91
Gütersloh	17,8 - 2136	386	608	32,1 - 320	139	103
Hamburg	27,3 – 447	187	129	104 - 257	169	56

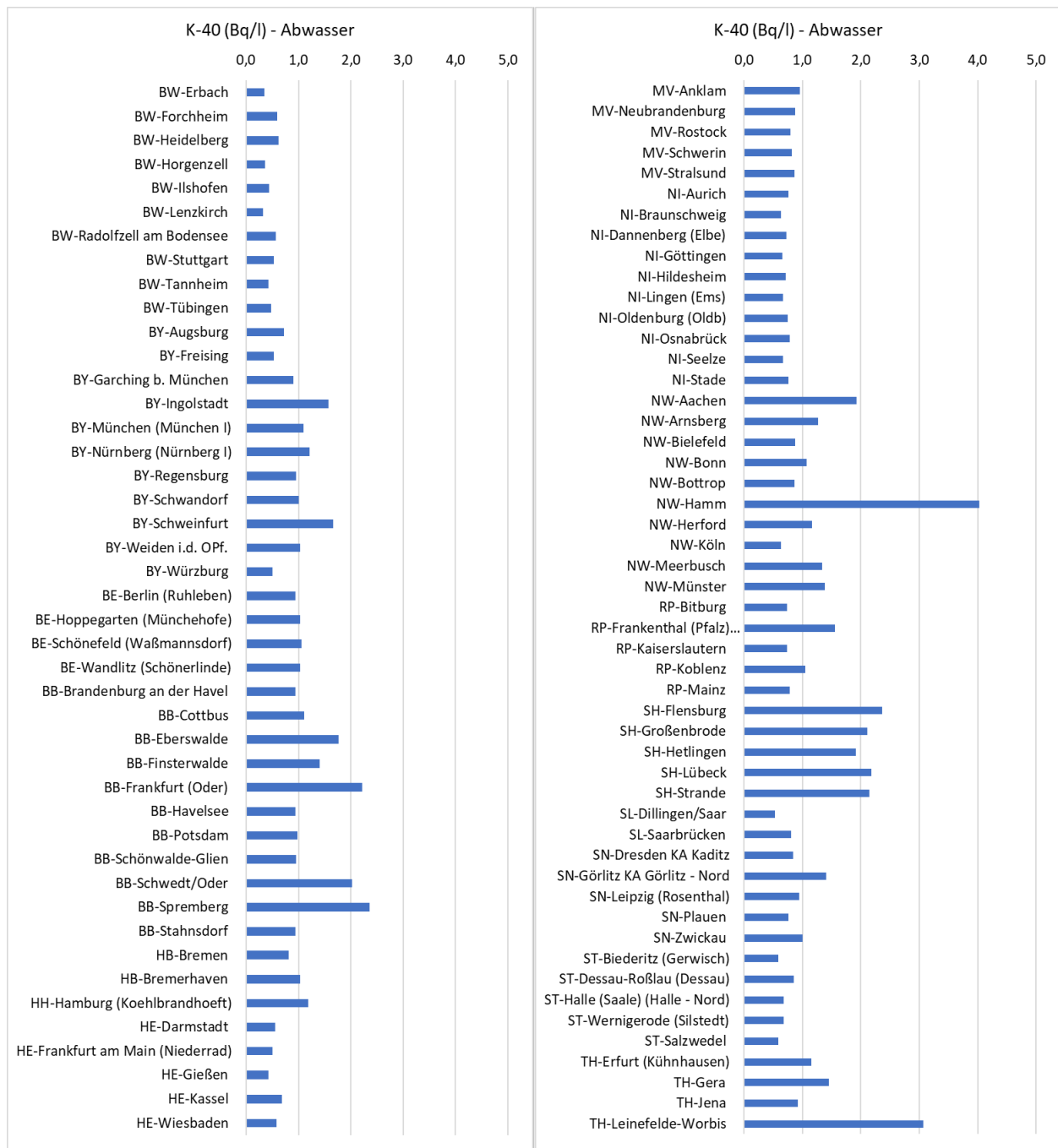
*Standardabweichung

Quelle: Autoren / (OSPAR, 2017)

Analoge Auswertungen wie zu I-131 sind für K-40 in Abbildung 7-29 dargestellt. Werte über 2 Bq/l finden sich zum einen in Schleswig-Holstein (Flensburg bis Strande), in einigen Kläranlagen in Brandenburg (Frankfurt (Oder), Spremberg, Schwedt) und vor allem in Hamm (NRW). Für alle diese Befunde könnten lokale Einflüsse, wie salzhaltige Tiefenwässer des Bergbaus (Hamm und Spremberg), die Salzfracht der Oder (Frankfurt (Oder) und Schwedt) oder Anteile von Meerwasser (Nordseewasser hat ca. 12 Bq/l K-40) Ursache sein.

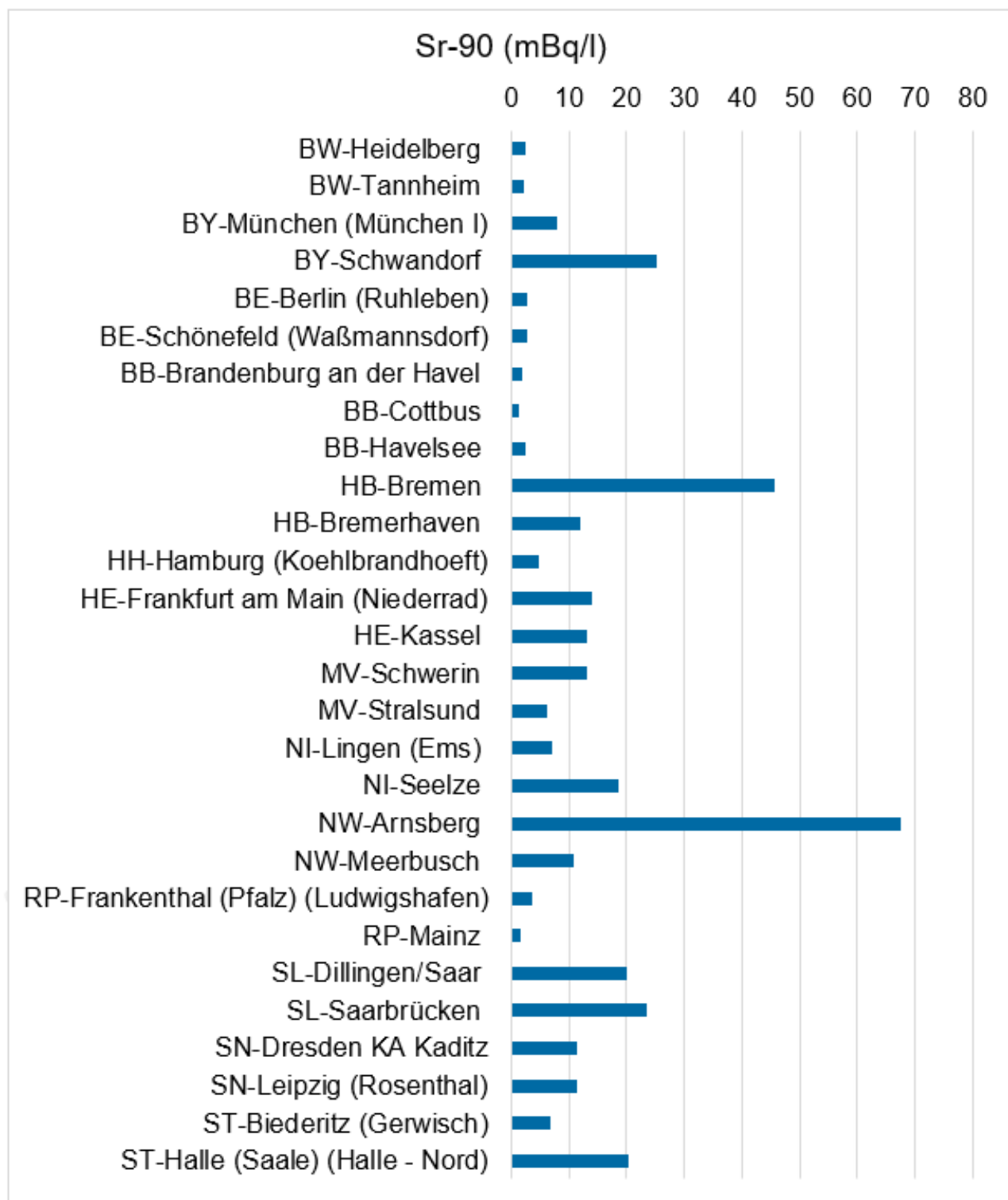
Die arithmetischen Mittelwerte der gemessenen Sr-90- und Lu-177-Konzentrationen im Abwasser einzelner Kläranlagen sind in Abbildung 7-30 und dargestellt. In diesen Diagrammen sind nur die Orte (Kläranlagen) aufgeführt, von deren Abwasser Messwerte vorliegen. Beim Sr-90 fällt auf, dass die erwartete Verteilung mit besonders hohen Konzentrationen im Süden Deutschlands (Bayern, Baden-Württemberg) sich in den Messdaten nicht widerspiegelt. Beim Lu-177 liegen nur aus wenigen Orten auswertbare Datensätze vor. Nur in Bremen wurde im ausgewerteten Zeitraum mit 15 Messwerten eine für statistische Aussagen geeignete Datenreihe erhalten. Für Forchheim und Heidelberg liegen je 6 Messwerte vor. In den meisten anderen in aufgeführten Orten (Kläranlagen) wurden nur 1 oder 2 Messwerte in der IMIS-Datenbank dokumentiert. Für eine repräsentative Aussage über die allgemeine Belastung des Abwassers mit Lu-177 reichen die bisherigen Daten nicht aus.

Abbildung 7-29: Mittelwerte der gemessenen K-40-Konzentrationen im Abwasser einzelner Kläranlagen



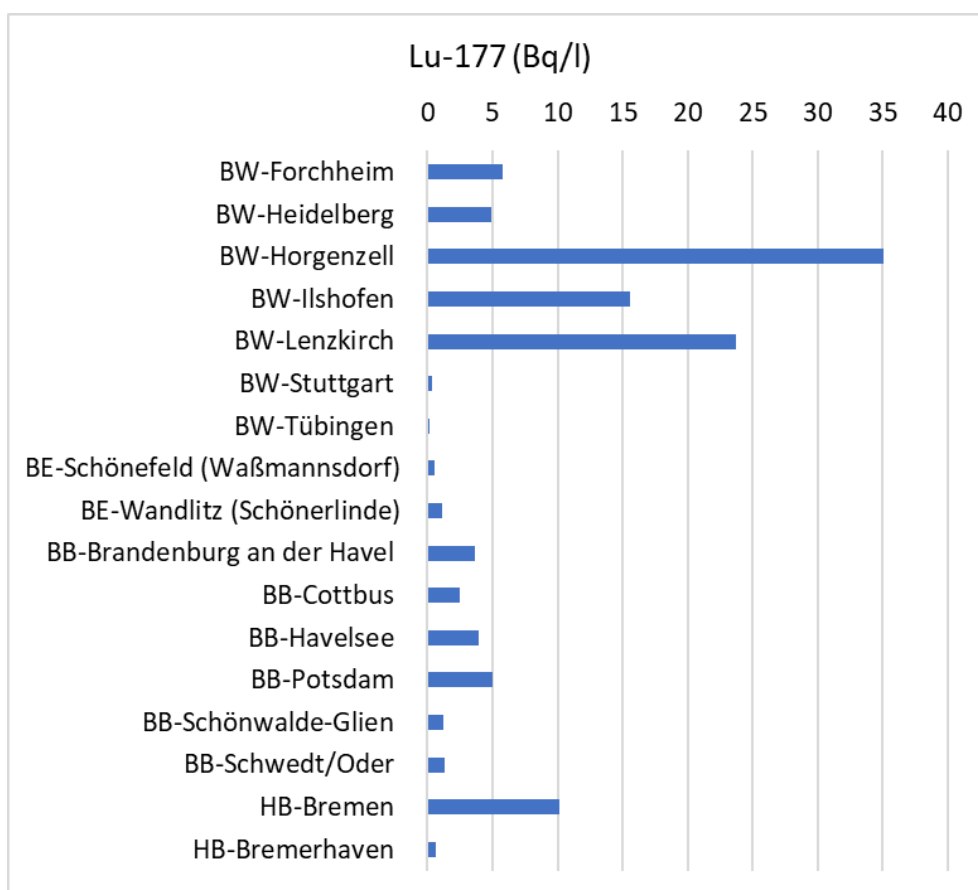
Quelle: Autoren

Abbildung 7-30: Mittelwerte der gemessenen Sr-90-Konzentrationen im Abwasser einzelner Kläranlagen



Quelle: Autoren

Abbildung 7-31: Mittelwerte der gemessenen Lu-177-Konzentrationen in einzelnen Kläranlagen

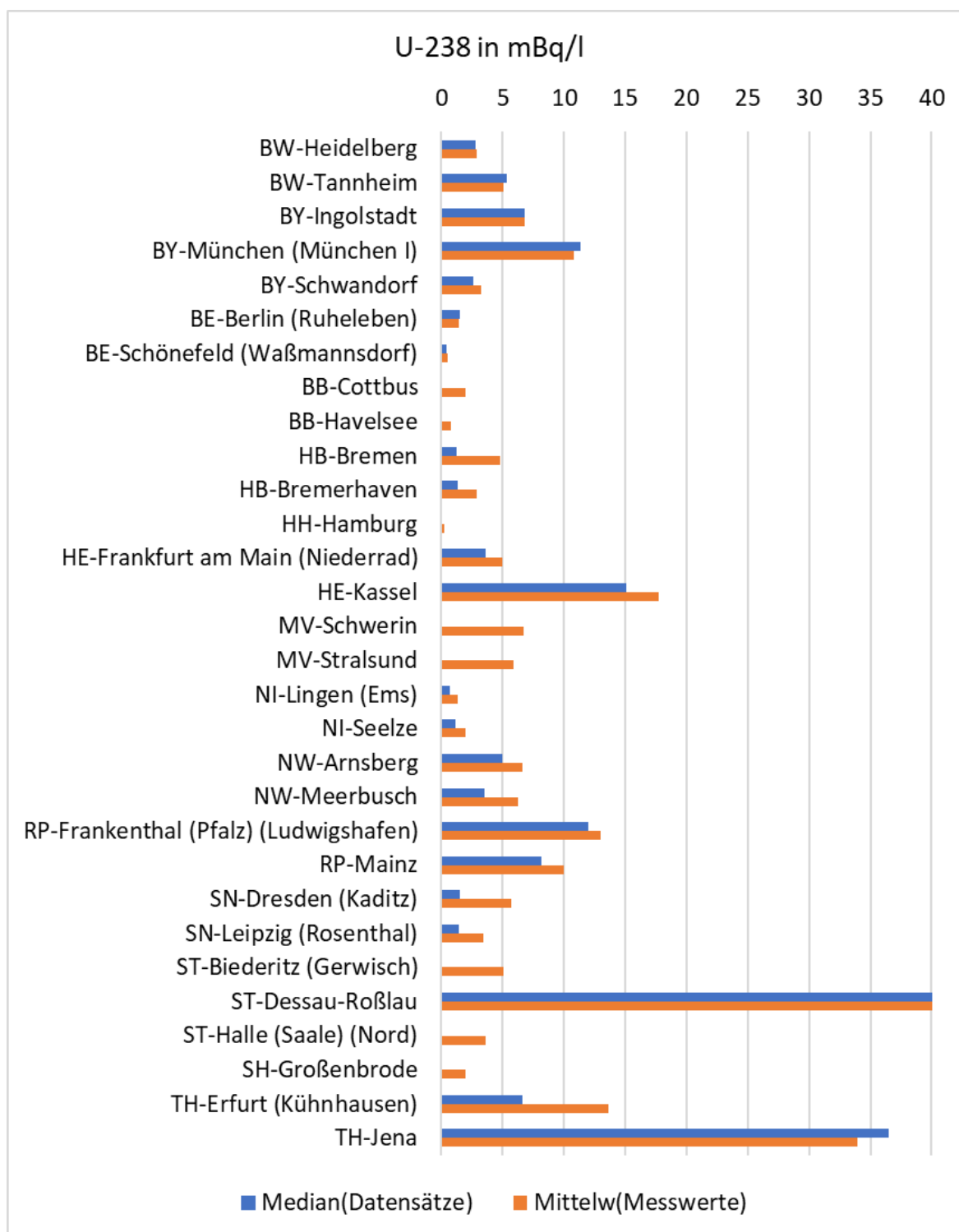


Quelle: Autoren

Eine Auswertung der Datensätze von U-238 ist in Abbildung 7-32 dargestellt. In diesem Diagramm sind die Mittelwerte der Messwerte und die auf alle Analysen (einschließlich solcher mit Ergebnis unter der Erkennungsgrenze) berechneten Medianwerte im Abwasser einzelner Kläranlagen aufgeführt. Anlagen, in denen U-238 gar nicht bestimmt wurde, sind nicht aufgeführt. In den meisten Fällen stimmen die Mittelwerte und Medianwerte gut überein.

Zur Einordnung der Werte können die Ergebnisse der deutschlandweiten Trinkwasseranalysen in (BfS, 2009) herangezogen werden. Danach liegt der Schwankungsbereich für U-238 im Grundwasser bei einem Medianwert von 3,2 mBq/l und einem 95%-Quantil von 100 mBq/l. Der Wert von 100 mBq/l wird in den Abwasserdaten nicht erreicht. Der Messwert in der Kläranlage Dessau-Roßlau von über 500 mBq/l wird von den Verfassern dieses Berichtes als Artefakt bewertet. Die Medianwerte für die Kläranlagen Frankenthal (Pfalz), Jena, Kassel und München sind mit über 10 mBq/l im Vergleich zu sonstigen Werten leicht erhöht. Nur für Jena kann die U-238-Konzentration im Abwasser mit Messdaten im Grundwasser (Rohwasser) aus (BfS, 2009), die einen Median von 66 mBq/l aufweisen, gut erklärt werden. Für Frankenthal (Pfalz) und Ludwigshafen werden in (BfS, 2009) im Grundwasser <0,74 mBq/l angegeben, für Kassel <0,74 mBq/l bis 3,5 mBq/l. Die U-238-Werte im Abwasser sind damit nicht erklärbar.

Abbildung 7-32: Medianwerte der Datensätze und Mittelwerte der gemessenen U-238-Konzentrationen in einzelnen Kläranlagen



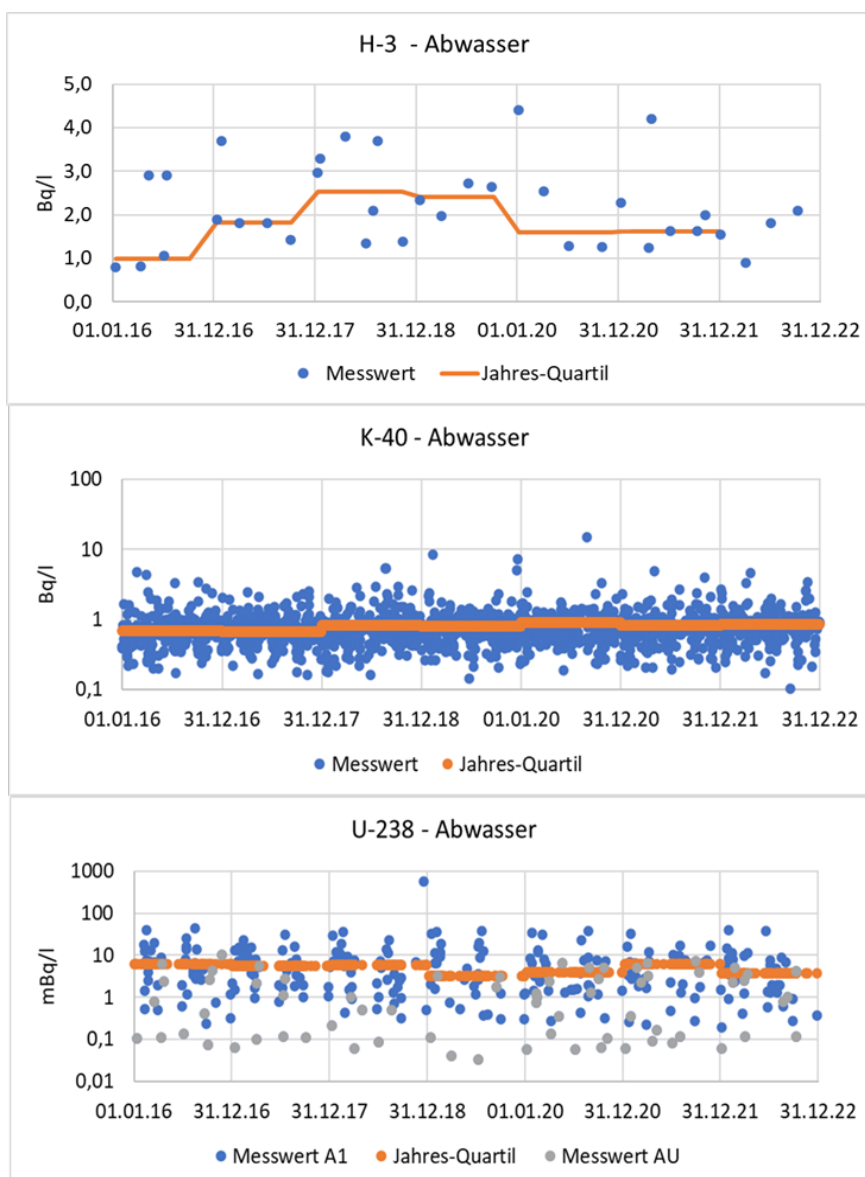
Quelle: Autoren

7.8.3 Zeitreihen

Eine Auswertung von Zeitreihen ausgewählter Radionuklide im Abwasser zeigen die Diagramme in Abbildung 7-33. Bezugspunkt der Zeit ist jeweils der Beginn der Probenahme. Da (mit Ausnahme von H-3) alle Messwerte um Größenordnungen variieren, wurden logarithmische Ordinaten gewählt.

Neben den als Datenpunkte eingezeichneten Messwerten aller Kläranlagen, für die Messwerte vorliegen, sind als statistische Kennziffern die oberen (75%) Quartilwerte aller Datensätze für die hier ausgewerteten Jahre von 2016 bis 2022 dargestellt. Das obere Quartil musste gewählt werden, da der Median bei einzelnen Datensätzen aufgrund zu vieler Einträge unter der Erkennungsgrenze keinen Wert ergibt.

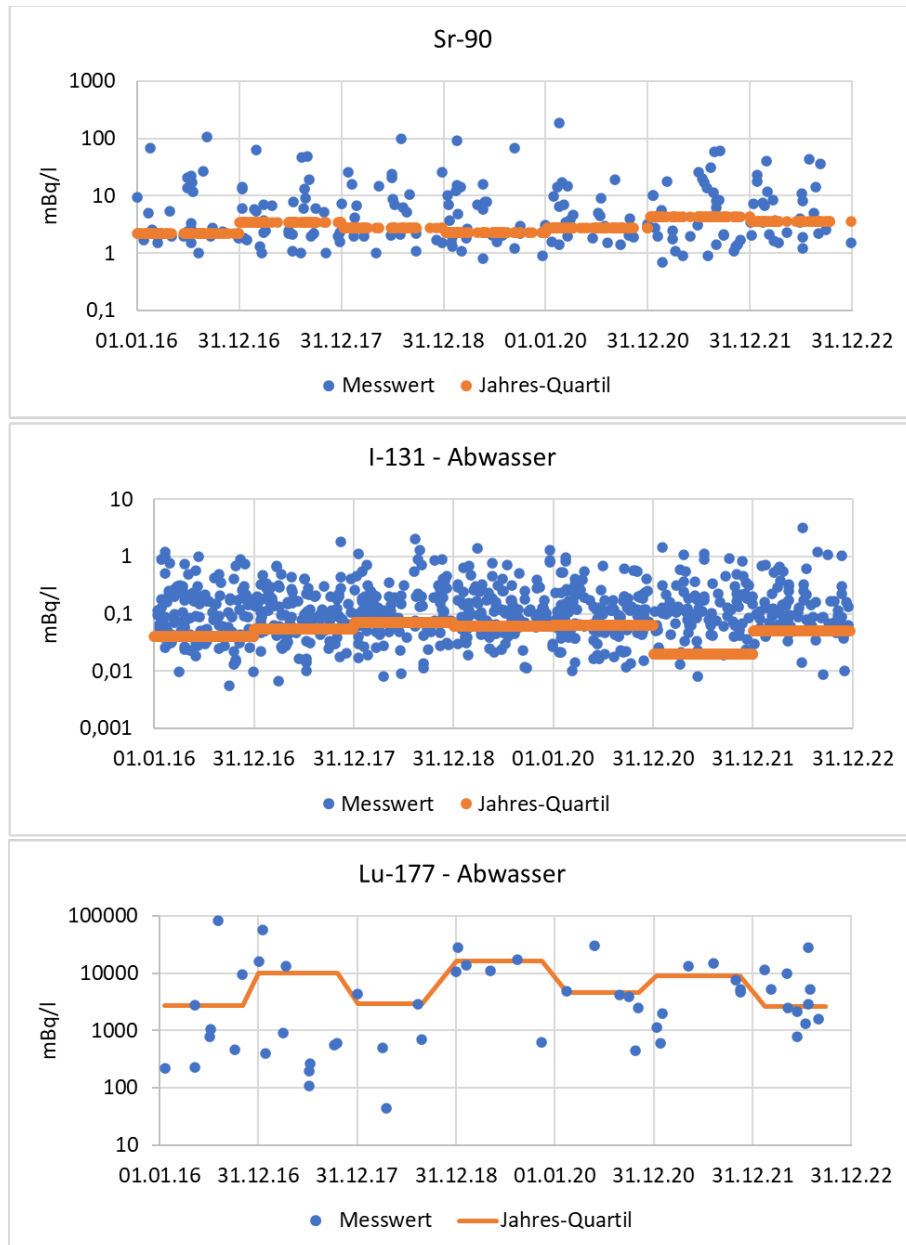
Abbildung 7-33: Zeitreihen von H-3, K-40 und U-238 im Abwasser. Messprogramm Normal-/Routinebetrieb oder „Land“



Quelle: Autoren

Weder bei den natürlich vorkommenden Radionukliden H-3, K-40 und U-238 (Abbildung 7-33) noch bei Sr-90 und den nuklearmedizinisch genutzten Radionukliden I-131, Lu-177 (Abbildung 7-34) sind eindeutige Trends erkennbar. Die angedeutete Periodizität in den Datensätzen von U-238 spiegelt eher die Probenahmeintervalle als eine (jahres-)zeitliche Variation der U-238-Konzentrationen wider.

Abbildung 7-34: Zeitreihen von Sr-90, I-131 und Lu-177



Quelle: Autoren

7.9 Weitergehende Auswertungen Klärschlamm

7.9.1 Ortsbezogene Auswertungen

Ähnlich wie beim Abwasser wurde von Radionukliden, für die eine hinreichende Anzahl an Messwerten im Klärschlamm vorliegt, die spezifische Aktivität im Klärschlamm einzelner Kläranlagen ermittelt. Ausgewertet wurden dabei nur Analysen aus den Messprogrammen Normal-/Routinebetrieb und „Land“.

Im Datensatz „Klärschlamm“ sind 98 Anlagen angegeben, die im Rahmen der IMIS-Messungen beprobt wurden. Analog zum Abwasser wurden auch für die Untersuchung von Klärschlamm im Rahmen des Normal-/Routinemessprogramms quartalsweise Proben genommen und analysiert. Für den hier betrachteten Zeitraum (Januar) 2016 bis (Dezember) 2022 ergibt das 28 Proben. Abweichungen von dieser Probenzahl sind aus ähnlichen Gründen wie beim Abwasser schon genannt möglich.

Als Basisfall der Auswertung wurden arithmetische Mittelwerte der Messwerte bestimmt. Da im Unterschied zum Abwasser bei den im Weiteren ausgewerteten Radionukliden beim Klärschlamm zumeist nur ein geringer Anteil der Messungen zu Ergebnissen unter der Erkennungsgrenze geführt hat, sind diese Ergebnisse (mit wenigen Ausnahmen) statistisch repräsentativ.

Die über die Mittelwerte der Kläranlagen errechneten statistischen Kenngrößen sind in Tabelle 7-27 aufgeführt. Der Medianwert stimmt bei I-131 gut mit den entsprechenden Werten nach Tabelle 7-21 überein. Beim Lu-177 sind die Unterschiede größer. Hier spielt eine Rolle, dass die Berliner Kläranlagen Ruhleben und Schönerlinde mit 51 bzw. 50 Messwerten und relativ niedrigen Lu-177-Aktivitäten größeren Einfluss auf die Kenngrößen der Tabelle 7-21 hatten.

Tabelle 7-27: Statistische Kennziffern von nuklearmedizinischen und Fallout-Radionukliden im Klärschlamm errechnet aus Mittelwerten der Kläranlagen

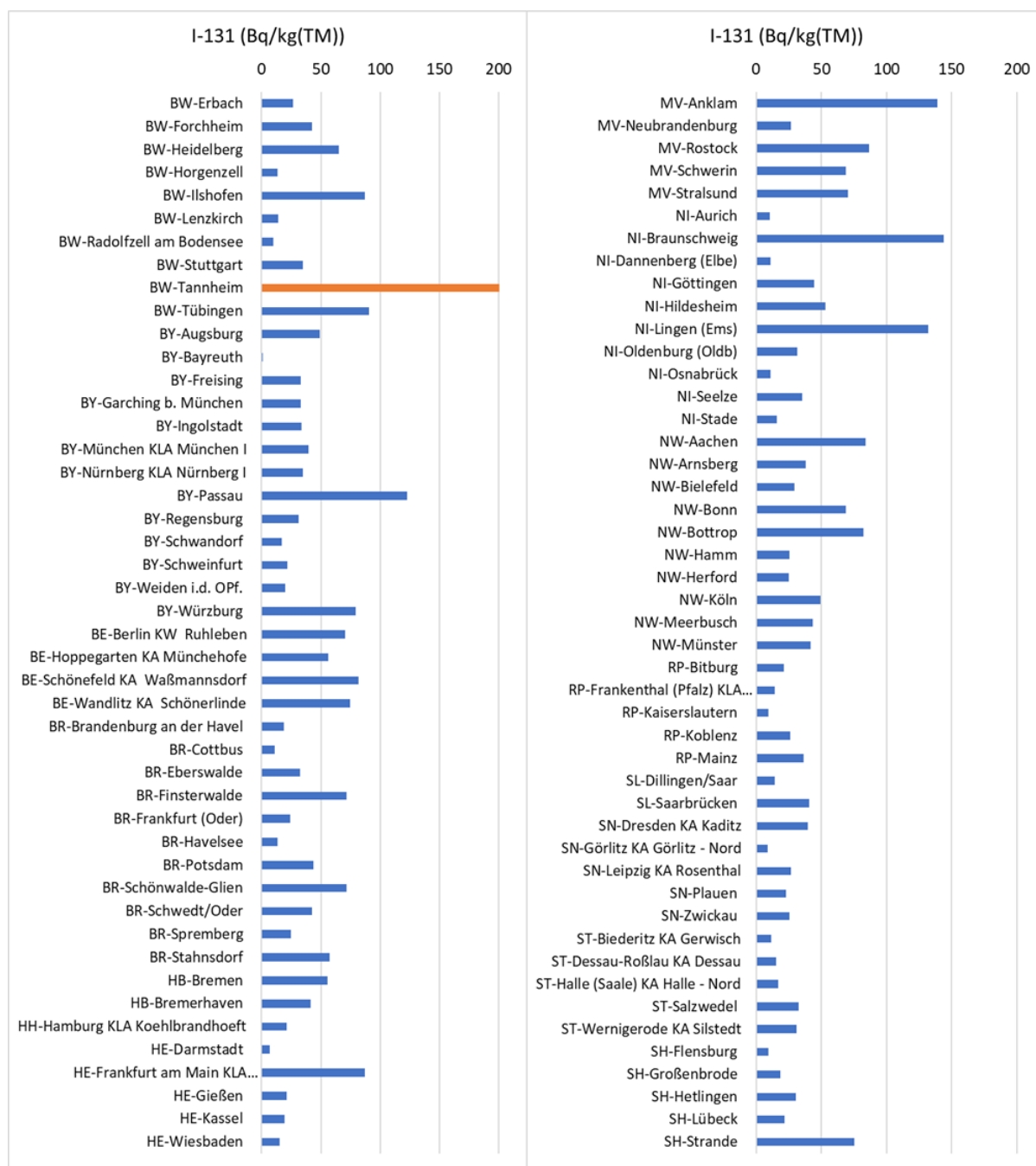
Radionuklid	I-131	Lu-177	Sr-90	Cs-137
Anzahl KA	98	24	33	96
Einheit	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg
Unteres Quartil	11	37	1,0	0,72
Median	32	76	1,4	1,76
Oberes Quartil	83	370	2,3	4,55

Quelle: Autoren

Für die nuklearmedizinischen Radionuklide I-131 und Lu-177 sind die ortsbezogenen Ergebnisse in Abbildung 7-35 und Abbildung 7-36 dargestellt. Die Orte sind nach Bundesländern und danach alphabetisch sortiert. Soweit die Ortsbezeichnung nicht eindeutig ist, wird der Name der Kläranlage ergänzend aufgeführt. Zur besseren Interpretation sind den Orten die Kürzel der Bundesländer vorangestellt.

Prüft man anhand der unteren bzw. oberen Quartile, ob hohe bzw. niedrige Werte in bestimmten Regionen gehäuft vorkommen, dann ist ein solcher Zusammenhang zwischen den Regionen und den Abweichungen von den Quartilwerten für I-131 und auch Lu-177 nicht festzustellen.

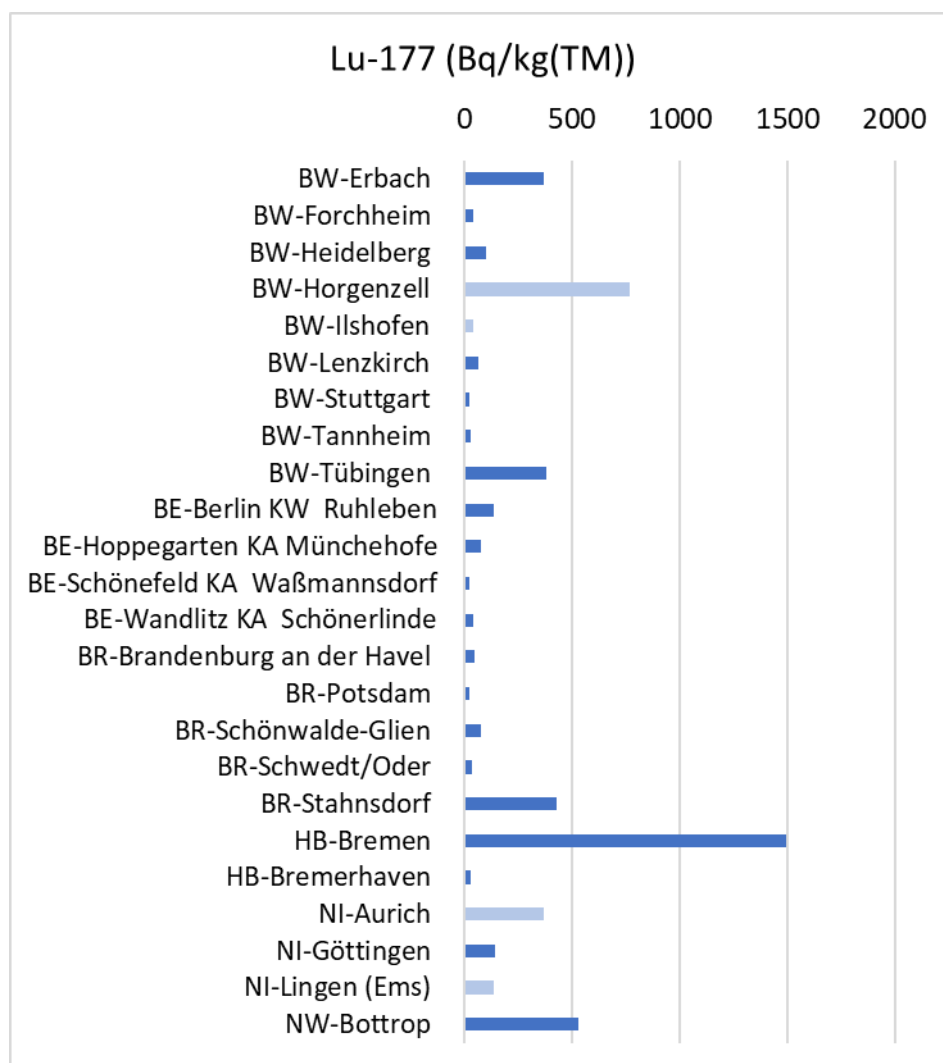
Abbildung 7-35: Mittelwerte der gemessenen spezifischen Aktivitäten von I-131 im Klärschlamm einzelner Kläranlagen. Erläuterung zu „Tannheim“ s. Textteil



Quelle: Autoren

Der in Abbildung 7-35 farblich markierte Mittelwert der KA Tannheim beträgt 662 Bq/kg. Der Wert ist nicht auf einen einzelnen „Ausreißer“ in den Messwerten zurückzuführen. Vielmehr wurden, zeitlich deutlich voneinander getrennt, drei Mal spezifische Aktivitäten von über 1000 Bq/kg ermittelt.

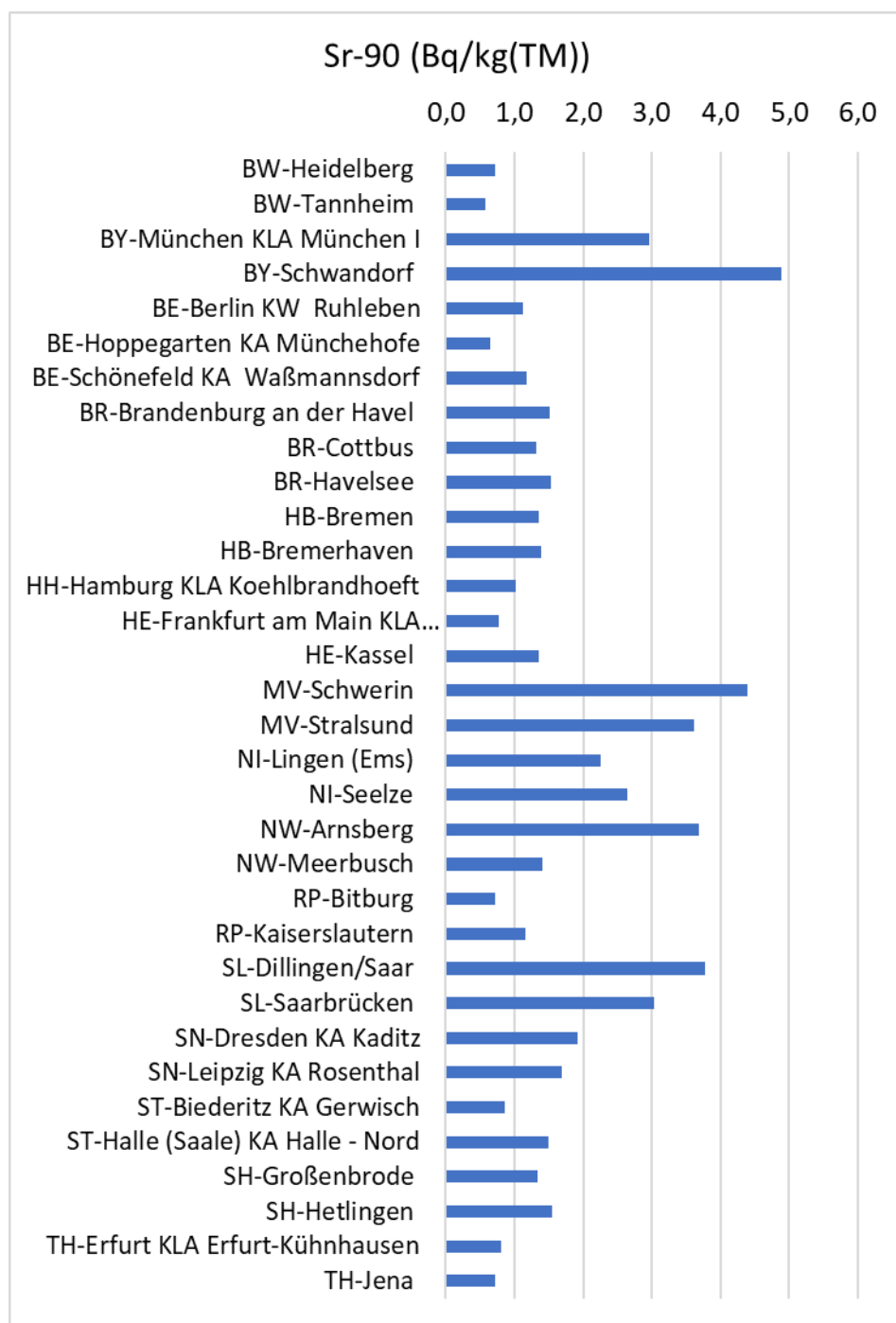
Abbildung 7-36: Mittelwerte der gemessenen spezifischen Aktivitäten von Lu-177 im Klärschlamm einzelner Kläranlagen. Hellblaue Balken: nur 1 Messwert



Quelle: Autoren

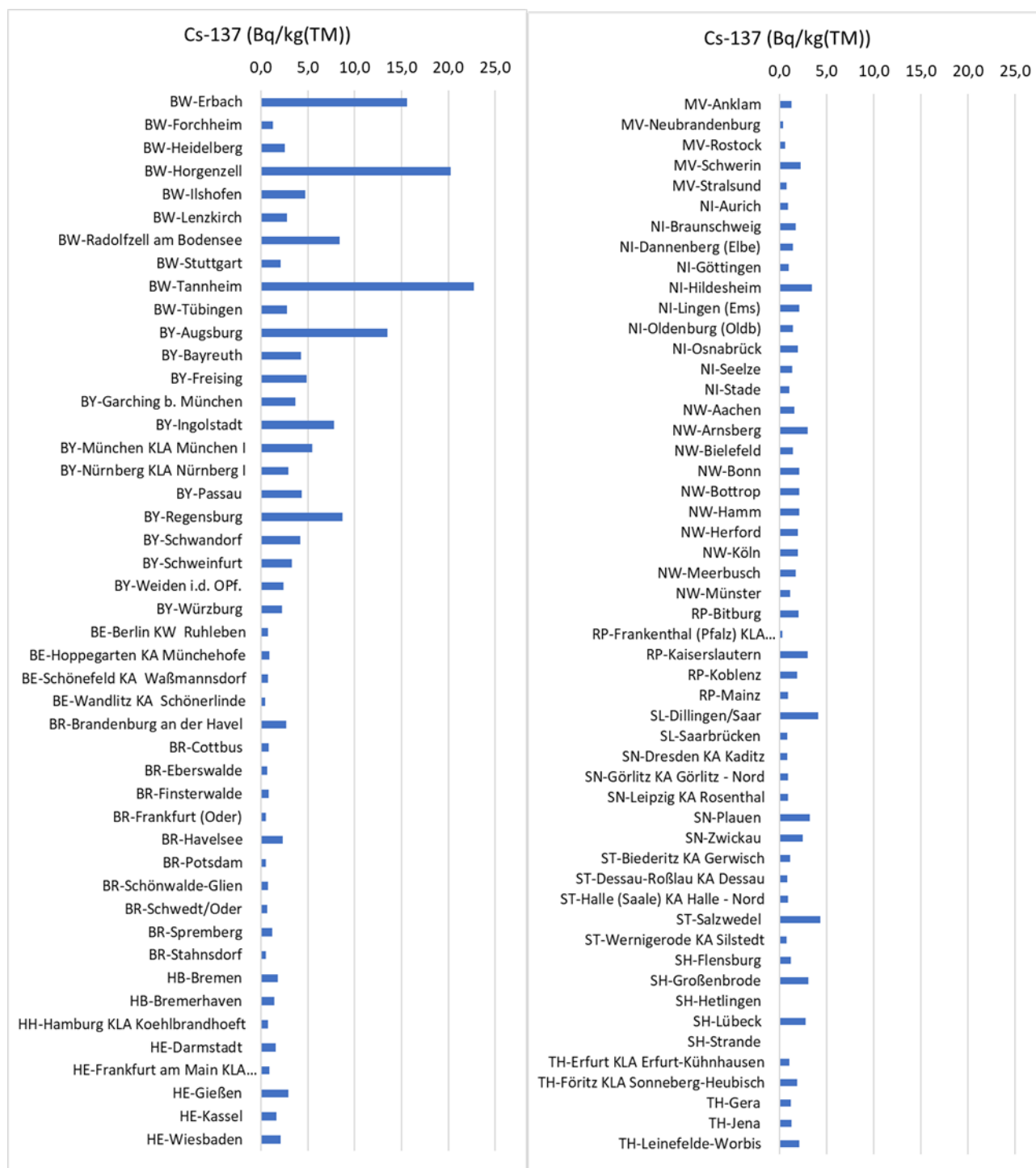
Die ortsbezogenen Mittelwerte der gemessenen spezifischen Aktivitäten der Fallout-Radionuklide Sr-90 und Cs-137 sind in den Balkendiagrammen Abbildung 7-37 und Abbildung 7-38 dargestellt. Während beim Sr-90 ein Zusammenhang zwischen hohen Werten und den bekannten Fallout-Schwerpunkten im Süden Deutschlands nicht sichtbar ist, ist dieser Zusammenhang beim Cs-137 sehr deutlich. Allerdings zeigen sich auch beim Cs-137 deutliche Unterschiede zwischen einzelnen Kläranlagen sowohl in Bayern als auch in Baden-Württemberg.

Abbildung 7-37: Mittelwerte der gemessenen spezifischen Aktivitäten von Sr-90 im Klärschlamm einzelner Kläranlagen



Quelle: Autoren

Abbildung 7-38: Mittelwerte der gemessenen spezifischen Aktivitäten von Cs-137 im Klärschlamm einzelner Kläranlagen



Quelle: Autoren

Für die natürlich vorkommenden Radionuklide Be-7, K-40 sind die statistischen Kennziffern analog zu Tabelle 7-27 in Tabelle 7-28 zusammengestellt. Diese Daten stimmen sehr gut mit den Werten aus Tabelle 7-23 überein.

Tabelle 7-28: Statistische Kennziffern von natürlich vorkommenden Radionukliden im Klärschlamm errechnet aus Mittelwerten der Kläranlagen

Radionuklid	Be-7	Be-7 (Süd)	Be-7 (Nord)	K-40
Anzahl KA	67	40	27	98
Einheit	Bq/kg			Bq/kg
Unteres Quartil	93	209	52	93
Median	187	376	85	122
Oberes Quartil	402	485	120	178

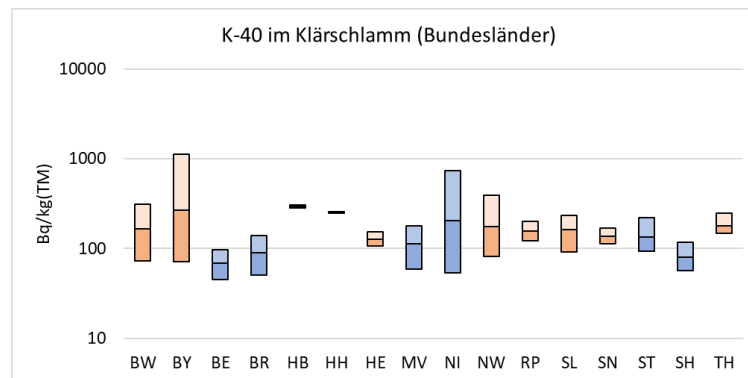
Quelle: Autoren

Betrachtet man die regionale Verteilung der Mittelwerte von Be-7, dann zeigt sich, dass die Werte in den Bundesländern „Nord“: Berlin, Bremen, Hamburg, Mecklenburg-Vorpommern, Niedersachsen und Schleswig-Holstein deutlich niedriger als in den übrigen Bundesländern („Süd“) ausfallen. Die in Tabelle 7-28 mit aufgeführten statistischen Kenngrößen der Regionen „Nord“ und „Süd“ zeigen diesen Unterschied deutlich (Faktor 4!). Obwohl in den Bundesländern Brandenburg, Hessen, Rheinland-Pfalz und Sachsen Be-7 nicht mit ausgewiesen wurde, wird von einem belastbaren Befund ausgegangen.

Da Be-7 ein kosmogenes Radionuklid (Halbwertszeit 53 d) ist, dass global mit einer Depositionsrate zwischen etwa 1,0 und 6,5 kBq m⁻² auf der Erdoberfläche abgelagert wird, wobei vor allem die Höhe der Niederschläge die regionale Verteilung der Deposition beeinflusst (Kaste et al., 2002), wird die Deposition als Ursache des Nord-Süd-Unterschieds im Klärschlamm nicht als die entscheidende Ursache angesehen. Als mögliche Ursache könnte die stärkere Nutzung von Be-7-freiem Grundwasser im Norden und eine tendenziell stärkere Nutzung von Oberflächenwasser (z.B. aus Trinkwassertalsperren) in Frage kommen. Damit wäre Be-7 ggf. ein Indikator von Oberflächenwasseranteilen im Abwasser. Eine vertiefende Prüfung dieser Annahme übersteigt den Rahmen der hier vorzunehmenden Auswertungen. Die routinemäßige Messung von Be-7 im Klärschlamm könnte aber als Element der Qualitätskontrolle sinnvoll sein.

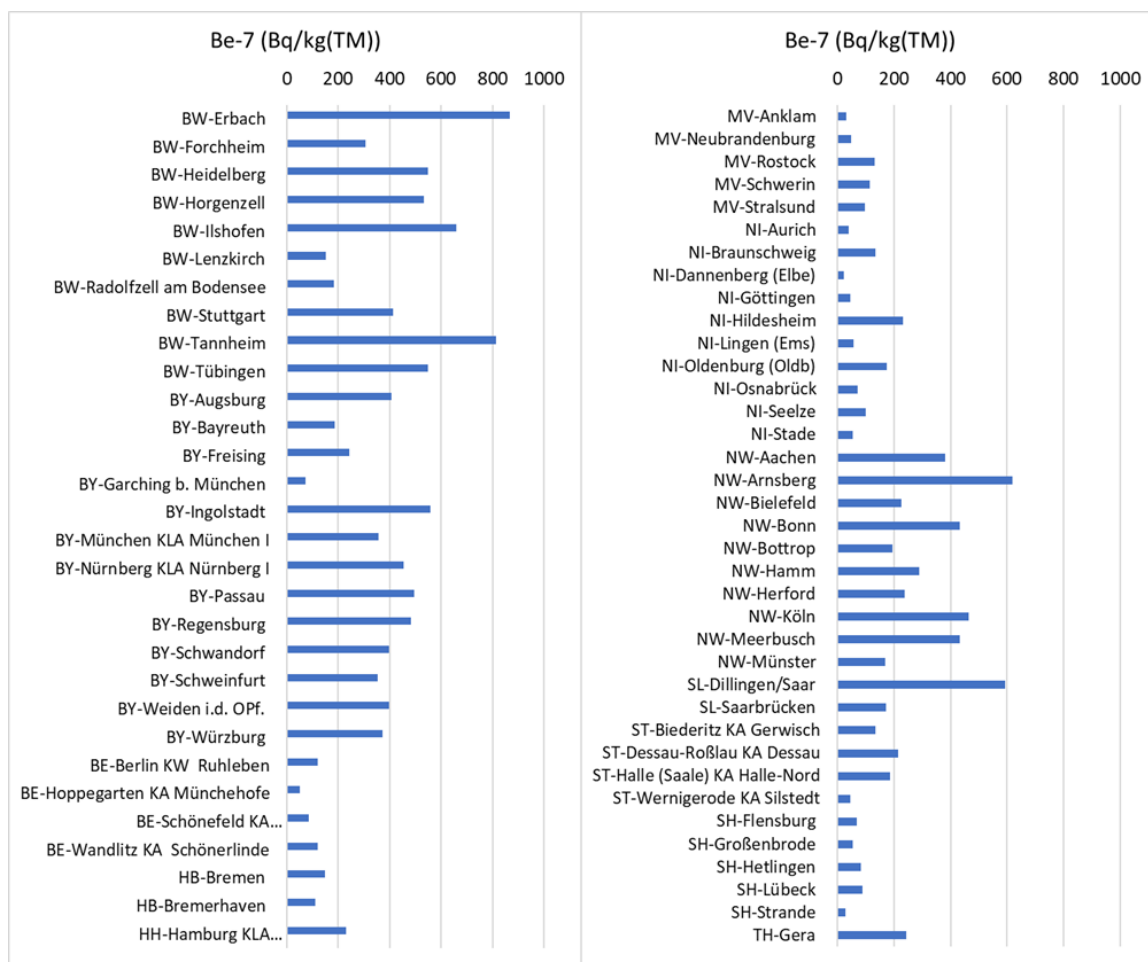
Für K-40 zeigt das Diagramm der Abbildung 7-39, dass ein ausgeprägter Unterschied zwischen Nord und Süd nicht gegeben ist. Auf der hier ausgeführten Ebene der Prüfungen sind sowohl die Werte oberhalb des oberen Quartilwertes als auch unterhalb des unteren Quartilwertes nicht ursächlich aufzuklären. Die beiden farblich markierten Werte der KA Schweinfurt (1.114 Bq/kg) und Lingen (741 Bq/kg) beruhen nicht auf einzelnen Ausreißern, sondern auf zahlreichen Einzelwerten in der ausgewiesenen Größe.

Abbildung 7-39: Wertebereiche (Min – Mittel – Max) von K-40 im Klärschlamm von Kläranlagen der Bundesländer. Blau: „Nord“; braun: „Süd“



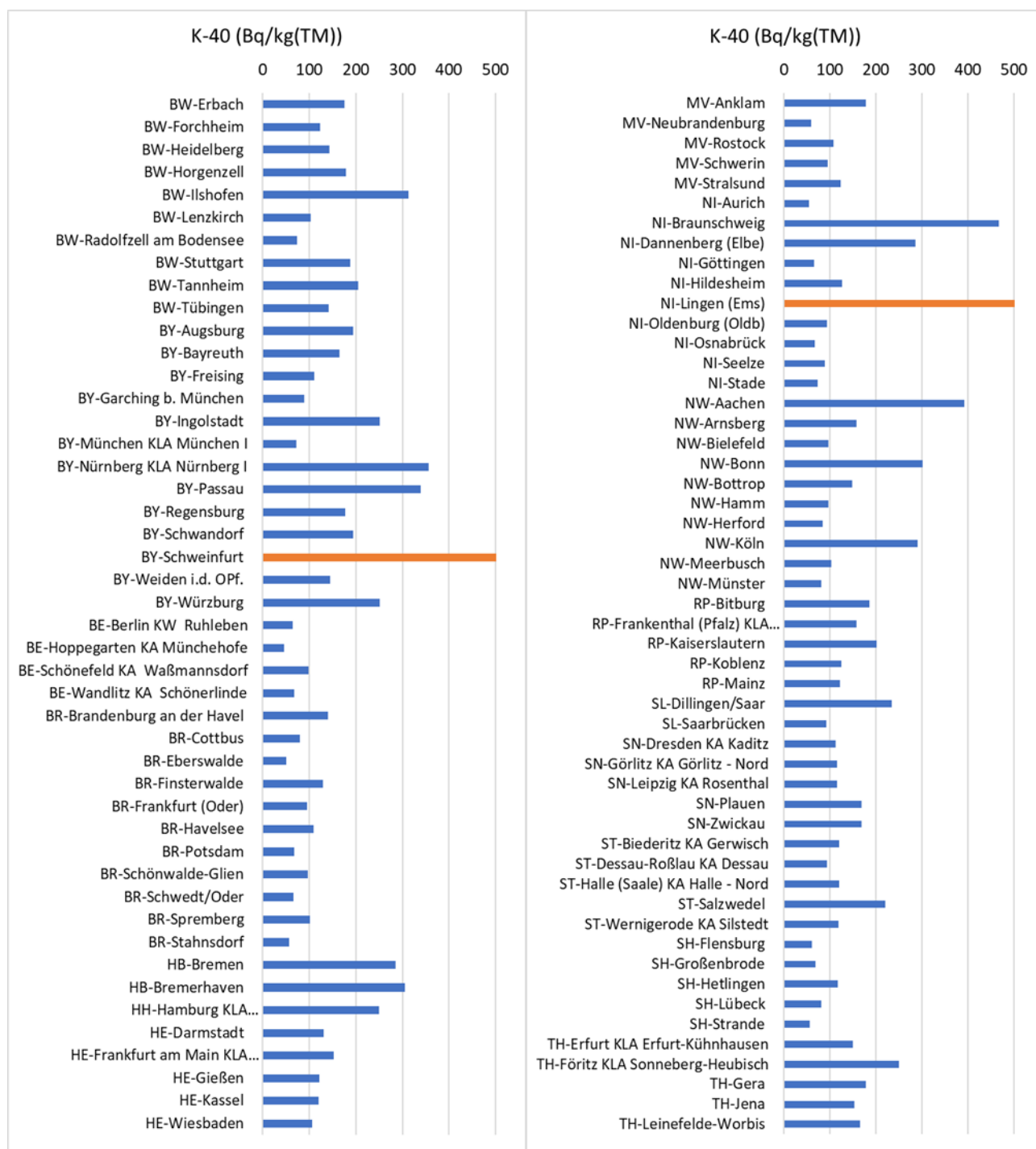
Quelle: Autoren

Abbildung 7-40: Mittelwerte von Be-7 im Klärschlamm einzelner Kläranlagen



Quelle: Autoren

Abbildung 7-41: Mittelwerte der gemessenen spezifischen Aktivitäten von K-40 im Klärschlamm einzelner Kläranlagen



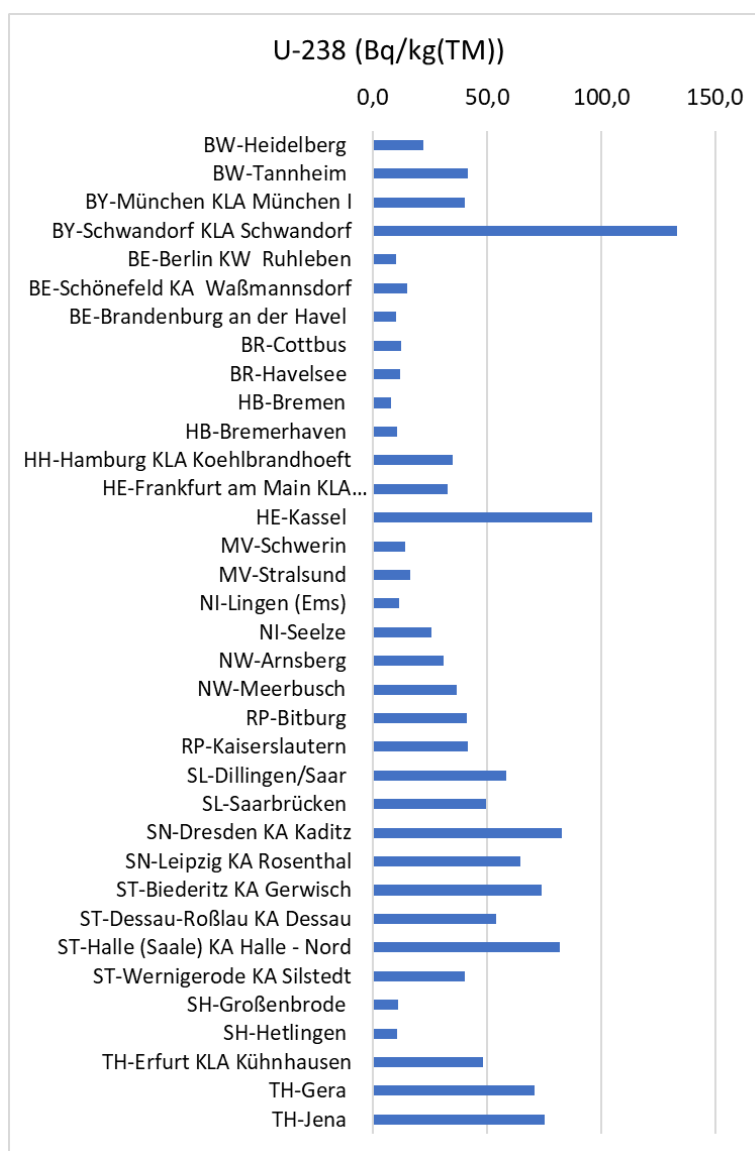
Quelle: Autoren

Für das Radionuklid U-238 liegen aus allen Bundesländern Messwerte im Klärschlamm vor. Allerdings wurden nur in weniger als der Hälfte der Anlagen die U-238-Aktivitäten im Klärschlamm

ermittelt. Die statistischen Kenngrößen von U-238 im Klärschlamm sind in Tabelle 7-29 aufgeführt. Sie stimmen gut mit den aus dem Gesamtdatensatz errechneten Werten in Tabelle 7-23 überein.

Die Zusammenstellung der ortsbezogenen spezifischen U-238-Aktivitäten im Klärschlamm in Abbildung 7-42 zeigt regionale Unterschiede. Getrennt nach den Regionen „Nord“ (Bundesländer Berlin, Brandenburg, Bremen, Hamburg, Mecklenburg-Vorpommern, Niedersachsen, Sachsen-Anhalt und Schleswig-Holstein) und „Süd“ (übrige Länder), zeigt sich in den statistischen Kennziffern ein deutlicher Unterschied (s. Tabelle 7-23).

Abbildung 7-42: Mittelwerte der gemessenen spezifischen Aktivitäten von U-238 im Klärschlamm einzelner Kläranlagen



Quelle: Autoren

Die in Tabelle 7-29 ausgewiesenen Unterschiede der U-238-Aktivitäten im Klärschlamm in den Regionen „Nord“ und „Süd“ spiegeln die unterschiedlichen (hydro-)geologischen Verhältnisse in den Bundesländern mit hauptsächlich pleistozänen Grundwasserleitern (Nord) und festgesteins-

geprägtem Untergrund (Süd) wider. Durch eine genauere Zuordnung der Kläranlagen zu den geologischen Einheiten, aus denen die zugehörigen Orte das Wasser beziehen, könnten die Zusammenhänge noch weiter präzisiert werden.

Tabelle 7-29: Statistische Kennziffern von U-238 im Klärschlamm errechnet aus Mittelwerten der Kläranlagen

Radionuklid	U-238	U-238 (Nord)	U-238 (Süd)
Anzahl KA	35	18	17
Einheit	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg
Unteres Quartil	13	11	40
Median	36	13	48
Oberes Quartil	56	33	71

Quelle: Autoren

Zusammenfassend zeigt die Auswertung der ortsbezogenen Messdaten im Klärschlamm ein plausibles Bild, bei dem auch regionale Unterschiede erkennbar sind. Diese regionalen Unterschiede sollten beachtet werden, wenn statistische Kennziffern zu Vergleichszwecken herangezogen werden.

7.9.2 Zeitreihen

Ähnlich wie im Abwasser wurden die Datensätze des Klärschlammes auch auf zeitliche Veränderungen überprüft. Auch für diese Auswertung ist der Zeitbezug der Beginn der Probenahme.

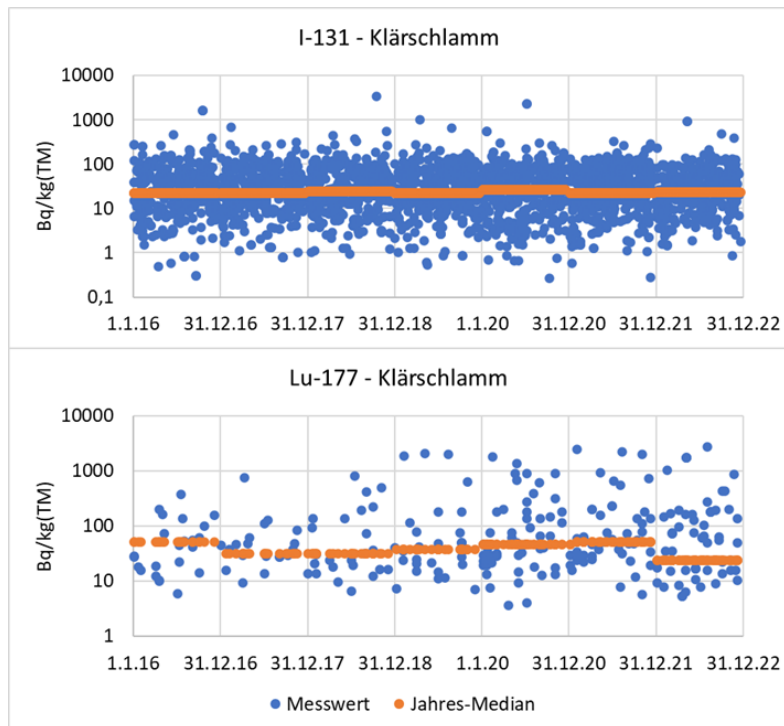
Da im Unterschied zum Abwasser im Klärschlamm nur wenige Messwerte unter der Erkennungsgrenze liegen, konnte als Bezugswert für einen Zeitraum (meist Jahr) der Medianwert genutzt werden. Dieser Wert wird aus allen Daten des jeweiligen Zeitraums errechnet.

Aufgrund der Datenstreuung werden die Messwerte in logarithmischer Skala abgebildet.

In Abbildung 7-43 sind die Zeitreihen für die nuklearmedizinisch genutzten Radionuklide I-131 und Lu-177 dargestellt. Ein Trend, wie er z.B. in der Statistik von Fundbewertungen festgestellt wurde, wo der Anteil der Lu-177-Funde in Relation zu denen von I-131 deutlich zugenommen hat (Gellermann et al., 2019), ist in den Klärschlammdata nicht erkennbar.

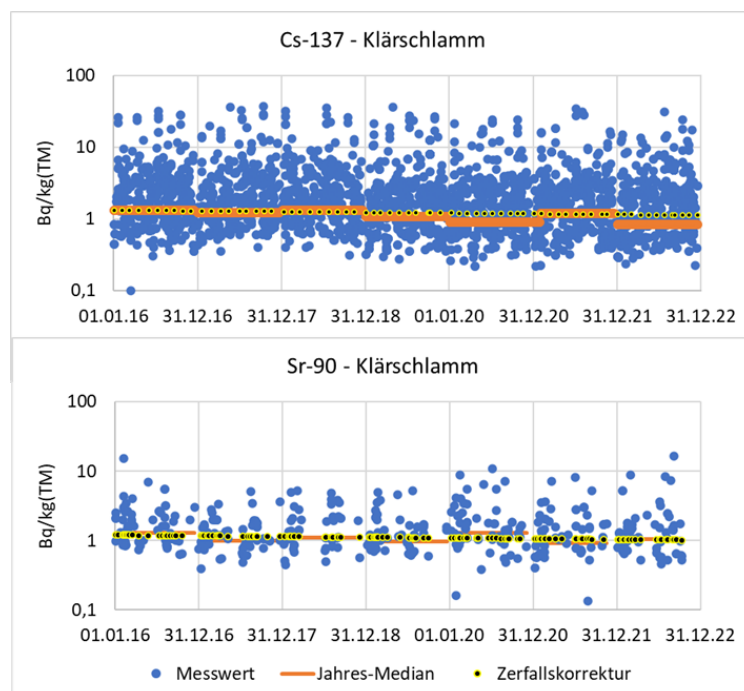
In den Zeitreihen der aus dem Fallout stammenden Radionuklide Cs-137 und Sr-90 (Abbildung 7-44) deutet sich trotz der großen Schwankungsbreite bei den Jahres-Medianwerten ein schwach fallender Trend an, wie er zerfallsbedingt erwartet werden kann. Die entsprechenden Modellkurven der Zerfallskorrektur sind in Abbildung 7-44 mit eingezeichnet.

Abbildung 7-43: Zeitreihen I-131 und Lu-177 im Klärschlamm.



Quelle: Autoren

Abbildung 7-44: Zeitreihen Cs-137 und Sr-90 im Klärschlamm.

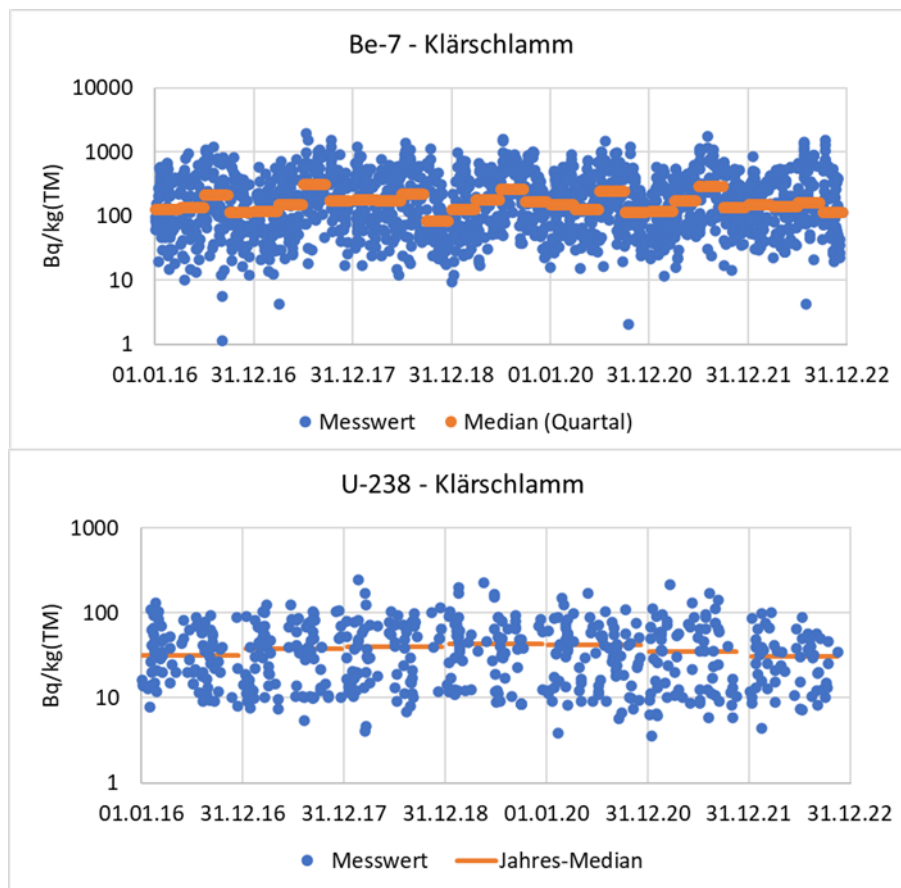


Quelle: Autoren

Von den natürlich vorkommenden Radionukliden wurde die Zeitreihe der Be-7-Werte zeitlich weiter aufgelöst dargestellt, da für dieses Radionuklid ein jahreszeitlicher Gang bekannt ist (z.B. Kaste, 2002). Wie das Diagramm in Abbildung 7-45 erkennen lässt, zeigt sich ein solcher Gang in den quartalsbezogenen Medianwerten im Klärschlamm. Bei einer Nutzung von Be-7 als Qualitätsindikator von Messungen ist die saisonale Variabilität von Be-7 zu beachten.

Bei U-238 zeigen die Jahres-Medianwerte von 2016 bis 2019 eine leichte Zunahme von 31,5 Bq/kg auf 42,8 Bq/kg, danach wieder einen Rückgang bis 2022 auf 30,4 Bq/kg. In Anbetracht der Variabilität der Messwerte wird dieser Effekt für statistisch angesehen.

Abbildung 7-45: Zeitreihen von Be-7 und U-238 im Klärschlamm.



Quelle: Autoren

7.9.3 Verteilungsverhältnisse und Korrelationen

Das System Abwasser und Klärschlamm kann vereinfacht als ein 2-Komponentensystem gesehen werden, in dem sich Stoffe zwischen den beiden Komponenten verteilen. Auch wenn dieses System sich in seiner inneren Dynamik und seinem Chemismus stark von natürlichen Gewässern unterscheidet, kann für eine erste Modellstufe ein einfacher Gleichgewichtsansatz als Modell herangezogen werden. In (AVV, 2020) ist ein solcher Modellansatz mit einer zeitabhängigen Komponente enthalten. Danach kann die Zeitkomponente der Anlagerung von Radionukliden an

Schwebstoffe mit der elementspezifischen Anlagerungskonstante $\lambda_{Anl,r}$ beschrieben werden. Für die spezifische Aktivität in Schwebstoffen (hier: Klärschlamm) C_r^{Sch} gilt:

$$C_r^{Sch} = \begin{cases} K_r^{Se} \cdot [1 - \exp(-\lambda_{Anl,r} \cdot t_f)] \cdot C_r^W & \text{wenn } T_{Anl,r} > 0 \\ K_r^{Se} \cdot C_r^W & \text{wenn } T_{Anl,r} = 0 \end{cases} \quad (7-1)$$

Die Symbole bedeuten:

C_r^{Sch} – Spezifische Aktivität des Radionuklids r in Schwebstoffen (hier: Klärschlamm) in Bq·kg⁻¹ Trockenmasse

K_r^{Se} – Konzentrationsfaktor für Schwebstoffe (Klärschlamm) für das Radionuklid r in l·kg⁻¹

$T_{Anl,r}$ – Anlagerungskonstante des Radionuklids r an Schwebstoffe in s⁻¹,

$\lambda_{Anl,r} = \ln(2)/T_{Anl,r}$ mit $T_{Anl,r}$ = Halbwertszeit für die Anlagerung des Radionuklids r an Schwebstoffe (Klärschlamm)

t_f – hier: Kontaktzeit Abwasser-Klärschlamm

Da über das Zeitverhalten der Anlagerung aus den hier ausgewerteten Daten keine belastbare Aussage möglich ist, können aus den statistischen Kennziffern für die spezifischen Aktivitäten im Klärschlamm bzw. Aktivitätskonzentrationen im Abwasser nur die Konzentrationsfaktoren (Verteilungskoeffizienten fest/gelöst) berechnet werden. In Tabelle 7-30 sind für die Radionuklide, für die eine hinreichende Zahl von Messwerten (vor allem im Abwasser) vorlag, die aus den beiden Quartilwerten und dem Medianwert berechneten Konzentrationsfaktoren / Verteilungskoeffizienten zusammengestellt. Bei den meisten Radionukliden ergeben die drei Kennziffern ähnliche Ergebnisse, d.h. die Datensätze sind diesbezüglich konsistent. Zum Vergleich sind Werte nach (AVV, 2020) mit aufgeführt.

Sieht man in Anbetracht der sehr unterschiedlichen Milieubedingungen in Gewässern (auf die sich die AVV bezieht) und Kläranlagen eine hinreichende Übereinstimmung als gegeben an, wenn die hier ermittelten Werte weniger als eine halbe Größenordnung (Faktor 3) von denen nach (AVV, 2020) abweichen, dann stimmen die Ergebnisse von Sr-90, Pb-212, Pb-214, Bi-214 und U-238 hinreichend mit den Parameterwerten nach AVV überein.

Bei den nuklearmedizinischen Radionukliden Tc-99m, I-131, Lu-177 sind die ermittelten Werte deutlich niedriger als die AVV-Werte. Als Ursache ist zu vermuten, dass die Messwerte im Klärschlamm zwar auf den Probenahmezeitpunkt korrigiert sind, der radioaktive Zerfall im Klärschlamm aber bereits die spezifische Aktivität reduziert, sobald der Klärschlamm vom Abwasser abgetrennt wird. Aus diesem Grund sind die erhaltenen Werte in ihrer Relation zu den AVV-Werten durchaus plausibel.

Da das Modell der Konzentrationsfaktoren / Verteilungskoeffizienten von einer direkten Proportionalität der Aktivitätsverteilung zwischen den beiden Phasen flüssig – fest ausgeht, wurde geprüft, ob sich dieser Zusammenhang auch in den IMIS-Daten erkennen lässt. Dazu wurden die für einzelne Kläranlagen berechneten Mittelwerte von Aktivitätskonzentrationen im Abwasser und spezifischen Aktivitäten im Klärschlamm miteinander in Bezug gesetzt. Auswertbare Datensätze ergaben sich nur für sehr wenige Radionuklide. Die Diagramme dieser Datensätze sind in Abbildung 7-46 zusammengestellt. Nur für Sr-90 und U-238 ergaben sich auswertbare Korrelationen. Die aus den Korrelations-

geraden errechneten Konzentrationsfaktoren / Verteilungskoeffizienten von Sr-90 und U-238 sind Tabelle 7-30 mit aufgeführt. Sie passen vor allem beim Sr-90 sehr gut zu den anderen Werten.

Eine weitere Interpretation der Daten ist möglich, wenn man den spezifischen Klärschlammanfall je Abwasservolumen berücksichtigt. Nach Angaben in Tabelle 3-7 fallen je m³ Abwasser ca. 0,2 kg Klärschlamm an. Der Anteil der über den Klärschlamm (Kürzel „KS“) ausgetragenen Aktivitätsfracht J eines Radionuklids r kann abgeschätzt werden über

$$J_r^{KS} = \frac{C_r^{KS} \cdot m^{KS}}{C_r^{KS} \cdot m^{KS} + C_r^{AW} \cdot m^{AW}} = \frac{1}{1 + 5000 \cdot (C_r^{AW} / C_r^{KS})} = \frac{1}{1 + 5000 \cdot /K_r^{Se}} \quad (7-2)$$

Die Ergebnisse dieser Auswertung sind in Tabelle 7-32 aufgeführt. Sie zeigen, dass die meisten hier ausgewerteten Radionuklide vorrangig über das gereinigte Abwasser abgeleitet werden. Nur das ansonsten meist mobile Uran wird offenbar zu großen Anteilen in den Klärschlamm übertragen. Wieweit hier die Phosphatfällung eine Rolle spielt, kann aus den hier ausgewerteten Daten nicht abgeleitet werden.

Tabelle 7-30: Aus statistischen Kenngrößen berechnete K_r^{Se} -Werte für Konzentrationsverhältnisse Klärschlamm / Abwasser für auswertbare Radionuklide

Radionuklid	Unt. Quartil (25%)	Median	Ob. Quartil (75%)	Schätzwert Regression	nach AVV
	l/kg	l/kg	l/kg	l/kg	l/kg
Be-7	1159	1500	1515		k.A.
K-40	160	162	187		k.A.
Sr-90	430	365	204	213	200
Tc-99m	33	47	58		200
I-131	211	269	290		5000
Lu-177	31	16	13		5000
Ac-228	467	566	49		100
Pb-212	382	265	73		100
Pb-214	195	192	230		100
Bi-214	121	124	113		100
U-238	13868	12491	8221	8.163	18.000

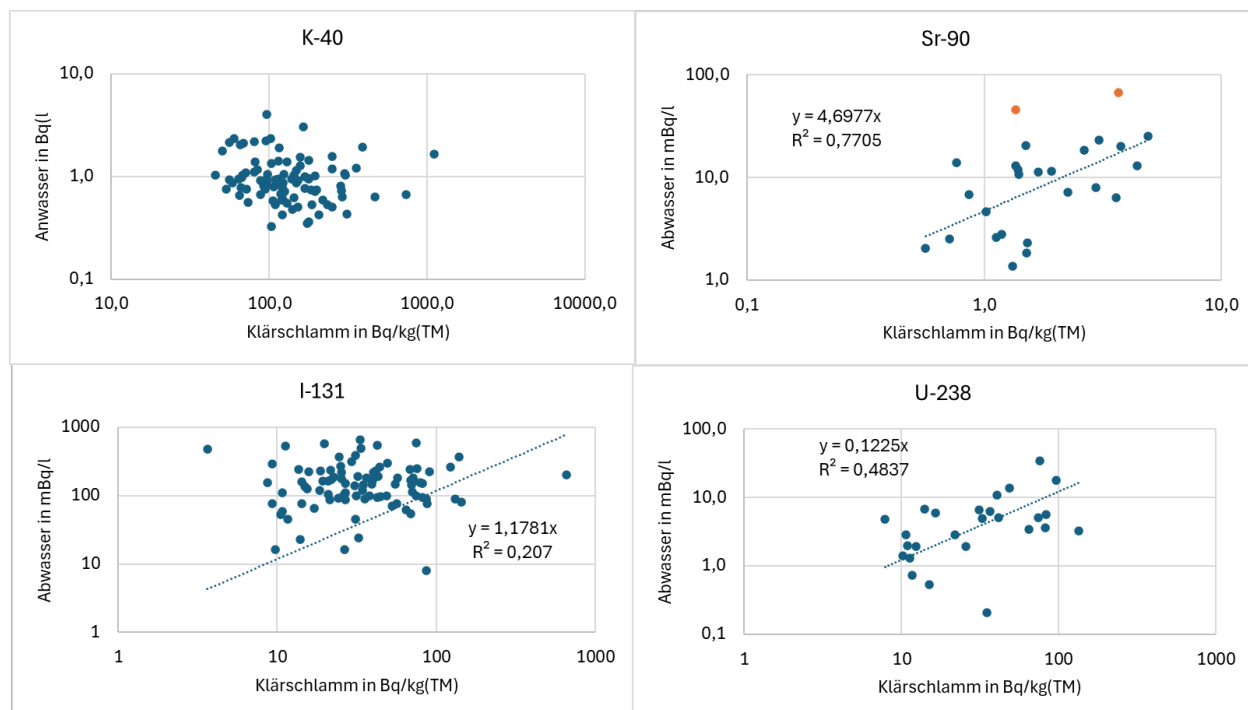
Quelle: Autoren

Tabelle 7-31: Aus Konzentrationsverhältnissen Klärschlamm / Abwasser berechnete Anteile der über Klärschlamm ausgetragenen Aktivität J_r^{Ks} Werte)

Radionuklid	Unterer Quartil	Median	Oberer Quartil	Vergleichswerte nach Literaturangaben (s. Kapitel 6.4)
Be-7	19%	23%	23%	
K-40	3%	3%	4%	
Sr-90	8%	7%	4%	
Tc-99m	1%	1%	1%	
I-131	4%	5%	5%	1%; 10 – 20%
Lu-177	0,6%	0,3%	0,3%	
Ac-228	9%	10%	1%	
Pb-212	7%	5%	1%	
Pb-214	4%	4%	4%	
Bi-214	2%	2%	2%	
U-238	74%	71%	62%	

Quelle: Autoren

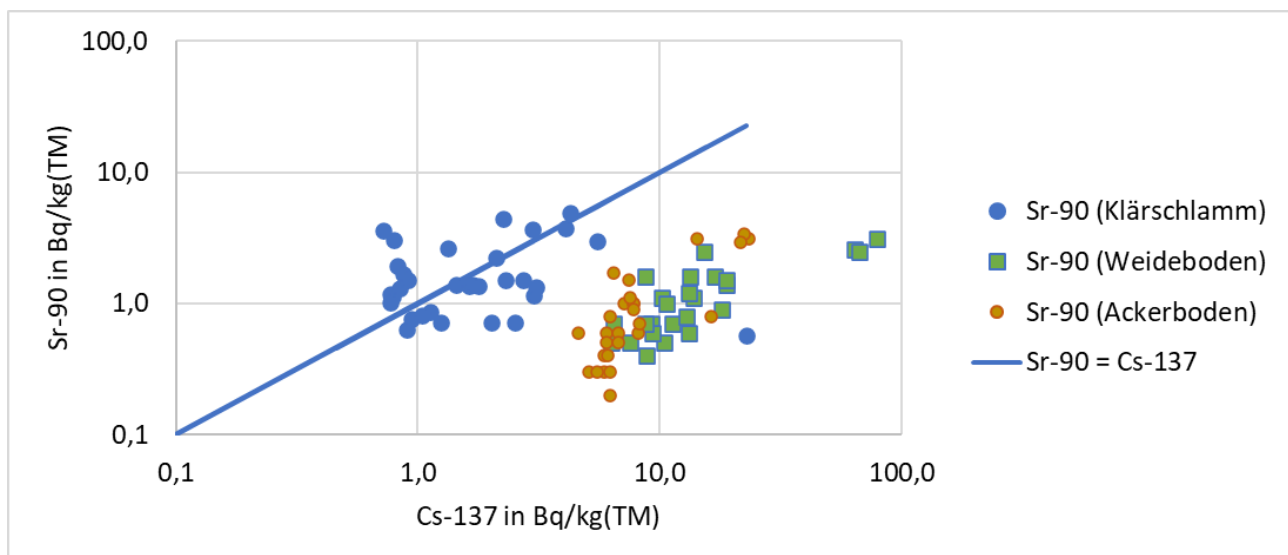
Abbildung 7-46: Zusammenhang zwischen mittleren Werten der Aktivität im Klärschlamm und im Abwasser von einzelnen Kläranlagen.



Quelle: Autoren

Wie bereits im Kapitel 7.7.6 aus der Analyse von statistischen Kennziffern abgeleitet, ist im Klärschlamm das Verhältnis Sr-90 und Cs-137 gegenüber dem in Böden deutlich verändert. Die spezifische Aktivität des im Verhältnis zum Erdalkalielelement Sr-90 besser löslichen Alkalielements Cs-137 ist geringer. Um diesen Sachverhalt weiter aufzuklären, sind in Abbildung 7-47 die Mittelwerte von Sr-90 und Cs-137 im Klärschlamm einzelner Kläranlagen direkt gegenübergestellt. Zum Vergleich sind in das Diagramm auch Mittelwerte von Sr-90, Cs-137 aus Bodenuntersuchungen des IMIS-Programms der Jahre 2017 bis 2019 aus dem Jahresbericht (BMUV, 2020) mit dargestellt. Das Diagramm zeigt die unterschiedlichen Signaturen von Böden und Klärschlamm, zeigt aber auch, dass bei den hier ausgewerteten Datensätzen die Korrelation von Sr-90 und Cs-137 im Klärschlamm nur sehr schwach ausgeprägt ist.

Abbildung 7-47: Korrelation von Sr-90 und Cs-137 in Klärschlamm und Böden



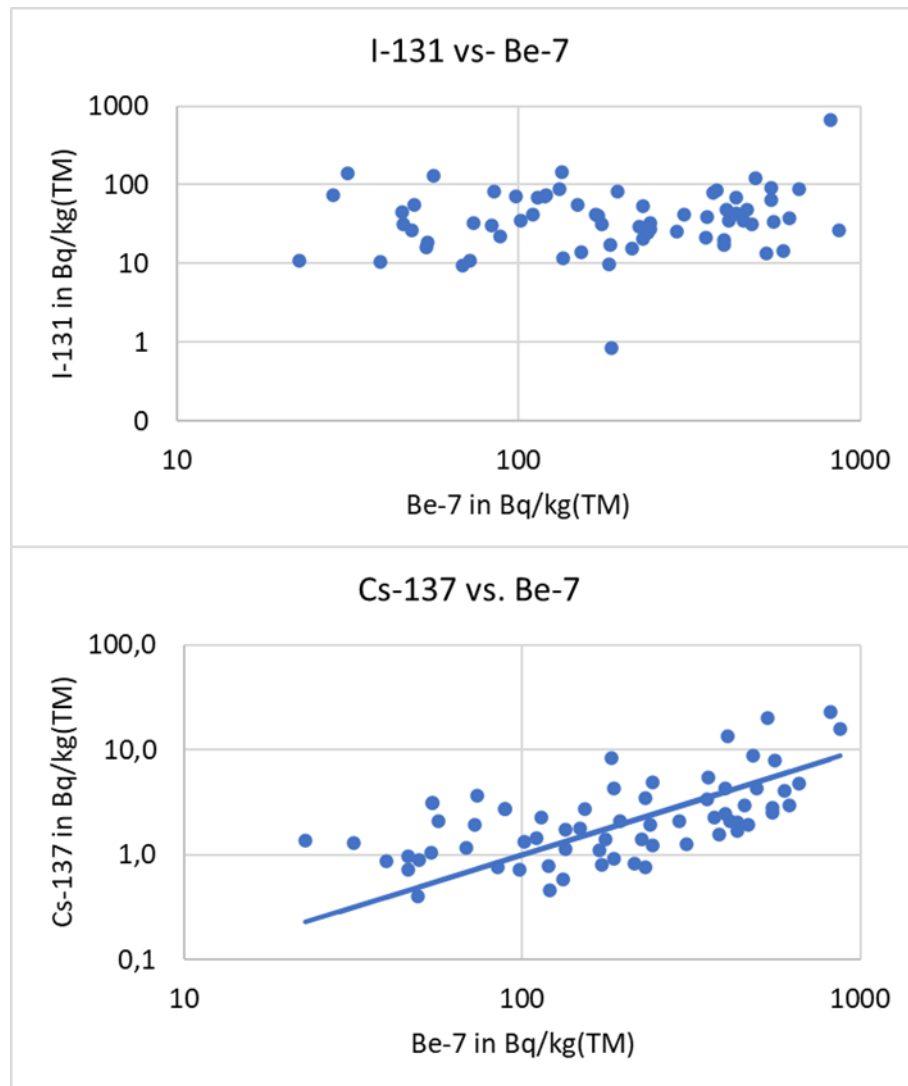
Quelle: Autoren

Wie ebenfalls bereits diskutiert (s. Kapitel 7.9.1) ist Be-7 ein Radionuklid, das als natürlicher Indikator für die Anteile von Grund- oder Oberflächenwasser im Abwasser verwendet werden kann. Da das Grundwasser auf dem hier betrachteten Niveau der Aktivitäten praktisch frei von Sr-90 und Cs-137 ist, sollte Be-7 mit Sr-90 und Cs-137 korrelieren. Für das nuklearmedizinische I-131 wird eine solche Korrelation nicht erwartet.

Die Diagramme der Abbildung 7-48 zeigen die Zusammenhänge von I-131 mit Be-7 und Cs-137 mit Be-7 im Klärschlamm. Datengrundlage sind die Mittelwerte der jeweiligen Radionuklide in den jeweils gleichen Kläranlagen. Wie zu erkennen ist, besteht kein Zusammenhang von I-131 und Be-7, es deutet sich aber (mit beträchtlicher Streuung der Einzelwerte) ein Zusammenhang von Cs-137 und Be-7 an. Die in Abbildung 7-48 eingezeichnete Gerade ist keine berechnete Regression, sondern nur eine Trendlinie, die mit dem Ansatz $Cs-137 = 0,01 \text{ Be-7}$ berechnet wurde.

Da sowohl die Cs-137-Aktivität als auch die von Be-7 zwischen den Regionen „Nord“ und „Süd“ sehr unterschiedlich ausfällt, ist die Ursache der Korrelation aus den hier ausgewerteten Daten nicht eindeutig aufklärbar.

Abbildung 7-48: Zusammenhänge von I-131 mit Be-7 und Cs-137 mit Be-7 im Klärschlamm



Quelle: Autoren

7.9.4 Selten gemessene Radionuklide

Wie bereits in den Kapiteln 7.4 und 7.5 vermerkt, wurden einige Radionuklide nur weniger als 10-mal im Normal-/Routinebetrieb analysiert. Von den Radionukliden, für die maximal 10 Datensätze in dem hier ausgewerteten Zeitfenster 2016 bis 2022 enthalten sind, wurden Messwerte über der Erkennungsgrenze

- im Abwasser nur für Cr-51 (2 Werte), G-Beta (1 Wert), Th-228 (2 Werte),
- im Klärschlamm für Co-57, Ra-224, Te-123m, Th-230 nur jeweils ein Mal, für Cr-51, I-123, Se-75, Sm-153, Zr-95 zwei bis fünf Mal und für Lu-177m und Th-232 zehn bzw. neun Mal

ausgewiesen.

Aus den Datensätzen dieser Radionuklide können folgende Erkenntnisse abgeleitet werden:

- Mit einer Ausnahme bei Th-232 wurden Daten nur dann in die Datenbank aufgenommen, wenn positive Messbefunde (Ergebnisse > Erkennungsgrenze) vorlagen. Eine routinemäßige Auswertung dieser Radionuklide wird nicht vorgenommen und ist auch nicht gefordert.
- Die Messwerte für Cr-51 (Halbwertszeit 27,7 d) im Klärschlamm weisen weder örtlich noch zeitlich einen Bezug zu den Messwerten von Cr-51 im Abwasser auf. Die zwei Messwerte im Klärschlamm stammen zwar aus der gleichen Kläranlage, liegen aber zeitlich mehr als zwei Jahre auseinander. Nur in einem Fall liegt das Ergebnis ca. 3-fach höher als die Nachweisgrenze. Eine Fehlinterpretation des Gammaskpektrums als Folge einer Interferenz durch andere Gammalinien ist bei der Haupt-Gammaenergie von Cr-51 von 319 keV unwahrscheinlich (Kanisch et al., 2019). Da Cr-51 nuklearmedizinisch genutzt werden kann (s. Tabelle 9-8), sind vereinzelte Einträge in das Abwasser nicht auszuschließen.
- Von den fünf Messwerten von Se-75 (Halbwertszeit 120 d) stammen vier aus einer Kläranlage und wurden dort bei fünf Probenahmen im Zeitraum von 02.12.2021 bis 13.10.2022 viermal gemessen. Die Messwerte liegen im Bereich der Nachweisgrenze (Maximal 3-fach höher). Eine Interferenz durch Gammalinien der natürlichen Zerfallsreihen ist nach den Angaben in (Kanisch et al., 2019) unwahrscheinlich. Da Se-75 nuklearmedizinisch genutzt werden kann (s. Tabelle 9-8), sind vereinzelte Einträge in das Abwasser nicht auszuschließen.
- Das nuklearmedizinisch genutzte Sm-153 (Halbwertszeit 46,3 h = 1,9 d) wurde von zwei Messstellen (MST 11010 und 4020) und dort jeweils in der gleichen Kläranlage detektiert. Die Messwerte weisen keinen zeitlichen Bezug auf, übersteigen aber mit einem Mittelwert von 35 Bq/kg(TM) die Nachweisgrenze (im Mittel 5 Bq/kg(TM)) sehr deutlich. Man muss daher davon ausgehen, dass Sm-153 in Abwasser und Klärschlamm auftreten kann.
- Das Radionuklid Zr-95 ist ein Aktivierungsprodukt, für das eine technische oder nuklearmedizinische Nutzung nicht bekannt ist. Die Messwerte von Zr-95 (Halbwertszeit 64 d) liegen im Bereich der Nachweisgrenze. Eine Interferenz bei der 756 keV-Gammalinie durch Ac-228 und der 724 keV-Gammalinie durch Bi-212 ist möglich.
- Die Einträge für Th-232 wurden mit einer Ausnahme (Verfahren A1) als Ergebnisse von gammaspektrometischen Analysen (G1) dokumentiert. Da Th-232 nur sehr schlecht detektierbare Gammalinien aufweist, ist davon auszugehen, dass diese Einträge aus der Auswertung von Gammalinien der Zerfallsprodukte von Th-232 stammen. Es ist aus den Daten nicht nachzuvollziehen, ob Ac-228 (Ra-228) oder Pb-212, Bi-212, Tl-208 (Th-228) als Bezug verwendet wurden. Der Mittelwert dieser 9 Datensätze von 19 Bq/kg(TM) liegt aber näher am Medianwert von Ac-228 (24,9 Bq/kg(TM)) als am Median von Pb-212, Bi-212, Tl-208 nach Tabelle 7-25 von (gerundet) 7 Bq/kg(TM) – 10 Bq/kg(TM). Es ist daher zu vermuten, dass die als „Th-232“ deklarierten Einträge die Ra-228-Aktivität und nicht die von Th-232 widerspiegeln.
- Der eine alphaspektrometrische Messwert von Th-232 von (gerundet) 7 Bq/kg(TM) passt gut zu den o.g. Medianwerten von Pb-212, Bi-212, Tl-208 nach Tabelle 7-25.
- Für das alphaspektrometisch analysierte Th-232 liegen auch Messergebnisse für Th-230, Th-228 und U-238, U-235, U-234 von einem gleichzeitig entnommenen Klärschlamm vor. Diese Ergebnisse sind in Tabelle 7-32 zusammengestellt. In Relation zu den statistischen Kennziffern in den Tabelle 7-23 bzw. Tabelle 7-25 ordnet sich die spezifische Aktivität der untersuchten

Klärschlammprobe in den Bereich zwischen oberem Quartil und 90%-Quantil ein. Aus den Daten in Tabelle 7-32 kann man ablesen:

- Das Aktivitätsverhältnis U-238/Th-230 ist gegen das in natürlichen Gesteinen und Mineralien näherungsweise vorhandene Aktivitätsgleichgewicht signifikant erhöht. Dieser Befund weist darauf hin, dass das Uran im Klärschlamm zu großen Anteilen aus der gelösten Phase stammt und durch Fällungsprozesse in den Klärschlamm kam.
- Das Aktivitätsverhältnis U-235/U-238 entspricht exakt dem natürlichen Verhältnis. Im Unterschied dazu ist das Aktivitätsverhältnis U-234/U-238 deutlich gegen das Aktivitätsgleichgewicht erhöht. Da derartige Ungleichgewichte für gelöstes Uran insbesondere im Grundwasser typisch sind, verweist dieser Sachverhalt ebenfalls auf eine Herkunft des Urans aus einer gelösten Form.
- Die Thoriumisotope in der Th-232-Zerfallsreihe liegen nicht im Aktivitätsgleichgewicht vor. Die Aktivität von Th-228 dominiert deutlich über die des Mutternuklids der Zerfallsreihe Th-232. Ob auch hier höhere Aktivitätsverhältnisse Th-228/Th-232 im Abwasser als Ursache in Frage kommen, kann mit den derzeit verfügbaren Daten nicht beantwortet werden.

Tabelle 7-32: **Ergebnisse einer alphaspektrometrischen Analyse einer Klärschlammprobe vom 16.08.2016**

Radionuklid	Bq/kg (TM)	Radionuklid	Bq/kg (TM)
Th-232	6,97	U-238	77,7
Th-230	9,01	U-235	3,78
Th-228	16,8	U-234	134

Quelle: Autoren

8 Auswertung der Ergebnisse bezüglich medizinischer Radionuklide und Dosisberechnung

8.1 Applizierte Aktivitäten

Die Applikation der Radionuklide erfolgt zum einem im Bereich der nuklearmedizinischen Diagnostik, zum anderem in der nuklearmedizinischen Therapie.

In der nuklearmedizinischen Diagnostik werden möglichst kontrastreiche und gut aufgelöste Bilder angestrebt. Die eingesetzten radiologisch relevanten Aktivitäten je Patienten sind in der Diagnostik wesentlich geringer als in der Therapie, da in der Untersuchungsphase keine deterministische biologische Strahlenwirkung angestrebt wird. Die applizierte Aktivität liegt meist zwischen 50 MBq und 740 MBq (Fischer et al., 2017). Allerdings ist die Anzahl der diagnostischen Applikationen wesentlich höher als die in der Therapie.

In der Szintigrafie werden als wichtigste Radionuklide

- Tc-99m (HWZ 6 h): insb. Schilddrüsenuntersuchungen - das am meisten eingesetzte Isotop,
- I-131 (HWZ 8 d): Schilddrüsenuntersuchungen - zum Radioiodtest,
- I-123 (HWZ 13,2 h): bei besonderen Fragestellungen im Rahmen von Schilddrüsenuntersuchungen,
- In-111 (HWZ 2,8 d): zur Tumordiagnostik
- und zur Diagnostik koronarer Herzerkrankungen auch Tl-201 (HWZ 73 h) verwendet.

In der nuklearmedizinischen Therapie kommen zum Einsatz

- I-131 (Schilddrüse)
- I-125
- Sm-153 (palliativ)
- Re-186 (Radiosynoviorthese)
- Lu-177 (Tumorthherapie, Prostata)
- "reine" β -Strahler: Y-90, Sr-89, Er-169

Weitere Radionuklide, insbesondere solche der Lanthanoidengruppe, werden derzeit klinisch erprobt und könnten längerfristig auch zu Einträgen in das Abwasser führen.

Eine Übersicht über die insgesamt in Deutschland applizierten Aktivitäten einzelner Radionuklide ist bisher nicht verfügbar. Für Radioiod wurden entsprechende Abschätzungen zuerst von (Eschner et al., 2004) vorgelegt. Danach wurden in Deutschland jährlich ca. 48.000 Radioiodtherapien durchgeführt, davon 5.000 bei Schilddrüsenkarzinomen und 43.000 bei benignen

Schilddrüsenerkrankungen. Außerdem werden 5.000 therapeutischen Iod-Anwendungen bei den Iod-Schilddrüsen-Karzinomen (CaT) und 8.000 Iod-Ganzkörperdiagnostiken (CaD) durchgeführt. Die mit den Daten aus (Eschner et al., 2004) abgeschätzte applizierte Aktivität von I-131 ist in Tabelle 8-1 zusammengestellt.

Tabelle 8-1: Applizierte I-131-Aktivität in Deutschland in 2002

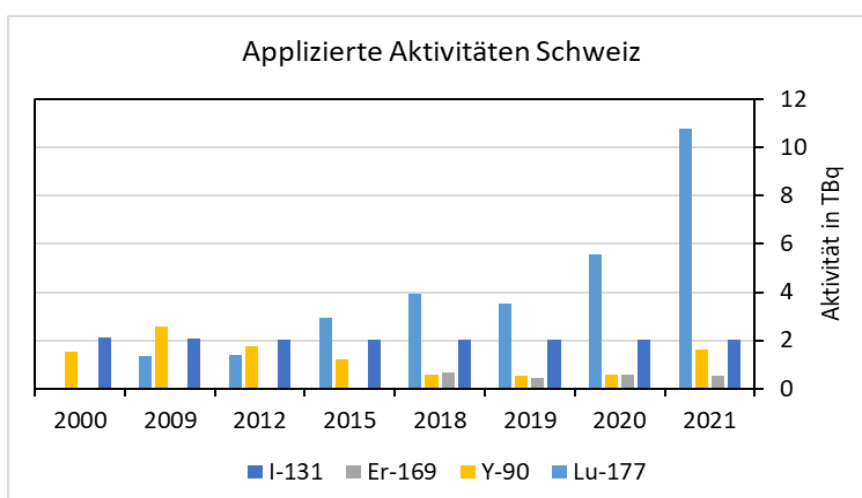
	Einheit	Benigne Tumoren	CaT*	CaD**	Summe
Anzahl		43.000	5.000	8.000	
Mittelwert	MBq	756,7	5029,8	451,4	
Median	MBq	607	3800	400	
Gesamt bei 82 Mio. Einwohnern	TBq	26	19	3,2	48
	kBq je Einwohner	318	232	39	589

* therapeutischen Iod-Anwendungen bei den Iod-Schilddrüsen-Karzinomen; ** Iod-Ganzkörperdiagnostiken

Quelle: (Eschner et al., 2004)

In den Jahresberichten zu „Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz“ (BAG, 2020, 2021, 2022) werden jährlich die nuklearmedizinisch applizierten Radionuklidaktivitäten berichtet. Aus den Daten ausgewählter Jahre im Zeitraum 2000 bis 2021 wurden die in Abbildung 8-1 und Abbildung 8-2 dargestellten Zeitreihen abgeleitet.

Abbildung 8-1: Applizierte Aktivität nuklearmedizinischer Radionuklide in der Schweiz. Radionuklide mit mehr als 0,5 TBq Gesamtaktivität

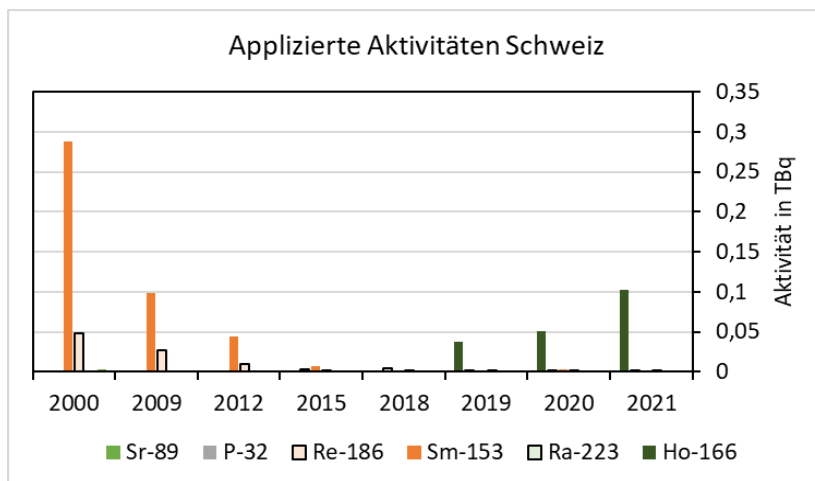


Quelle: Autoren ausgehend aus (BAG, 2020, 2021, 2022)

Von den bezüglich der Aktivität dominierenden Radionukliden zeigt sich bei I-131 ein relativ stabiler Trend, der bei ca. 2 TBq jährlich applizierter Aktivität liegt. Bezogen auf die Einwohnerzahl der Schweiz von 8,7 Mio entspricht das ca. 230 kBq je Einwohner und Jahr.

Abbildung 8-1 zeigt auch, dass in den vergangenen Jahren vor allem die Behandlung von Prostatakarzinomen mit Lu-177 stark zugenommen hat. Dieser Trend wurde auch bei der Auswertung von Strahlenalarmen in Müllverbrennungsanlagen in Deutschland festgestellt (Gellermann et al., 2019). Stark steigende Trends zeigen sich aber auch bei Ho-166. Ein abnehmender Trend zeigt sich bei Y-90 und besonders ausgeprägt bei Sm-153.

Abbildung 8-2: Applizierte Aktivität nuklearmedizinischer Radionuklide in der Schweiz. Radionuklide mit weniger als 0,5 TBq applizierter Gesamtaktivität.



Quelle: Datenanalyse der Autoren basierend auf den Jahresberichten BAG (BAG, 2020, 2021, 2022) Ausgeschiedene Aktivitäten

In der Radioiodtherapie werden zwar die Ausscheidungen der Patienten während der stationären Aufnahme in Abklingbehältern gesammelt und durch Lagern erheblich in ihrer Aktivität reduziert, die Patienten dürfen aber bei einer Radioiod-Behandlung ab Unterschreiten einer Körperaktivität von 250 MBq entlassen werden. Sie scheiden vom Entlassungszeitpunkt an direkt in die Kanalisation aus.

Bei den meisten Anwendungen wird ein nicht unerheblicher Anteil der applizierten Aktivität mit Urin und Stuhl ausgeschieden und gelangt damit in die Kanalisation. Vor allem Tc-99m und I-131 werden regelmäßig in Kläranlagen nachgewiesen (siehe Kapitel 5 und 6).

Eine Abschätzung der ausgeschiedenen Aktivitäten von I-131 in Deutschland wurde in der Arbeit (Eschner et al., 2004) vorgenommen. Als Mittelwert werden je Einwohner und Jahr 40 kBq (Median 30 kBq, 25.-Perzentil 18 kBq, 75.-Perzentil 50 kBq) angegeben. Dieser Abschätzung liegt die Annahme zugrunde, dass sämtliche diagnostischen Prozeduren stationär durchgeführt werden. Bei ausschließlich ambulanter Durchführung verdoppeln sich lt. (BAG, 2020, 2021, 2022) die Werte. Bezogen auf die in Tabelle 8-1 genannte applizierte Aktivität von 589 kBq je Einwohner und Jahr entsprechen die 40 kBq je Einwohner und Jahr einem Anteil von 6,8%.

Messungen des Zulaufs ausgewählter Kläranlagen in (OSPAR, 2017) ergaben einwohnerbezogene Frachten zwischen 13,6 kBq und 36,2 kBq je Einwohner und Jahr, mit einem gewichteten Mittelwert von 16,7 kBq je Einwohner und Jahr. Das wären bezogen auf die applizierte Aktivität noch 2,7%.

In Kenntnis, dass andere Radionuklide in ähnlichen Aktivitäten wie I-131, teilweise wie bspw. bei Lu-177 in noch höheren Aktivitäten, appliziert werden, sind vor allem bei Tc-99m und Lu-177 weit

verbreitete Einträge in das Abwasser zu erwarten. Diese Einträge wurden auch bisher in den IMIS-Messungen gefunden und dokumentiert. Eine Abschätzung möglicher Einträge mit einer weiter gefassten Palette nuklearmedizinisch applizierter Radionuklide und die daraus abgeschätzten Einleitungen in Kläranlagen enthält Tabelle 8-2. Grundlage dieser Tabelle sind Angaben in (Jeffries, 2023) über die Einleitungen nuklearmedizinischer Radionuklide ins Abwasser im Bundesstaat Südaustralien und deren Umrechnung auf pro-Kopf Werte von Orten mit einer Einwohnerzahl von 1,7 Mio. Grundlage dieser Tabelle sind Angaben in (Jeffries, 2023) über die Einleitungen nuklearmedizinischer Radionuklide ins Abwasser im Bundesstaat Südaustralien und deren Umrechnung auf pro-Kopf Werte mit einer Einwohnerzahl von 1,7 Mio. Auch wenn die Praktiken der Anwendung nuklearmedizinischer Radionuklide in Südaustralien und Deutschland sicherlich Unterschiede im Detail aufweisen, zeigt die gute Übereinstimmung des Ableitwertes von I-131 von 39 kBq/Einwohner/a in Südaustralien mit dem in (Eschner et al., 2004) ermittelten Wert von 40 kBq/Einwohner/a, dass diese Werte für Deutschland eine erste grobe Orientierung vor allem für bisher im Abwasser bzw. Klärschlamm nicht untersuchte Radionuklide liefern können. Es wird auch deutlich, dass die Radionuklide Tc-99m und Lu-177 die dominanten Aktivitätseinträge aufweisen.

Für die Auslegung der Messprogramme muss aber damit gerechnet werden, dass die anderen in Tabelle 8-2 genannten Radionuklide zumindest episodisch und im Abwasser einzelner Kläranlagen vorkommen können. Nach den Angaben in Tabelle 8-2 ist bei In-111 und Ga-68 mit Eintragsfrachten zu rechnen, die ggf. zu beachten sind. In-111 wird bereits bei positivem Nachweis an IMIS gemeldet, für Ga-68 gibt es solche Meldungen bisher nicht.

Trotz der relativ hohen Einleitung von 75 kBq/a je Einwohner kann F-18 außer Acht gelassen werden, da dieses Radionuklid mit einer Halbwertszeit von 110 Minuten zu kurzlebig ist, um eine relevante Kontamination hervorzurufen.

Tabelle 8-2: Einleitungen von nuklearmedizinischen Radionukliden in Südaustralien

Radionuklid	Chemisch/physikalische Form (Applikation)	Einleitung ins Abwasser kBq/a je Einwohner
C-14	Urea (capsule)	Vernachlässigbar
F-18	FDG, Na, FET, GE-180, Florbetaben, F-Dopa (all liquid)	75
P-32	Oncosil (liquid)	Vernachlässigbar
Cr-51	Chromate (liquid)	Vernachlässigbar
Cu-64	[Cu-64]-Sartate (liquid)	0,8
Ga-67	Citrate (liquid)	0,6
Ge-68	Chloride (solid)	Vernachlässigbar
Ga-68	Dotatate, PSMA (liquid)	11
Se-75	SeCat (capsule)	Vernachlässigbar
Zr-89	labelled antibodies (liquid)	Vernachlässigbar
Y-90	SIR spheres, citrate colloid (liquid)	0,11
Mo-99	sodium molybdite (solid)	Vernachlässigbar
Tc-99m	(liquid: various cold kits, aerosol: technegas)	151
In-111	[In-111]- FPI-1547	1,3
I-123	MIBG (liquid)	0,3
I-124	(capsule and liquid)	0,11
I-131	Na-131I (capsule), 131I-IPA (liquid), 131I-CLR (liquid)	39
Sm-153	Samarium Lexidronam Pentasodium	0,06
Lu-177	PSMA / DOTA (liquid)	51
Ra-223	Chloride (liquid)	0,06
Ac-225	labelled antibodies (liquid)	0,02

Quelle: Daten: C. Jeffries 2023 (persönliche Mitteilung) / verarbeitet von Autoren

8.2 Berechnung von Dosiswerten: Modellansatz

8.2.1 Modellkonzept

Radionuklide im Abwasser und Klärschlamm können auf unterschiedlichen Wegen zu Expositionen führen. Als exponierte Personen kommen grundsätzlich in Frage:

- Personen des Betriebspersonals der Kläranlagen,
- Transportfahrer, die Klärschlamm befördern,
- Personen des Betriebspersonals von Verbrennungsanlagen, in denen Klärschlamm verbrannt wird,
- Personen, die anderweitig bei der Entsorgung von Klärschlamm mitwirken (z.B. durch Einbau in Böden),
- Personen der Bevölkerung, die über die Expositionspfade nach Anlage 11 StrlSchV für den Wasserpfad und die in den Gewässern vorhandenen Radionuklide aus den Einleitungen der Kläranlagen exponiert werden können.

In dieser Arbeit werden nur Expositionen des Betriebspersonals der Kläranlagen betrachtet, da davon auszugehen ist, dass die für diese Personen ermittelten Dosiswerte abdeckend für die anderen Personen sind, die Kontakt mit Klärschlamm haben können. Die Exposition von Personen der Bevölkerung ist nur dann realistisch abzuschätzen, wenn die Kläranlagen eines Einzugsgebietes in der Gesamtheit betrachtet werden. Diese Aufgabe übersteigt den Rahmen dieser Arbeit.

Die Prozesse in Kläranlagen benötigen im Wesentlichen nur Steuer- und Regeleingriffe durch das Betriebspersonal. Das Abwasser ist in der Regel für die Strahlenexposition des Betriebspersonals von geringer Bedeutung im Vergleich mit Klärschlamm. Daher wird das Abwasser für das Betriebspersonal als Strahlenquelle im Weiteren außer Acht gelassen.

Erst bei der Entwässerung von Klärschlamm und dem Verladen von Klärschlamm zum Abtransport kommt es zu Situationen, bei denen Personal ggf. einer Exposition ausgesetzt ist.

Die effektive Dosis einer Modellperson ergibt sich als Summe aller Teildosen:

$$E = E_A + E_{Inh} + E_{Ing} \quad (8-1)$$

E – effektive Dosis

E_A – Teildosis durch äußere Strahlenexposition (Direktstrahlung)

E_{Inh} – Teildosis durch Inhalation

E_{Ing} – Teildosis durch orale Aufnahme von Partikeln (Ingestion) – hier auszuschließen

Die Teildosis durch Direktstrahlung errechnet sich nach:

$$E_A = \dot{\Delta H}_{ex} \cdot t_{exp} \cdot f_{Kon} \quad (8-2)$$

mit

$\dot{\Delta H}_{ex}$ = Gamma-Ortsdosisleistung über Hintergrund

t_{exp} = Expositionszeit [h]

f_{Kon} = Umrechnungsfaktor in effektive Dosis

Die Strahlenexposition durch Inhalation von radioaktiv belastetem Staub errechnet sich nach:

$$E_{Inh} = \dot{V} \cdot t_{exp} \cdot \sum_i g_{inh,i} \cdot c_{Luft,i} \quad (8-3)$$

mit

$\dot{V}$ = Atemrate [m³/h]

t_{exp} = Expositionszeit [h]

$c_{Luft,i}$ = Aktivitätskonzentration des an Staub gebundenen Nuklids i in der Luft [Bq/m³]

$g_{inh,i}$ = Inhalationsdosiskoeffizient für Staubinhalation des Nuklids i [Sv/Bq]

Die Aktivitätskonzentration des Nuklids i in der Luft c_{Luft} kann, soweit kein direkter Messwert vorliegt, errechnet werden aus:

$$c_{Luft,i} = \frac{c_{Staub} \cdot C_i \cdot AF_{0,02}}{1000} \quad (8-4)$$

mit

c_{Staub} = Staubkonzentration [mg/m³]

C_i = spezifische Aktivität des Nuklids i im Abfall [Bq/g]

$AF_{0,02}$ = Aufkonzentrationsfaktor, der das mittlere Verhältnis der spezifischen Aktivität der Staubfraktion mit einem Partikeldurchmesser < 0,02 mm und der Gesamtprobe beschreibt [-]

8.2.2 Modellannahmen

Für eine einfache Abschätzung von Dosiswerten im Normalbetrieb wird folgendes Modell zugrunde gelegt:

- Modellperson ist ein Mitarbeiter einer Kläranlage, dessen Arbeitsschwerpunkt in den Anlagen abläuft, in denen Klärschlamm anfällt, entwässert wird und zur Entsorgung verladen wird.
- Der Klärschlamm besitzt nuklidbezogene spezifische Aktivitäten in Höhe der aus den Messdaten im Normal-Routinebetrieb errechneten Mittelwerte oder, soweit solche Messwerte nicht vorliegen, in Höhe von 50% der mittleren Nachweisgrenze (als Schätzer der Erkennungsgrenze). Die Werte sind zeitlich konstant.
- Die Modellperson ist 1000 Stunden im Kalenderjahr an Arbeitsplätzen tätig, bei denen sie sich unmittelbar in der Nähe zum Klärschlamm aufhält.

- Vereinfachend wird für die Abschätzung der äußeren Exposition das Modell der Bodenstrahlung verwendet, d.h. es wird konservativ überschätzend angenommen, dass die Modellperson sich bei den Arbeiten auf einer Bodenfläche mit (frischem) Klärschlamm aufhält.
- Für die Abschätzung der Inhalationsdosis wird eine (aus dem Klärschlamm stammende) inhalierbare Staubkonzentration von $0,1 \text{ mg/m}^3$ angenommen. Dieser Wert wird geringer als der häufig genutzte Standardwert von 1 mg/m^3 angesetzt, da von überwiegend nassem oder zumindest feuchten Klärschlamm ausgegangen wird.
- Die spezifische Aktivität des Staubes ist um den Aufkonzentrationsfaktor $AF_{0,02} = 10$ höher als die des gesamten Klärschlammes (SSK, 2024).

Zur Bewertung von Ereignissen mit einer signifikanten Kontamination z.B. durch Fallout im Einzugsgebiet der Kläranlage, werden die Annahmen für den Normalbetrieb wie folgt verändert:

- Der Klärschlamm besitzt zum Ereigniszeitpunkt nuklidbezogene spezifische Aktivitäten in Höhe des doppelten Mittelwertes der mittleren Nachweisgrenze für den Störfall-/Intensivbetrieb oder, soweit diese Werte nicht berechenbar waren, in Höhe des doppelten Mittelwertes der mittleren Nachweisgrenze für den Normal-/Routinebetrieb.
- Die spezifische Aktivität nimmt zeitlich mit der Halbwertszeit der Radionuklide ab.
- Die Modellperson ist 10 Stunden je Tag an 10 aufeinander folgenden Tagen an Arbeitsplätzen tätig, bei denen sie sich unmittelbar in der Nähe zum Klärschlamm aufhält.

Für das Strahlungsfeld über einer unendlich ausgedehnten Bodenfläche mit homogener radioaktiver Kontamination sind in ((Brenk, 2012), (EPA, 2019)) Dosiskoeffizienten für die äußere Exposition (standardisierter) Referenzpersonen verfügbar. Dieser Dosiskoeffizienten für alle 88 im Klärschlamm bestimmten Radionuklide (Cm-243, Cm-244 und Pu-239, Pu-240 getrennt gezählt) sind in Anhang III zusammengestellt. Sie beziehen sich unmittelbar auf die effektive Dosis einer erwachsenen Referenzperson bzw. bei Inhalation auf Arbeiter.

Die zur Ermittlung der Inhalationsdosis anzusetzende Atemrate der Modellperson beträgt $1,2 \text{ m}^3/\text{h}$.

Zur Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalls wird die mittlere spezifische Aktivität im Betrachtungszeitraum von 10 Tagen durch die nach 5 Tagen erreichte spezifische Aktivität abgeschätzt.

8.2.3 Modellergebnisse

Die Modellparameter und die damit errechneten Modellergebnisse sind in Anhang III dokumentiert.

Für Expositionen durch medizinisch genutzten Radionuklide ergeben sich im Normalbetrieb die in Tabelle 8-3 zusammengestellten Dosiswerte. Die Äußere Exposition dominiert demnach deutlich und bestimmt das Ergebnis. Die erhaltenen Werte liegen im Bereich von $1 \text{ } \mu\text{Sv}$ im Kalenderjahr und damit unter der Geringfügigkeitsschwelle von $10 \text{ } \mu\text{Sv/a}$. Da hier allerdings nur Mittelwerte betrachtet wurden, können in einzelnen Anlagen davon abweichende Dosen vorkommen. Die sehr konservativen Modellansätze lassen aber erwarten, dass eine realistische Modellierung stets zu geringeren Dosen als $10 \text{ } \mu\text{Sv/a}$ führen wird.

Die Ergebnisse passen auch gut zu den im Kapitel 6.3.1 aufgeführten Ergebnissen der wissenschaftlichen Literatur.

Tabelle 8-3: Dosiswerte für nuklearmedizinische Radionuklide im Normalbetrieb

Radionuklid	Äußere Exposition	Inhalation
	$\mu\text{Sv/a}$	$\mu\text{Sv/a}$
Tc-99m	9,27	2,02E-05
In-111	0,17	1,11E-06
I-131	2,99	6,40E-04
Lu-177	0,88	2,57E-04

Quelle: Autoren

Für den Ereignisfall errechnete Dosiswerte für die nuklearmedizinischen Radionuklide sind in Tabelle 8-4 zusammengestellt. Durch die kurze Expositionszeit, den Bezug auf die Nachweisgrenze der Messverfahren und den berücksichtigten radioaktiven Zerfall sind die Dosen um Größenordnungen kleiner als im Normalbetrieb. Bei der Interpretation der Werte ist zu beachten, dass hier keine „echten“ Dosiswerte in einem radiologischen Notfall berechnet wurden. Ziel dieser Berechnung war es vielmehr zu prüfen, welche Dosen bei den etablierten Nachweisgrenzen im Messregime Störfall-/Intensivbetrieb registriert werden können. Das Ergebnis zeigt, dass die mittleren Nachweisgrenzen der Messverfahren bei weitem ausreichen, um im Ereignisfall bei Kontaminationen durch nuklearmedizinische Radionuklide den Strahlenschutz zu gewährleisten.

Tabelle 8-4: Dosiswerte für nuklearmedizinische Radionuklide im Ereignisfall

Radionuklid	Äußere Exposition	Inhalation
	μSv	μSv
Tc-99m	1,90E-05	3,45E-08
In-111	7,70E-06	4,27E-08
I-131	6,55E-05	1,17E-05
Lu-177	1,43E-05	3,47E-06

Quelle: Autoren

Analog zu medizinischen Radionukliden sind Modellergebnisse für die Radionuklide aus dem Fallout in den Tabelle 8-5 und Tabelle 8-6 zusammengestellt. Auch hier sind die Modelldosiswerte sehr gering und die bestehenden Verfahren zur Überwachung des Klärschlammes ausreichend empfindlich.

Tabelle 8-5: Dosiswerte für Radionuklide aus dem Fallout im Normalbetrieb

Radionuklid	Äußere Exposition	Inhalation
	$\mu\text{Sv/a}$	$\mu\text{Sv/a}$
Cs-137	0,31	2,4E-5
Sr-90	0	1,7E-4
Pu-238	0	8,3E-3
Pu-239/40	0	5,0E-3

Quelle: Autoren

Tabelle 8-6: Dosiswerte für Radionuklide aus dem Fallout im Ereignisfall

Radionuklid	Äußere Exposition	Inhalation
	μSv	μSv
Cs-137	0,14	1,1E-4
Sr-90	0	1,9E-4
Pu-238	0	0,11
Pu-239/40	0	0,10

Quelle: Autoren

9 Ausblick auf zukünftige Labor- und Modellierungsarbeiten

9.1 Ausblick und Empfehlungen zu Laborarbeiten und Qualitätssicherung

Wie in Kapitel 7.1 bereits festgestellt, beruht die Überwachung der Umweltradioaktivität auf den Vorgaben der AVV-IMIS (AVV-IMIS, 2006). Die Messungen in Abwasser und Klärschlamm sind gemäß AVV-IMIS-Länderaufgabe und werden von Messstellen der Bundesländer realisiert. Die AVV-IMIS schreibt vor, dass zum einen Messungen im Normal-/Routinebetrieb ausgeführt werden und zum anderen Messmöglichkeiten vorgehalten werden, die in einen möglichen radiologischen Notfall Messungen in einem Störfall-/Intensivbetrieb ermöglichen. Für beide Aufgaben gibt es Messanleitungen und Vorgaben zu Umfang der Probenahmen und Messungen. Das BfS als zuständige Leitstelle gem. StrlSchG, § 163 (StrlSchG, 2022) sammelt die Daten in der IMIS-Datenbank.

Die im Normal-/Routinebetrieb zu berichtenden Radionuklide beschränken sich auf

- 6 natürlich vorkommende Radionuklide: Be-7, K-40, U-234, U-235 und U-238 sowie H-3 mit einem ggf. künstlichem Eintrag
- 5 Spaltprodukte: Sr-90, Ru-103, I-131, Cs-137 und Ce-144

- 5 Parameter zu Aktivierungsprodukten: Co-60, Cs-134, Pu-238, Pu-239/240 und Am-241

Von diesen Radionukliden sind die meisten (K-40, Co-60, Ru-103, I-131, Cs-134, Cs-137, Ce-144) gut mit gammaspektrometrischen Verfahren messbar und werden auch so bestimmt. U-235, U-238 und Am-241 sind gammaspektrometrisch nur eingeschränkt messbar. Sie wurden in der Praxis bisher sowohl gammaspektrometrisch als auch alphaspektrometrisch bestimmt.

H-3 und Sr-90 sind nur mittels Betamessung, U-234, U-235 und Pu-239/240 nur mittels Alphaspektrometrie (oder alternativ Massenspektrometrie) bestimmbar.

9.1.1 Ausblick und Empfehlungen zu Laborarbeiten

Hinsichtlich der Messverfahren und der damit erreichbaren Nachweis- bzw. Erkennungsgrenzen sind die Verfahren hinreichend empfindlich, um Situationen mit radiologisch relevanten Kontaminationen zu erkennen und zu bewerten. Um unterhalb des radiologischen Relevanzniveaus geringfügige Kontaminationen festzustellen und ggf. Trends beobachten zu können, wären für ausgewählte Parameter im Rahmen des Normal-/Routinemessprogramms tiefere Erkennungs-/Nachweisgrenzen anzustreben. Das betrifft vor allem Radionuklide, die in Forschung und Medizin verwendet werden, sowie natürliche Radionuklide. Die zahlreichen Spaltprodukte, die nur bei signifikanten Ereignissen von Bedeutung sind, benötigen keine Nachweise als Indikatoren, da sie über die Überwachung der atmosphärischen Radioaktivität wesentlich genauer bestimmt werden können. Für diese Radionuklide sind Verfahren vor allem für den Störfall-/Intensivbetrieb erforderlich.

Wie im Kapitel 7.4 bereits festgestellt, sind zahlreiche Radionuklide aus nuklearmedizinischer Nutzung mit hinreichend langen Halbwertszeiten bisher nicht in der AVV-IMIS (AVV-IMIS, 2006) aufgeführt und wurden bisher auch nicht im Rahmen von IMIS durch die Messstellen bestimmt und gemeldet. Für einen Großteil dieser Radionuklide ist ein allgemeiner Eintrag in das Abwasser bei ordnungsgemäßer Handhabung realistischweise nicht zu erwarten. Das trifft insbesondere auf Radionuklide zu, die ausschließlich im Labor-/Klinikbereich verwendet und nicht Patienten appliziert werden. Obwohl z.B. die Applikation von Ho-166 in Form von Mikrokügelchen erfolgt, die in der Leber zurückbleiben, ist derzeit nicht hinreichend geklärt, ob es nicht doch zu Lösungsprozessen und folglich zu Ausscheidungen kommen kann. In Anbetracht eines zunehmenden Einsatzes von Ho-166 ist für dieses Radionuklid ein Klärungsbedarf festzustellen. Auch für andere neu in die klinische Praxis kommende Radionuklide sollte frühzeitig eine entsprechende Prüfung vorgenommen werden.

Messergebnisse von Tritium (H-3) liegen nur aus den Bundesländern Baden-Württemberg, Bayern, Hamburg und Rheinland-Pfalz vor. Von diesen Messungen wurden vor allem dann echte Messwerte erhalten, wenn die Nachweisgrenze unter 2 Bq/l lag. Die geforderte Nachweisgrenze von 10 Bq/l wird zwar in der Praxis deutlich unterschritten, die realisierten Erkennungsgrenzen von ca. 4 Bq/l sind jedoch zu hoch, um geringe Kontaminationen über den allgemeinen Hintergrund von ca. 1 Bq/l bis maximal 1,5 Bq/l zu erkennen. Die in den Kläranlagen gemessenen H-3-Konzentrationen über 2 Bq/l bis maximal 4,4 Bq/l weisen auf technogenes Tritium hin. Trotz der radiologisch unbedenklichen Werte stellt sich die Frage nach der Herkunft dieses Tritiums. Es ist seit langen bekannt, dass Sickerwässer von Deponien deutlich erhöhte Tritiumkonzentrationen aufweisen (R. Gellermann, 2019). Als Ursache dieser Befunde kommen entsorgte Konsumgüter mit tritiumhaltigen

Leuchtfarben in Frage. Es wird allerdings auch darüber spekuliert, dass entsorgte Freigabeabfälle zu diesen Tritiumausträgen beitragen. Eine weitere Quelle von Tritium können Labore sein, in denen in einem genehmigten Umgang Tritium verwendet und genehmigungskonform abgeleitet wird. Ein weiter gefasstes Monitoring von Tritium in Kläranlagen könnte Anhaltspunkte zur Aufklärung liefern.

Die bisherigen Messungen der natürlichen Radionuklide waren vor allem auf K-40, Be-7 und die Uranisotope ausgerichtet. Die ausgewerteten Messergebnisse zeigen, dass die kurzlebigen Tochternuklide von Ra-226 (Bi-214, Pb-214), Ra-228 (Ac-228) oder Th-228 (Pb-212, Tl-208) zwar gemessen und berichtet werden, sie werden aber nicht ihren langlebigen Vorgängernukliden zugeordnet und als deren Messwerte ausgewiesen. Damit ist die Qualität dieser Messungen eingeschränkt. Da z.B. die Freisetzung von Rn-222 zu erheblichen Ungleichgewichten in der Zerfallsreihe führen kann, ist die Messung der Radon-Folgeprodukte sowohl im Wasser als auch im Klärschlamm wenig aussagefähig, solange nicht die Gleichgewichtsbedingungen bekannt sind.

Da seit 2001 der Strahlenschutz auf die natürliche Radioaktivität ausgedehnt wurde, bedürfen im Einzelfall auch Radionuklide der natürlichen Zerfallsreihen einer Bewertung. So gab es bereits Anfragen an den nordrhein-westfälischen Landtag (Landtag-NRW, 2021) hinsichtlich der Kontamination von Abwasser durch die Reinigung von Lagerstättenwasser der Erdöl-/Erdgasgewinnung in einer industriellen Abwasserreinigung. Eine gesicherte Kenntnis über das allgemeine Hintergrundniveau der langlebigen Radionuklide Ra-226, Pb-210, Ra-228, Th-228 und ggf. Po-210 und Ac-227 im Abwasser und Klärschlamm und ihre regionale Variabilität sollte daher angestrebt werden.

Forschungsbedarf besteht ebenfalls hinsichtlich der Auswirkungen der gesetzlich geforderten Phosphatelimination auf eine mögliche Mitfällung und Anreicherung von Radionukliden im abgetrennten Phosphat. Typischerweise wird z.B. Uran mit Phosphat ausgefällt. Auch wenn der Effekt im Normalbetrieb in vielen Kläranlagen nicht relevant sein sollte, sollte geklärt werden, ob die Phosphatelimination in einigen Kläranlagen, in denen die Urankonzentration im Abwasser hoch ist, zu Problemen führen kann. Für mögliche Ereignisfälle sollte geklärt sein, ob andere technogene Radionuklide zu einer Kontamination des abgetrennten Phosphats führen können, die aus Gründen des Strahlenschutzes nicht außer Acht gelassen werden kann.

9.1.2 Qualitätssicherung

Um die Messergebnisse unterschiedlicher Messstellen bei der Überwachung der Umweltradioaktivität in Abwasser und Klärschlamm vergleichbar zu halten, sind Festlegungen zur Probenahme und Messvergleiche erforderlich.

Da in Klärwerken eine Umverteilung von Radionukliden zwischen gelöster und fester Phase stattfindet und einzelne Teilprozesse durch große Puffervolumina den zeitlichen Durchlauf von Stoffen verzögern, ist vor allem hinsichtlich kurzlebiger Radionuklide der Prozessteil wesentlich, aus dem Proben entnommen werden. So ist für eine repräsentative Beprobung des Eintrags in die Kläranlage das Schmutzwasser nach dem Sandfang geeignet, für die Einleitung in die Gewässer das gereinigte Abwasser, ggf. erst nach zwischengeschalteten Schönungsteichen. Für die Bewertung der bisherigen Messdaten wird davon ausgegangen, dass es sich beim Abwasser um Proben des gereinigten Abwassers am Ende der technischen Reinigungsstufen handelt.

Für Klärschlamm schreibt die AbfKlärV (AbfKlärV, 2017) vor, dass die Probenahmen nach DIN EN ISO 5667-13 durchzuführen sind. Für die Qualitätssicherung bei Probenahmen zur Bestimmung von

Radionuklide kann auf diese Norm zurückgegriffen werden. Neben den technisch-handwerklichen Aspekten der Probenahme ist es aber viel relevanter, an welcher Stelle der Klärschlamm entnommen werden soll. Die Norm ist anwendbar auf Probenahmen mit unterschiedlichen Zielen, zu denen u.a. die Bereitstellung von Daten für den Betrieb von Belebtschlammanlagen, für den Betrieb von Einrichtungen zur Behandlung von Klärschlamm sowie die Bestimmung der Konzentration von Schadstoffen in Klärschlämmen zur Ablagerung auf einer Deponie gehören. Abhängig von diesen Zielen sind die Probenahmepunkte an den Anlagen auszuwählen.

Für die Erfassung radioaktiver Kontaminationen wären Proben aus Rohschlamm zu bevorzugen, da in diesem Schlamm die kurzlebigen Radionuklide noch nicht so stark zerfallen sind wie im ausgefaulten Schlamm nach dem Abbau organischer Stoffe in Faultürmen. Andererseits sollten Vergleichsproben an Material entnommen werden, das auch in der Praxis des Monitorings zu beproben ist. Das sind in der Regel entwässerte Klärschlämme.

Für die Durchführung von Ringversuchen werden Kläranlagen aus dem Umfeld von Berlin als besonders geeignet angesehen. Kenngrößen der vier Klärwerke der Berliner Wasserbetriebe sind in Tabelle 10-1 zusammengestellt.

Hinreichende Mengen an Klärschlamm sind in den Anlagen praktisch immer vorhanden. Da für Ringversuche größere Probenmengen nötig sind, ist eine ausreichende Homogenisierung vorzusehen.

Tabelle 9-1: Technische Kenngrößen der vier im IMIS-Programm beprobten Kläranlagen der Berliner Wasserbetriebe

Kläranlage	Münchehofe		Schönerlinde		Waßmannsdorf		Ruhleben	
Kapazität in m³/d	42.500		105.000		230.000		247.500	
	Becken	Gesamt-volumen	Becken	Gesamt-volumen	Becken	Gesamt-volumen	Becken	Gesamt-volumen
		m³		m³		m³		m³
Vorklärbecken	8	8000	8	14800	10	22000	16	(k.A.)
Belebungsbecken	8	31000	8	130500	8	203600	16	(k.A.)
	4	13200	14					
Nachklärung	4	16000	12	42660	16	81300	54	(k.A.)
			2	10500				
Faulbehälter	3	24.000	4	32000	6	48000	(k.A.)	(k.A.)

Quelle: Berliner Wasserbetriebe 2023

Für Ringversuche sind nur Radionuklide geeignet, die mit hinreichender Wahrscheinlichkeit bei einer Probenahme in messbaren Aktivitäten im Klärschlamm enthalten sind. Wie die länderbezogenen Auswertungen im Kapitel 7.6 zeigen, sind das in den Kläranlagen des Landes Berlin:

- Be-7, K-40, die Uranisotope U-238, U-235, U-234 und die Zerfallsprodukte der U-238- und Th-232 Zerfallsreihe, wobei für die Zerfallsprodukte bisher nur lückenhafte Daten vorliegen,
- die nuklearmedizinischen Radionuklide I-131, Lu-177 und
- die Fallout-Radionuklide Cs-137 und Sr-90.

Alle anderen bisher untersuchten Radionuklide kommen nicht mit hinreichender Wahrscheinlichkeit im Klärschlamm vor. Es ist aber grundsätzlich möglich, eine Probe mit anderen Radionukliden zu spiken und damit die Qualitätsprüfung auf weitere Parameter auszudehnen.

Um die Eignung der Berliner Kläranlagen für die Gewinnung von Klärschlammproben für Ringversuche zu prüfen, wurden aus den IMIS-Datensätzen der Kläranlagen statistische Kenngrößen berechnet, die zum einen die Messwerte der für Ringversuche besonders relevanten nuklearmedizinischen Radionuklide I-131 und Lu-177 aber auch die Daten von K-40 und U-238 und deren Streuung charakterisieren. In Tabelle 10-6 sind die Median- und Mittelwerte der spezifischen Aktivitäten von I-131, Lu-177 und K-40 der vier im IMIS-Programm beprobten Kläranlagen der Berliner Wasserbetriebe zusammengestellt. Die Werte liegen im Bereich zwischen 10 Bq/kg(TM) und 100 Bq/kg(TM) und sind messtechnisch gut erfassbar.

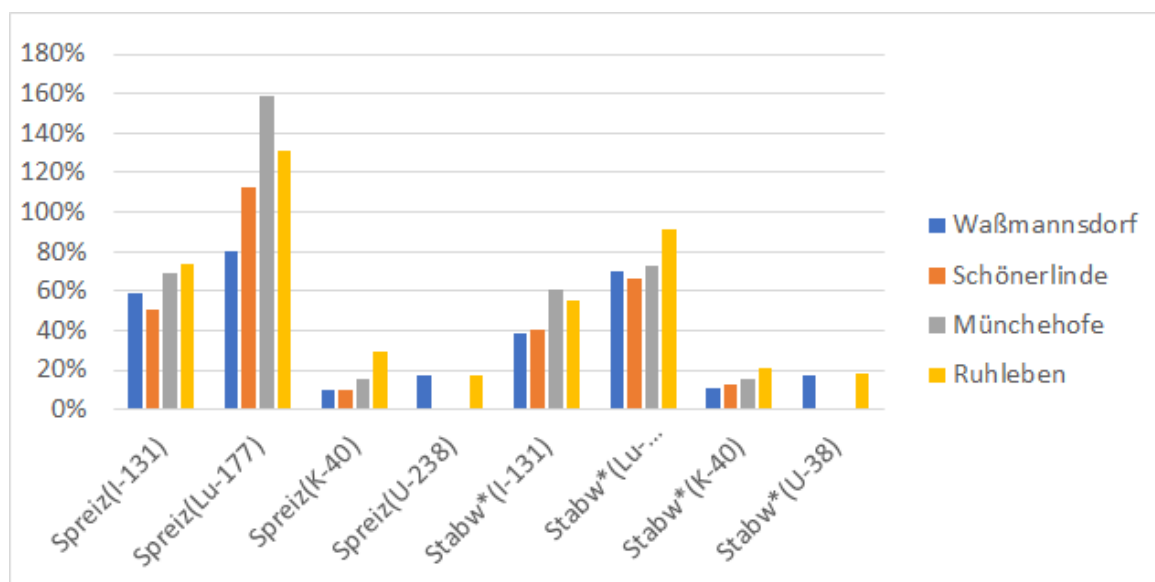
Tabelle 9-2: Mittlere spezifische Aktivitäten von I-131, Lu-177 und K-40 der vier im IMIS-Programm beprobten Kläranlagen der Berliner Wasserbetriebe

Radionuklid	Kläranlage	Einheit	Median	Mittelwert
I-131	Waßmannsdorf	Bq/kg(TM)	78,0	80,7
I-131	Schönerlinde	Bq/kg(TM)	73,2	75,5
I-131	Münchehofe	Bq/kg(TM)	47,5	55,5
I-131	Ruhleben	Bq/kg(TM)	64,0	69,9
Lu-177	Waßmannsdorf	Bq/kg(TM)	16,2	20,3
Lu-177	Schönerlinde	Bq/kg(TM)	33,5	38,8
Lu-177	Münchehofe	Bq/kg(TM)	59,0	77,9
Lu-177	Ruhleben	Bq/kg(TM)	110,0	131,3
K-40	Waßmannsdorf	Bq/kg(TM)	96,2	97,6
K-40	Schönerlinde	Bq/kg(TM)	66,9	67,6
K-40	Münchehofe	Bq/kg(TM)	44,5	45,4
K-40	Ruhleben	Bq/kg(TM)	62,0	63,6
U-238	Waßmannsdorf	Bq/kg(TM)	10,3	10,2
U-238	Ruhleben	Bq/kg(TM)	15,2	15,1

Quelle: Autoren

Im Diagramm der Abbildung 9-1 sind als Spreizung („Spreiz“) die Verhältnisse des Abstands Oberes Quantil – Unteres Quantil zum Medianwert und das Verhältnis der Standardabweichung zum Mittelwert dargestellt. Für die Kläranlagen Waßmannsdorf und Schönelinde sind diese Werte (außer beim Uran) stets kleiner als die der Kläranlagen Münchehofe und Ruhleben. Für die Gewinnung von Probematerial für Ringversuche sollten daher bevorzugt die Kläranlagen Waßmannsdorf und Schönelinde herangezogen werden. Die finale Auswahl sollte abhängig von technischen Gegebenheiten vor Ort getroffen werden.

Abbildung 9-1: Kenngrößen zur Charakterisierung der Spreizung der Daten von I-131, Lu-177 und K-40 im Klärschlamm von vier Klärwerken der Berliner Wasserbetriebe



Quelle: Autoren

Der Versand von entwässertem Klärschlamm ist ähnlich wie der Versand von Umweltproben möglich. Entwässerte Klärschlammproben sind bruchsfest zu verpacken. Auf den Charakter der Proben sollte hingewiesen werden.

Die Auswertungen der IMIS-Datenbank haben gezeigt, dass trotz der Prozesse der Qualitätsprüfung vereinzelt stark unplausible Einträge von Messwerten in der Datenbank vorkommen (s. Abbildung 7-24; Abbildung 7-25). In vielen Datensätzen wurden mit einer einfachen statistischen Prüfung Ausreißerwerte festgestellt, von denen einige als unplausibel einzustufen sind. Außerdem finden sich in der Datenbank extreme Nachweisgrenzen, bei denen zu fragen ist, ob ein solcher Eintrag sinnvoll ist (s. Tabelle 7-5).

Werden formalisierte Auswertungen vorgenommen, können extreme Ausreißer zumindest bei Mittelwerten und Streuungen zu erheblichen Verfälschungen führen. Aber auch Ausreißer, die nicht um mehrere Größenordnungen fehlerhaft sind, können zu Verzerrungen in den Auswertedaten führen. Aus diesem Grund sollten die Plausibilitätsprüfungen vor Einträgen in die Datenbank verbessert werden. Durch die Ermittlung und Festlegung parameterabhängiger Plausibilitätsbereiche und deren Einbau in Datenbankroutinen können Fehleinträge weiter reduziert werden.

Dabei ist ein abgestuftes Vorgehen zu empfehlen. In einem ersten Schritt können die hier ausgewerteten Datensätzen und deren statistische Kenngrößen genutzt werden, um allgemeine Plausibilitätsbereiche festzulegen. In einem weiteren Schritt sollten anlagenspezifische Plausibilitätsbereiche ermittelt und festgelegt werden. Dabei könnte auch eine quantitative Abstufung mit den Stufen „fragwürdig/bitte prüfen“ und „unplausibel/bitte begründen“ eingeführt werden.

Neben den Plausibilitätsbereichen der Messwerte können auch Aktivitätsverhältnisse wie z.B. Sr-90/Cs-137, U-235/U-238, U-234/U-238, Ra-226/U-238, Ra-226/Ra-228, Bi-214/Pb-214 u.a. als Prüfindikatoren verwendet werden. Solche Aktivitätsverhältnisse sind vielfach sehr gut geeignet, um Messergebnisse auf Plausibilität zu prüfen und unplausible Daten zu erkennen (siehe z.B. Abbildung 7-24 und Abbildung 7-25).

Soweit aus gesetzlich geforderten Gründen das bisher untersuchte breite Spektrum an künstlichen Radionukliden auch in Zukunft mit in der Datenbank ausgewiesen werden muss, sollten für die Radionuklide, die üblicherweise in der Umwelt nicht (mit den Standardtechniken messbar) vorkommen, Detektionen als „fragwürdig/bitte prüfen“ klassifiziert werden.

Werden mehrfach die Schwellenwerte des Plausibilitätsbereiches überschritten, ist von einem auslösenden Ereignis auszugehen, dessen Ursachen aufgeklärt werden sollten.

Alle auf Schwellenwerten eines Normalbetriebs aufbauenden Plausibilitätsprüfungen sind in Notfällen auszusetzen. Die in solchen Fällen erhobenen Daten müssen ggf. im Nachhinein geprüft werden.

9.2 Ausblick und Empfehlungen zu Modellierungsarbeiten

Der im Folgenden gegebene Ausblick im Bereich der Modellentwicklung und daraus ausgehend Empfehlungen für zukünftige Entwicklungen neuer Modellansätze sind als Anstoß zu möglichen zukünftigen Modellentwicklungen gedacht, wobei der dazu erforderliche Aufwand und Nutzen bzw. die Meidung von bedenklichen Strahlenrisiken abgewogen werden sollte.

Die Modellierung des Radionuklidtransfers in dem Abwassersystem kann zu einem zum Aufzeigen der Trends radiologischer Belastung dienen, zu anderem ist die Modellierung insgesamt im Sinne der Nachhaltigkeit bei der Umweltüberwachung als ein wichtiges Hilfsmittel zu sehen. Eine weitere Aufgabe ist es, die rechtzeitige Erkennung von Strahlenrisiken für die Bevölkerung und für die Beschäftigten bei radiologischen Notfällen zu identifizieren, da u.a. Klärschlamm als empfindlicher Indikator für die freigesetzten radioaktiven Stoffe nach einem Fallout oder auch aus der Medizin zu sehen ist (z. B. (Barci-Funel et al., 1993)). Ohne das sinngemäße Aufrechterhalten der messtechnischen Überwachung gekoppelt an Prognosen mit kontinuierlichem Ausbau von State-of-Art-Modellansätzen ist eine zuverlässige Bewertung der radiologischen Lage im Notfall nicht möglich.

Was die zukünftige Forschungsausrichtung der Modellierungsarbeiten zum Radionuklidtransfer in Abwasser und Klärschlamm betrifft sollten als Ausgangsbasis die auf deutsche Verhältnisse ausgerichteten Arbeiten wie TransAqua (Teilprojekt H, (Fischer et al., 2017)) priorisiert werden. Auch wenn sich generell in Europa die Behandlungsstufen der Abwasserbehandlungsanlagen wenig unterscheiden und sich nach den Vorgaben des europäischen Regelwerks (91/271/EWG, 2008) zu

richten haben, gibt es immer noch spezifische landesbezogene Merkmale aufgrund der historischen Entwicklungen. In dem Zusammenhang ist auch zu betonen, dass eine Modellentwicklung oder -anpassung mit den experimentellen Untersuchungen einher gehen und die Gegebenheiten des jeweiligen Klärwerks bzw. gesamten Abwasserbehandlungssystems mit Kanalnetz berücksichtigen sollte. Daher sind versatile Modellansätze gefragt.

Die Auswertung der Recherche im Kapitel 6 hat verdeutlicht, dass das Projekt TransAqua (Fischer et al., 2017) aufgrund der Verzahnung durchgedachter Experimente mit einem neuartigen Modellansatz heraussticht. Das in dem Vorhaben entwickelte experimentell verifizierte Modell fokussiert zwar auf I-131¹³, ist aber auf andere Radionuklide sowie Abwasserbehandlungsanlagen durch die zu diesem Zweck aufgebaute Modellparametrisierung übertragbar. Dabei berücksichtigt der Modellansatz die chemischen Formen der an die Patienten verabreichten Iod-Verbindung, die für das Verhalten während der Abwasserbehandlung entscheidend ist. Dieser Aspekt war immer wieder Gegenstand der Forschung ((Fenner & Martín, 1997), (McGowan et al., 2014), (Punt, Wood, et al., 2007)). Der jetzige Bestand sowie die Fortentwicklung im Bereich neuartiger Radiopharmaka (vgl. Anhang II, Tabelle 10-10) spricht dafür, dass die Spezifika des Chemismus in der Modellierung nicht außer Acht gelassen werden sollten. Das TransAqua-Modell erlaubt weiterhin die Extrapolation des Radioiodtransports auf die öffentliche Kanalisation, was dann die Bewertung des Gesamtsystems Quelle-Kanalisation-Kläranlage ermöglicht. Eine solche Gesamtbewertung wäre für die zukünftigen Modellierungsansätze in großen Agglomerationen mit mehreren relevanten medizinischen Einrichtungen empfehlenswert.

Ein Beispiel für einen solchen umfassenden Ansatz aus der Internationalen Forschung ist die Arbeit von ((Chang et al., 2011), Kapitel 6.3).

Ein weiteres wichtiges Merkmal der Modellierung ist die Berücksichtigung der experimentell verifizierten Radionuklid-Fraktionierung entlang der Behandlungsstufen bis hin zum Klärschlamm; die Modelle im Bereich der Abwasserbehandlung sind (zwangsweise) phänomenologischer Art und nutzen sinnvollerweise die Kompartimentbetrachtung, sollten aber mit einer mathematisch-physikalischen Prozessbeschreibung kombiniert werden. Eine Massenbilanzierung innerhalb der und zwischen den Kompartimenten unter Berücksichtigung des zeitlichen Prozessablaufes ist dabei unabdingbar.

Diese genannten Aspekte sind in den TransAqua-Modellansatz vergleichsweise dezidiert eingegangen. Überlegenswert wäre auch eine Ergänzung der Modelle mit den Methodiken aus der klassischen Siedlungswasserwirtschaft. Als Beispiel haben wir hier eine Arbeit zum Stand des Wissens im Bereich der analytischen Modellierung von Abwasserbehandlung mit der Option der Nutzung neuronaler Netze aufgeführt ((Nemcik et al., 2022), Kapitel 6.3.3). Die in dieser Studie vorgestellten Modellansätze mit der Prozessbeschreibung zu den einzelnen Behandlungsstufen des Klärwerks wären denkbar mit der Radionuklidtransfermodellierung zu koppeln: die chemisch-biologische Behandlung (Activated sludge model ASM1/2/3 inkl. Phosphorabtrennung, (Rieger et

¹³ Das Ziel war das Verhalten von I-131 und Cs-137 aus kerntechnischen Unfällen sowie I-131 und Tc-99m aus medizinischen Einrichtungen zu ermitteln. Weil das Cs-137 im Ablauf der Vorklärung des untersuchten Klärwerks nicht mehr nachgewiesen werden konnte und das Tc-99m aufgrund der kurzen Halbwertszeit und des seltenen Einsatzes im Einzugsgebiet des untersuchten Klärwerks kaum nachweisbar war, fokussierten die Untersuchungen auf I 131 (vgl. Kapitel 6.2.1)

al., 2001)), die Hydraulik- und die Belüftungsmodellierung. Die in (Nemcik et al., 2022) angesprochenen Optionen der Implementierung alternativer Lösungen mit der Künstlichen Intelligenz (neural network) sehen wir zur Zeit nicht als dringend erforderlich, auch wegen des erheblichen Aufwandes mit Blick auf die Modellierung und Prüfung der Modellzuverlässigkeit.

10 Anhang

Anhang I. Tabellen zur Auswertung der IMIS-Datenbank

Tabelle 10-1: Übersicht über alle an den Proben der Jahre 2016 bis 2022 im Abwasser bestimmten Radionuklide bzw. radioaktivitätsbezogene Parameter

	AW	A11	A13	A11 (SF)	A13 (SF)		AW	A11	A13	A11 (SF)	A13 (SF)
Ac-228	X	X	X			Pa-234m		X	X		
Ag-110m	X	X	X	X	X	Pb-210	X	X	X		
Ag-111	X	X	X	X	X	Pb-212	X	X	X		
Am-241	X	X	X			Pb-214	X	X	X		
Ba-133	X	X	X		X	Pm-151	X	X	X	X	X
Ba-140	X	X	X	X	X	Pu-236		X	X		
Be-7	X	X	X			Pu-238	X	X	X		
Bi-212	X	X	X			Pu-239		X	X		
Bi-214	X	X	X			Pu-23940	X	X	X		
Cd-109	X	X	X	X	X	Pu-241	X				
Ce-139	X	X	X		X	Ra-224			X		
Ce-141	X	X	X	X	X	Ra-226	X	X	X		
Ce-143	X	X	X	X	X	Ra-228			X		
Ce-144	X	X	X			Re-186			X		
Cm-242	X	X	X			Ru-103	X	X	X		
Cm-24344	X	X	X			Ru-106	X	X	X		
Cm-244		X				Sb-124	X	X	X		
Co-57	X	X	X	X		Sb-125	X	X	X	X	X
Co-58	X	X	X			Sb-127	X	X	X	X	X
Co-60	X	X	X			Sb-129	X	X	X	X	X
Cr-51	X	X	X			Se-75	X	X	X	X	
Cs-134	X	X	X			Sn-113		X	X	X	X
Cs-136	X	X	X	X	X	Sn-113			X		
Cs-137	X	X	X			Sr-85		X	X	X	X
Eu-152	X	X	X	X	X	Sr-89	X	X			
Eu-154	X	X	X	X	X	Sr-90	X	X	X		
Eu-155	X	X	X	X	X	Sr-91		X		X	
Fe-59	X	X	X	X	X	Sr-92		X		X	
G-Alpha		X	X			Tc-99m	X	X	X		
G-Beta		X				Te-123m	X	X	X	X	
H-3	X	X				Te-129	X	X	X	X	X
Hf-181		X		X		Te-129m	X	X	X	X	X
Hg-203		X	X	X	X	Te-131m	X	X	X	X	X
I-131	X	X	X			Te-132	X	X	X		

I-132	X	X	X	X	X	Th-228		X	X		
I-133	X	X	X	X		Th-231		X	X		
I-135	X	X	X	X		Th-232		X	X		
In-111	X	X	X			Tl-201		X	X		
K-40	X	X	X			Tl-202		X	X		
Kr-85	X	X	X			Tl-208	X	X	X		
La-140	X	X	X	X	X	U-232		X			
La-141		X		X		U-234	X	X	X		
Lu-177		X	X			U-235	X	X	X		
Lu-177m			X			U-238	X	X	X		
Mn-54	X	X	X			Y-88		X	X	X	X
Mo-99	X	X	X	X	X	Y-90	X				
Na-22		X	X	X	X	Y-92		X		X	
Nb-95	X	X	X	X	X	Y-93		X		X	
Nb-97		X		X		Zn-65	X	X	X	X	X
Nd-147	X	X	X	X	X	Zr-95	X	X	X	X	
Np-239	X	X	X	X	X	Zr-97		X		X	

Quelle: Autoren

Tabelle 10-2: Übersicht Radionuklide mit Anzahl der Messungen und der Messwerte (Abwasser)

Mess-programm	A11	Normal				Störfall				Land			
Radio-nuklid	Gesamt	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG
				Bq/l	Bq/l			Bq/l	Bq/l			Bq/l	Bq/l
Ac-228	48	44	5	0,328	0,266	4		~	31,63	0		~	~
Ag-110m	12	0		~	~	12		~	1,34	0		~	~
Ag-111	7	0		~	~	7		~	8,87	0		~	~
Am-241	107	89		~	0,106	18		~	2,40	0		~	~
Ba-133	4	1		~	~	3		~	1,09	0		~	~
Ba-140	9	0		~	~	9		~	4,59	0		~	~
Be-7	562	540	18	0,161	0,915	22		~	9,77	0		~	~
Bi-212	29	28	3	0,656	1,205	1		~	27,60	0		~	~
Bi-214	95	94	60	0,069	0,089	1		~	6,53	0		~	~
Cd-109	3	0		~	~	3		~	18,73	0		~	~
Ce-139	4	1		~	0,036	3		~	0,67	0		~	~
Ce-141	9	0		~	~	9		~	1,63	0		~	~
Ce-143	7	0		~	~	7		~	1,97	0		~	~
Ce-144	2654	2483		~	0,248	110		~	6,23	61		~	0,224
Cm-242	29	28		~	0,003	1		~	0,04	0		~	~
Cm-24344	29	28		~	0,002	1		~	0,05	0		~	~
Cm-244	8	8		~	0,012	0		~	~	0		~	~
Co-57	12	0		~	~	12		~	0,89	0		~	~
Co-58	27	14		~	0,033	13		~	1,49	0		~	~
Co-60	2869	2690		~	0,042	118		~	1,33	61		~	0,046
Cr-51	14	2	2	0,288	0,539	12		~	8,56	0		~	~
Cs-134	2867	2688		~	0,040	118		~	1,22	61		~	0,040
Cs-136	10	0		~	~	10		~	1,52	0		~	~
Cs-137	2869	2690	10	0,042	0,042	118		~	1,27	61		~	0,042
Eu-152	10	0		~	~	10		~	2,73	0		~	~
Eu-154	10	0		~	~	10		~	1,58	0		~	~
Eu-155	10	0		~	~	10		~	2,42	0		~	~
Fe-59	12	0		~	~	12		~	3,16	0		~	~
G-Alpha	88	88		~	0,116	0		~	~	0		~	~
G-Beta	1	1	1	0,950	0,176	0		~	~	0		~	~
H-3	100	98	35	2,178	3,227	2	1	2,58	5,60	0		~	~

Mess-programm	A11	Normal				Störfall				Land			
Radio-nuklid	Gesamt	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG
				Bq/l	Bq/l			Bq/l	Bq/l			Bq/l	Bq/l
Hf-181	3	0		~	~	3		~	1,61	0		~	~
Hg-203	3	0		~	~	3		~	0,73	0		~	~
I-131	2673	2496	785	0,176	2,551	118	2	2,175	1,13	59	2	0,404	0,391
I-132	7	0		~	~	7		~	2853	0		~	~
I-133	3	0		~	~	3		~	5,28	0		~	~
I-135	3	0		~	~	3		~	780	0		~	~
In-111	223	174	1	0,104	0,648	8		~	0,88	41		~	0,715
K-40	2869	2690	1546	0,846	0,847	118	2	6,05	23,77	61	32	1,077	0,982
Kr-85	27	10		~	5,022	0		~	~	17		~	4,325
La-140	12	0		~	~	12		~	3,09	0		~	~
La-141	3	0		~	~	3		~	1899 0	0		~	~
Lu-177	68	67	54	8,224	3,333	1		~	2,38	0		~	~
Mn-54	27	14		~	0,024	13		~	1,61	0		~	~
Mo-99	10	0		~	~	10		~	3,43	0		~	~
Na-22	8	0		~	~	8		~	2,35	0		~	~
Nb-95	9	0		~	~	9		~	1,38	0		~	~
Nb-97	3	0		~	~	3		~	0,19	0		~	~
Nd-147	10	0		~	~	10		~	3,07	0		~	~
Np-239	7	0		~	~	7		~	2,25	0		~	~
Pa-234m	1	1		~	10,2	0		~	~	0		~	~
Pb-210	43	40	1	0,104	2,070	3		~	57,17	0		~	~
Pb-212	85	81	50	0,085	0,073	4		~	5,12	0		~	~
Pb-214	85	84	44	0,041	0,084	1		~	4,02	0		~	~
Pm-151	10	0		~	~	10		~	6,28	0		~	~
Pu-236	1	1		~	0,002	0		~	~	0		~	~
Pu-238	468	464	8	0,001	0,010	4		~	0,22	0		~	~
Pu-239	35	35		~	0,002	0		~	~	0		~	~
Pu-23940	433	429	11	0,001	0,010	4		~	0,20	0		~	~
Ra-226	100	93	13	0,483	0,728	7		~	9,38	0		~	~
Ru-103	2656	2485		~	0,095	110		~	1,03	61		~	0,049
Ru-106	71	60		~	0,054	11		~	14,12	0		~	~
Sb-124	27	14		~	0,037	13		~	2,67	0		~	~
Sb-125	12	0		~	~	12		~	3,29	0		~	~

Mess- programm	A11	Normal				Störfall				Land			
Radio- nuklid	Gesamt	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG
				Bq/l	Bq/l			Bq/l	Bq/l			Bq/l	Bq/l
Sb-127	10	0		~	~	10		~	3,19	0		~	~
Sb-129	10	0		~	~	10		~	1665	0		~	~
Se-75	7	0		~	~	7		~	0,85	0		~	~
Sn-113	3	0		~	~	3		~	1,07	0		~	~
Sr-85	3	0		~	~	3		~	0,80	0		~	~
Sr-89	7	2		~	0,066	5		~	1,14	0		~	~
Sr-90	478	473	234	0,010	0,019	5		~	1,10	0		~	~
Sr-91	3	0		~	~	3		~	42,89	0		~	~
Sr-92	3	0		~	~	3		~	3412	0		~	~
Tc-99m	42	32	32	53,4	80,19	10		~	61,59	0		~	~
Te-123m	12	0		~	~	12		~	2180 9	0		~	~
Te-129	7	0		~	~	7		~	184,9	0		~	~
Te-129m	10	0		~	~	10		~	9216 0	0		~	~
Te-131m	10	0		~	~	10		~	5,16	0		~	~
Te-132	63	53		~	0,890	10		~	0,96	0		~	~
Th-228	2	2	2	0,172	0,116	0		~	~	0		~	~
Th-231	1	1		~	0,150	0		~	~	0		~	~
Th-232	7	7		~	0,111	0		~	~	0		~	~
Tl-201	219	177		~	25,86	8		~	7,20	34		~	9,94
Tl-202	252	198		~	0,136	5		~	0,54	49		~	0,685
Tl-208	56	55	12	0,055	0,066	1		~	1,99	0		~	~
U-232	1	1		~	~	0		~	~	0		~	~
U-234	492	480	318	0,008	0,008	12		~	0,06	0		~	~
U-235	517	489	70	0,004	0,017	28	1	0,0001 2	1,26	0		~	~
U-238	493	481	310	0,008	0,014	12	1	0,0029 9	0,04	0		~	~
Y-88	3	0		~	~	3		~	0,88	0		~	~
Y-92	3	0		~	~	3		~	14394 5	0		~	~
Y-93	3	0		~	~	3		~	238	0		~	~
Zn-65	12	0		~	~	12		~	3,43	0		~	~
Zr-95	12	0		~	~	12		~	2,44	0		~	~

Mess- programm	A11	Normal				Störfall				Land			
Radio- nuklid	Gesamt	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG
				Bq/l	Bq/l			Bq/l	Bq/l			Bq/l	Bq/l
Zr-97	3	0		~	~	3		~	8,63	0		~	~
Summe	2525 4	2330 4	3625		~	1384	7			566	57		

Quelle: Autoren

Tabelle 10-3: Übersicht Radionuklide mit Anzahl der Messungen und der Messwerte (Klärschlamm)

Mess-programm	A13	Normal				Störfall				Land			
Radio-nuklid	Gesamt	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG
				Bq/kg	Bq/kg			Bq/kg	Bq/kg			Bq/kg	Bq/kg
Ac-228	381	378	378	27,98	2,56	3	0	~	104,3	0	0	~	~
Ag-110m	8	0	0	~	~	8	0	~	3,37	0	0	~	~
Ag-111	6	0	0	~	~	6	0	~	29,25	0	0	~	~
Am-241	98	84	0	~	2,28	14	0	~	9,06	0	0	~	~
Ba-133	3	0	0	~	~	3	0	~	2,64	0	0	~	~
Ba-140	5	0	0	~	~	5	0	~	14,09	0	0	~	~
Be-7	1852	1800	1784	251,9	11,8	52	44	310,6	56,31	0	0	~	~
Bi-212	315	315	294	101,0	8,16	0	0	~	~	0	0	~	~
Bi-214	375	375	374	7,79	1,49	0	0	~	~	0	0	~	~
Cd-109	3	0	0	~	~	3	0	~	45,93	0	0	~	~
Ce-139	3	0	0	~	~	3	0	~	1,91	0	0	~	~
Ce-141	8	0	0	~	~	8	0	~	4,94	0	0	~	~
Ce-143	6	0	0	~	~	6	0	~	6,51	0	0	~	~
Ce-144	2626	2482	0	~	4,99	94	0	~	34,98	50	0	~	1,492
Cm-242	28	28	0	~	0,07	0	0	~	~	0	0	~	~
Cm-24344	28	28	0	~	0,10	0	0	~	~	0	0	~	~
Co-57	9	1	1	0,12	0,19	8	0	~	2,71	0	0	~	~
Co-58	23	14	0	~	0,33	9	0	~	3,33	0	0	~	~
Co-60	2801	2649	1	0,12	0,90	102	0	~	5,83	50	0	~	0,267
Cr-51	10	2	2	5,75	3,15	8	0	~	26,46	0	0	~	~
Cs-134	2802	2650	1	0,12	0,92	102	0	~	5,46	50	0	~	0,243
Cs-136	6	0	0	~	~	6	0	~	3,30	0	0	~	~
Cs-137	2802	2650	1970	3,00	1,01	102	11	9,16	7,09	50	45	0,869	0,388
Eu-152	6	0	0	~	~	6	0	~	6,22	0	0	~	~
Eu-154	6	0	0	~	~	6	0	~	4,31	0	0	~	~

Mess-programm	A13	Normal				Störfall				Land			
Radio-nuklid	Gesamt	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG
				Bq/kg	Bq/kg			Bq/kg	Bq/kg			Bq/kg	Bq/kg
Eu-155	6	0	0	~	~	6	0	~	7,44	0	0	~	~
Fe-59	8	0	0	~	~	8	0	~	6,70	0	0	~	~
G-Alpha	12	12	12	93,28	19,25	0	0	~	~	0	0	~	~
Hg-203	6	0	0	~	~	6	0	~	2,44	0	0	~	~
I-123	2	2	2	9,78	6,06	0	0	~	~	0	0	~	~
I-125	2	2	0	~	0,19	0	0	~	~	0	0	~	~
I-131	2601	2453	2158	48,47	13,71	102	67	39,47	6,83	46	45	33,9	3,305
I-132	3	0	0	~	~	3	0	~	17,03	0	0	~	~
In-111	259	209	41	2,97	8,72	10	0	~	1,98	40	0	~	9,15
K-40	2802	2650	2623	164,8	15,42	102	55	124,4	107,7	50	50	75,7	6,75
Kr-85	22	10	0	~	21,71	0	0	~	~	12	0	~	18,16
La-140	8	0	0	~	~	8	0	~	6,13	0	0	~	~
Lu-177	262	254	239	194,9	30,45	8	4	50,5	22,22	0	0	~	~
Lu-177m	10	10	10	1,22	0,59	0	0	~	~	0	0	~	~
Mn-54	23	14	0	~	0,43	9	0	~	3,36	0	0	~	~
Mo-99	6	0	0	~	~	6	0	~	12,59	0	0	~	~
Na-22	8	0	0	~	~	8	0	~	4,41	0	0	~	~
Nb-95	8	0	0	~	~	8	0	~	3,32	0	0	~	~
Nd-147	6	0	0	~	~	6	0	~	8,99	0	0	~	~
Np-239	6	0	0	~	~	6	0	~	7,98	0	0	~	~
Pa-234m	18	18	18	87,07	64,83	0	0	~	~	0	0	~	~
Pb-210	194	188	158	76,03	45,51	6	0	~	368,0	0	0	~	~
Pb-212	384	381	381	8,04	1,22	3	0	~	15,87	0	0	~	~
Pb-214	598	598	591	324,3	2,92	0	0	~	~	0	0	~	~
Pm-151	6	0	0	~	~	6	0	~	12,38	0	0	~	~
Pu-236	1	1	0	~	1,43	0	0	~	~	0	0	~	~
Pu-238	415	415	16	0,23	1,51	0	0	~	~	0	0	~	~
Pu-239	33	33	0	~	0,46	0	0	~	~	0	0	~	~

Mess- programm	A13	Normal				Störfall				Land			
Radio- nuklid	Gesamt	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG
				Bq/kg	Bq/kg			Bq/kg	Bq/kg			Bq/kg	Bq/kg
Pu-23940	382	382	32	0,13	1,31	0	0	~	~	0	0	~	~
Ra-224	1	1	1	301,0	~	0	0	~	~	0	0	~	~
Ra-226	145	139	139	29,41	5,37	6	0	~	33,81	0	0	~	~
Ra-228	49	49	49	25,54	5,93	0	0	~	~	0	0	~	~
Re-186	1	1	0	~	5,08	0	0	~	~	0	0	~	~
Ru-103	2626	2482	0	~	1,07	94	0	~	4,89	50	0	~	0,337
Ru-106	73	65	0	~	8,98	8	0	~	29,94	0	0	~	~
Sb-124	23	14	0	~	0,35	9	0	~	6,73	0	0	~	~
Sb-125	8	0	0	~	~	8	0	~	9,78	0	0	~	~
Sb-127	6	0	0	~	~	6	0	~	8,33	0	0	~	~
Sb-129	6	0	0	~	~	6	0	~	44,70	0	0	~	~
Se-75	11	5	5	0,96	0,58	6	0	~	3,01	0	0	~	~
Sm-153	4	4	4	34,89	4,71	0	0	~	~	0	0	~	~
Sn-113	3	0	0	~	~	3	0	~	2,48	0	0	~	~
Sr-85	6	0	0	~	~	6	0	~	3,27	0	0	~	~
Sr-90	419	419	361	1,82	1,01	0	0	~	~	0	0	~	~
Tc-99m	47	40	40	580,8	79,9	7	1	66,0	8,82	0	0	~	~
Te-123m	9	1	1	0,15	0,22	8	0	~	2,48	0	0	~	~
Te-129	3	0	0	~	~	3	0	~	1006	0	0	~	~
Te-129m	6	0	0	~	~	6	0	~	303	0	0	~	~
Te-131m	6	0	0	~	~	6	0	~	8,56	0	0	~	~
Te-132	72	66	0	~	1,01	6	0	~	2,37	0	0	~	~
Th-228	48	48	48	9,15	2,35	0	0	~	~	0	0	~	~
Th-230	1	1	1	9,01	0,11	0	0	~	~	0	0	~	~
Th-232	13	10	9	17,94	3,24	3	0	~	8,04	0	0	~	~
Tl-201	216	170	0	~	547,7	10	0	~	16,9	36	0	~	103
Tl-202	231	181	0	~	0,33	10	0	~	2,50	40	0	~	0,97
Tl-208	262	262	258	4,63	1,35	0	0	~	~	0	0	~	~

Mess- programm	A13	Normal				Störfall				Land			
Radio- nuklid	Gesamt	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG	Anz. Mess	Anz. Messw	Mittel Messw	Mittel NWG
				Bq/kg	Bq/kg			Bq/kg	Bq/kg			Bq/kg	Bq/kg
U-234	440	432	430	49,49	0,77	8	8	26,34	0,08	0	0	~	~
U-235	580	559	445	2,57	1,43	21	9	2,81	5,69	0	0	~	~
U-238	553	545	543	43,64	3,44	8	8	9,82	0,00	0	0	~	~
Y-88	6	0	0	~	~	6	0	~	2,71	0	0	~	~
Zn-65	8	0	0	~	~	8	0	~	7,78	0	0	~	~
Zr-95	10	2	2	0,68	0,46	8	0	~	6,01	0	0	~	~
Summe	28193	26584	13422			1135	207			474	140		

Quelle: Autoren

Tabelle 10-4: Übersicht Messregime und Anzahl der Messwerte

	A13	Normal				Störf				Land			
	Gesamt	Normal	Anzahl Messwert	MW (Normal)	MW(N WG)	Störf	Anzahl Messwert	MW (Störf)	MW(N WG)	Land	Anzahl Messwert	MW (Land)	MW(N WG)
				Bq/kg	Bq/kg			Bq/kg	Bq/kg			Bq/kg	Bq/kg
Ac-228	381	378	378	27,98	2,56	3	0	~	104,3	0	0	~	~
Ag-110m	8	0	0	~	~	8	0	~	3,37	0	0	~	~
Ag-111	6	0	0	~	~	6	0	~	29,25	0	0	~	~
Am-241	98	84	0	~	2,28	14	0	~	9,06	0	0	~	~
Ba-133	3	0	0	~	~	3	0	~	2,64	0	0	~	~
Ba-140	5	0	0	~	~	5	0	~	14,09	0	0	~	~
Be-7	1852	1800	1784	251,9	11,8	52	44	310,6	56,31	0	0	~	~
Bi-212	315	315	294	101,0	8,16	0	0	~	~	0	0	~	~
Bi-214	375	375	374	7,79	1,49	0	0	~	~	0	0	~	~
Cd-109	3	0	0	~	~	3	0	~	45,93	0	0	~	~
Ce-139	3	0	0	~	~	3	0	~	1,91	0	0	~	~
Ce-141	8	0	0	~	~	8	0	~	4,94	0	0	~	~
Ce-143	6	0	0	~	~	6	0	~	6,51	0	0	~	~
Ce-144	2626	2482	0	~	4,99	94	0	~	34,98	50	0	~	1,492
Cm-242	28	28	0	~	0,07	0	0	~	~	0	0	~	~
Cm-24344	28	28	0	~	0,10	0	0	~	~	0	0	~	~
Co-57	9	1	1	0,12	0,19	8	0	~	2,71	0	0	~	~
Co-58	23	14	0	~	0,33	9	0	~	3,33	0	0	~	~
Co-60	2801	2649	1	0,12	0,90	102	0	~	5,83	50	0	~	0,267
Cr-51	10	2	2	5,75	3,15	8	0	~	26,46	0	0	~	~
Cs-134	2802	2650	1	0,12	0,92	102	0	~	5,46	50	0	~	0,243
Cs-136	6	0	0	~	~	6	0	~	3,30	0	0	~	~
Cs-137	2802	2650	1970	3,00	1,01	102	11	9,16	7,09	50	45	0,869	0,388
Eu-152	6	0	0	~	~	6	0	~	6,22	0	0	~	~
Eu-154	6	0	0	~	~	6	0	~	4,31	0	0	~	~

	A13	Normal				Störf				Land			
	Gesamt	Normal	Anzahl Messwert	MW (Normal)	MW(NWG)	Störf	Anzahl Messwert	MW (Störf)	MW(NWG)	Land	Anzahl Messwert	MW (Land)	MW(NWG)
Eu-155	6	0	0	~	~	6	0	~	7,44	0	0	~	~
Fe-59	8	0	0	~	~	8	0	~	6,70	0	0	~	~
G-Alpha	12	12	12	93,28	19,25	0	0	~	~	0	0	~	~
Hg-203	6	0	0	~	~	6	0	~	2,44	0	0	~	~
I-123	2	2	2	9,78	6,06	0	0	~	~	0	0	~	~
I-125	2	2	0	~	0,19	0	0	~	~	0	0	~	~
I-131	2601	2453	2158	48,47	13,71	102	67	39,47	6,83	46	45	33,9	3,305
I-132	3	0	0	~	~	3	0	~	17,03	0	0	~	~
In-111	259	209	41	2,97	8,72	10	0	~	1,98	40	0	~	9,15
K-40	2802	2650	2623	164,8	15,42	102	55	124,4	107,7	50	50	75,7	6,75
Kr-85	22	10	0	~	21,71	0	0	~	~	12	0	~	18,16
La-140	8	0	0	~	~	8	0	~	6,13	0	0	~	~
Lu-177	262	254	239	194,9	30,45	8	4	50,5	22,22	0	0	~	~
Lu-177m	10	10	10	1,22	0,59	0	0	~	~	0	0	~	~
Mn-54	23	14	0	~	0,43	9	0	~	3,36	0	0	~	~
Mo-99	6	0	0	~	~	6	0	~	12,59	0	0	~	~
Na-22	8	0	0	~	~	8	0	~	4,41	0	0	~	~
Nb-95	8	0	0	~	~	8	0	~	3,32	0	0	~	~
Nd-147	6	0	0	~	~	6	0	~	8,99	0	0	~	~
Np-239	6	0	0	~	~	6	0	~	7,98	0	0	~	~
Pa-234m	18	18	18	87,07	64,83	0	0	~	~	0	0	~	~
Pb-210	194	188	158	76,03	45,51	6	0	~	368,0	0	0	~	~
Pb-212	384	381	381	8,04	1,22	3	0	~	15,87	0	0	~	~
Pb-214	598	598	591	324,37	2,92	0	0	~	~	0	0	~	~
Pm-151	6	0	0	~	~	6	0	~	12,38	0	0	~	~
Pu-236	1	1	0	~	1,43	0	0	~	~	0	0	~	~
Pu-238	415	415	16	0,23	1,51	0	0	~	~	0	0	~	~
Pu-239	33	33	0	~	0,46	0	0	~	~	0	0	~	~

	A13	Normal				Störf				Land			
	Gesamt	Normal	Anzahl Messwert	MW (Normal)	MW(N WG)	Störf	Anzahl Messwert	MW (Störf)	MW(N WG)	Land	Anzahl Messwert	MW (Land)	MW(N WG)
Pu-23940	382	382	32	0,13	1,31	0	0	~	~	0	0	~	~
Ra-224	1	1	1	301,0	~	0	0	~	~	0	0	~	~
Ra-226	145	139	139	29,41	5,37	6	0	~	33,81	0	0	~	~
Ra-228	49	49	49	25,54	5,93	0	0	~	~	0	0	~	~
Re-186	1	1	0	~	5,08	0	0	~	~	0	0	~	~
Ru-103	2626	2482	0	~	1,07	94	0	~	4,89	50	0	~	0,337
Ru-106	73	65	0	~	8,98	8	0	~	29,94	0	0	~	~
Sb-124	23	14	0	~	0,35	9	0	~	6,73	0	0	~	~
Sb-125	8	0	0	~	~	8	0	~	9,78	0	0	~	~
Sb-127	6	0	0	~	~	6	0	~	8,33	0	0	~	~
Sb-129	6	0	0	~	~	6	0	~	44,70	0	0	~	~
Se-75	11	5	5	0,96	0,58	6	0	~	3,01	0	0	~	~
Sm-153	4	4	4	34,89	4,71	0	0	~	~	0	0	~	~
Sn-113	3	0	0	~	~	3	0	~	2,48	0	0	~	~
Sr-85	6	0	0	~	~	6	0	~	3,27	0	0	~	~
Sr-90	419	419	361	1,82	1,01	0	0	~	~	0	0	~	~
Tc-99m	47	40	40	580,8	79,9	7	1	66,0	8,82	0	0	~	~
Te-123m	9	1	1	0,15	0,22	8	0	~	2,48	0	0	~	~
Te-129	3	0	0	~	~	3	0	~	1006	0	0	~	~
Te-129m	6	0	0	~	~	6	0	~	303	0	0	~	~
Te-131m	6	0	0	~	~	6	0	~	8,56	0	0	~	~
Te-132	72	66	0	~	1,01	6	0	~	2,37	0	0	~	~
Th-228	48	48	48	9,15	2,35	0	0	~	~	0	0	~	~
Th-230	1	1	1	9,01	0,11	0	0	~	~	0	0	~	~
Th-232	13	10	9	17,94	3,24	3	0	~	8,04	0	0	~	~
Tl-201	216	170	0	~	547,7	10	0	~	16,9	36	0	~	103
Tl-202	231	181	0	~	0,33	10	0	~	2,50	40	0	~	0,97

	A13	Normal				Störf				Land			
	Gesamt	Normal	Anzahl Messwert	MW (Normal)	MW(NWG)	Störf	Anzahl Messwert	MW (Störf)	MW(NWG)	Land	Anzahl Messwert	MW (Land)	MW(NWG)
Tl-208	262	262	258	4,63	1,35	0	0	~	~	0	0	~	~
U-234	440	432	430	49,49	0,77	8	8	26,34	0,08	0	0	~	~
U-235	580	559	445	2,57	1,43	21	9	2,81	5,69	0	0	~	~
U-238	553	545	543	43,64	3,44	8	8	9,82	0,00	0	0	~	~
Y-88	6	0	0	~	~	6	0	~	2,71	0	0	~	~
Zn-65	8	0	0	~	~	8	0	~	7,78	0	0	~	~
Zr-95	10	2	2	0,68	0,46	8	0	~	6,01	0	0	~	~
Summe	28193	26584	13422			1135	207			474	140		

Quelle: Autoren

Tabelle 10-5: Radionuklide und Anzahl der Messungen

Radionuklid lt. IMIS	Typ*	Anzahl Messungen N	Mittelwert Messwerte MW in Bq/l	Anzahl Messwerte n	n/N in %	Mittelwert NWG in Bq/l
Ac-228	Nat	47	0,328	5	11%	2,998
Ag-110m		12	kein	0	0%	1,340
Ag-111		7	kein	0	0%	8,869
Am-241	TU	135	kein	0	0%	0,390
Ba-133		4	kein	0	0%	0,815
Ba-140		9	kein	0	0%	4,591
Be-7	Nat	567	0,161	18	3%	1,259
Bi-212	Nat	29	0,656	3	10%	2,147
Bi-214	Nat	96	0,069	60	63%	0,163
Cd-109		3	kein	0	0%	18,733
Ce-139	SP	4	kein	0	0%	0,515
Ce-141		9	kein	0	0%	1,627
Ce-143		7	kein	0	0%	1,967
Ce-144	SP	2660	kein	0	0%	0,495
Cm-242	TU	57	kein	0	0%	0,002
Cm-24344	TU	29	kein	0	0%	0,004
Cm-244	TU	36	kein	0	0%	0,003
Co-57		12	kein	0	0%	0,885
Co-58		27	kein	0	0%	0,735
Co-60	AP	2922	kein	0	0%	0,094
Cr-51	AP	14	0,288	2	14%	7,939
Cs-134	SP	2905	kein	0	0%	0,088
Cs-136	SP	10	kein	0	0%	1,524
Cs-137	SP	2922	0,042	10	0%	0,091
Eu-152	SP	10	kein	0	0%	2,727
Eu-154	SP	10	kein	0	0%	1,577
Eu-155	SP	10	kein	0	0%	2,424

Radionuklid lt. IMIS	Typ*	Anzahl Messungen N	Mittelwert Messwerte MW in Bq/l	Anzahl Messwerte n	n/N in %	Mittelwert NWG in Bq/l
Fe-59	AP	12	kein	0	0%	3,164
G-Alpha	--	92	kein	0	0%	0,112
G-Beta	--	1	0,950	1	100%	0,176
H-3	(Nat)	105	2,189	36	34%	3,526
Hf-181		3	kein	0	0%	1,614
Hg-203		3	kein	0	0%	0,734
I-131	SP-M	2711	0,186	831	31%	2,426
I-132		8	kein	0	0%	1,91E+06
I-133		3	kein	0	0%	5,282
I-135		3	kein	0	0%	780,067
In-111	SP-M	223	0,104	1	0%	1,99E+07
K-40	Nat	2922	0,850	1617	55%	1,866
Kr-85	SP	27	kein	0	0%	4,583
La-140		12	kein	0	0%	3,093
La-141		3	kein	0	0%	5,43E+05
Lu-177	M	69	8,399	55	80%	3,293
Mn-54		27	kein	0	0%	0,788
Mo-99		10	kein	0	0%	3,433
Na-22		8	kein	0	0%	2,353
Nb-95		9	kein	0	0%	1,384
Nb-97		3	kein	0	0%	5,83E+12
Nd-147		10	kein	0	0%	3,074
Np-239	TU	7	kein	0	0%	2,247
Pa-234m	Nat	1	kein	0	0%	10,200
Pb-210	Nat	45	0,104	1	2%	6,002
Pb-212	Nat	87	0,084	51	59%	0,348
Pb-214	Nat	87	0,041	45	52%	0,131
Pm-151		10	kein	0	0%	6,278
Pu-236		1	kein	0	0%	0,002
Pu-238	TU	492	0,001	8	2%	0,012

Radionuklid lt. IMIS	Typ*	Anzahl Messungen N	Mittelwert Messwerte MW in Bq/l	Anzahl Messwerte n	n/N in %	Mittelwert NWG in Bq/l
Pu-239	TU	35	kein	0	0%	0,002
Pu-23940	TU	457	0,001	12	3%	0,011
Ra-226	Nat	100	0,482	13	13%	1,340
Ru-103	SP	2662	kein	0		0,133
Ru-106	SP	71	kein	0		2,234
Sb-124		27	kein	0		1,306
Sb-125		12	kein	0		3,293
Sb-127		10	kein	0		3,194
Sb-129		10	kein	0		1,67E+03
Se-75		7	kein	0		0,846
Sn-113		3	kein	0		1,073
Sr-85		3	kein	0		0,801
Sr-89	SP	7	kein	0		0,830
Sr-90	SP	475	0,010	231	49%	0,032
Sr-91		3	kein	0	0%	42,887
Sr-92		3	kein	0	0%	5,89E+05
Tc-99m	SP-M	42	53,408	32	76%	75,271
Te-123m		12	kein	0	0%	2,18E+04
Te-129		7	kein	0	0%	1,51E+18
Te-129m		10	kein	0	0%	9,22E+04
Te-131m		10	kein	0	0%	5,159
Te-132	SP	63	kein	0	0%	0,902
Th-228	Nat	2	0,172	2	100%	0,116
Th-231	Nat	1	kein	0	0%	0,150
Th-232	Nat	7	kein	0	0%	0,111
Tl-201	M	219	kein	0	0%	2,20E+07
Tl-202	M	252	kein	0	0%	0,251
Tl-208	Nat	56	0,055	12	21%	0,102
U-232		1	0,000	0	0%	(--)

Radionuklid lt. IMIS	Typ*	Anzahl Messungen N	Mittelwert Messwerte MW in Bq/l	Anzahl Messwerte n	n/N in %	Mittelwert NWG in Bq/l
U-234	Nat	513	0,009	344	67%	0,009
U-235	Nat	538	0,003	87	16%	0,083
U-238	Nat	514	0,008	338	66%	0,015
Y-88		3	kein	0	0%	0,877
Y-92		3	kein	0	0%	1,44E+05
Y-93		3	kein	0	0%	238,033
Zn-65		12	kein	0	0%	3,434
Zr-95		12	kein	0	0%	2,444
Zr-97		3	kein	0	0%	8,634
Summe		25715				

* Legende zu „Typ“: AP – Aktivierungsprodukt, Nat - natürlich vorkommend, SP – Spaltprodukt, M – nuklearmedizinisch genutzt, TU – Transuran

* einige auch mehr – wird noch ergänzt

Quelle: Autoren

Tabelle 10-6: Übersicht über alle an den Proben der Jahre 2016 bis 2022 im Klärschlamm bestimmten Radionuklide

Radionuklid lt. IMIS	Typ*	Anzahl Messungen N	Mittelwert Messwerte in Bq/kg(TM)	Anzahl Messwerte n	n/N in %	Mittelwert NWG in Bq/kg(TM)
Ac-228	Nat	388	27,80	385	99%	3,50
Ag-110m		8	kein	0	0%	3,36
Ag-111		6	kein	0	0%	29,25
Am-241	TU	126	0,07	3	2%	2,86
Ba-133		3	kein	0	0%	2,64
Ba-140		5	kein	0	0%	14,08
Be-7	Nat	1858	252,36	1834	99%	5,73E+09
Bi-212	Nat	324	98,68	302	93%	8,10
Bi-214	Nat	382	7,73	381	100%	1,46
Cd-109		3	kein	0	0%	45,93
Ce-139	SP	3	kein	0	0%	1,91
Ce-141	SP	8	kein	0	0%	4,93
Ce-143	SP	6	kein	0	0%	6,51
Ce-144	SP	2632	kein	0	0%	5,98
Cm-242	TU	56	kein	0	0%	0,15
Cm-24344	TU	29	kein	0	0%	0,10
Cm-244	TU	27	kein	0	0%	0,13
Co-57	AP	9	0,12	1	11%	2,43
Co-58	AP	23	kein	0	0%	1,50
Co-60	AP	2854	0,80	20	1%	1,06
Cr-51	AP	10	5,75	2	20%	21,80
Cs-134	SP	2840	0,12	1	0%	1,06
Cs-136	SP	6	kein	0	0%	3,30
Cs-137	SP	2855	2,97	2081	73%	1,25
Eu-152	SP	6	kein	0	0%	6,22
Eu-154	SP	6	kein	0	0%	4,31
Eu-155	SP	6	kein	0	0%	7,44

Radionuklid lt. IMIS	Typ*	Anzahl Messungen N	Mittelwert Messwerte in Bq/kg(TM)	Anzahl Messwerte n	n/N in %	Mittelwert NWG in Bq/kg(TM)
Fe-59	AP	8	kein	0	0%	6,69
G-Alpha	--	12	93,17	12	100%	19,23
Hg-203		6	kein	0	0%	2,44
I-123		2	9,78	2	100%	6,06
I-125	SP-M	2	kein	0	0%	0,19
I-131	SP-M	2648	48,31	2313	87%	13,25
I-132		3	kein	0	0%	17,03
In-111	SP-M	259	2,97	41	16%	8,52
K-40	Nat	2855	163,50	2781	97%	19,25
Kr-85	SP / Nat	22	kein	0	0%	19,77
La-140		8	kein	0	0%	6,13
Lu-177	AP-M	262	192,48	243	93%	30,18
Lu-177m	AP-M	10	1,22	10	100%	0,59
Mn-54		23	kein	0	0%	1,57
Mo-99		6	kein	0	0%	12,59
Na-22		8	kein	0	0%	4,41
Nb-95		8	kein	0	0%	3,32
Nd-147		6	kein	0	0%	8,99
Np-239	TU	6	kein	0	0%	7,98
Pa-234m	Nat	18	87,02	18	100%	64,83
Pb-210	Nat	196	75,68	159	81%	58,56
Pb-212	Nat	391	8,10	388	99%	1,34
Pb-214	Nat	605	320,13	598	99%	2,90
Pm-151		6	kein	0	0%	12,38
Pu-236	TU	1	kein	0	0%	1,43
Pu-238	TU	439	0,23	16	4%	1,42
Pu-239	TU	33	kein	0	0%	0,46
Pu-23940	TU	406	0,13	35	9%	1,22
Ra-224		1	301,00	1		

Radionuklid lt. IMIS	Typ*	Anzahl Messungen N	Mittelwert Messwerte in Bq/kg(TM)	Anzahl Messwerte n	n/N in %	Mittelwert NWG in Bq/kg(TM)
Ra-226	Nat	146	29,55	140	96%	6,78
Ra-228	Nat	49	25,54	49	100%	5,93
Re-186		1	kein	0	0%	5,08
Ru-103	SP	2632	kein	0	0%	1,19
Ru-106	SP	73	kein	0	0%	11,28
Sb-124		23	kein	0	0%	2,84
Sb-125		8	kein	0	0%	9,78
Sb-127		6	kein	0	0%	8,33
Sb-129		6	kein	0	0%	44,70
Se-75		11	0,96	5	45%	1,91
Sm-153	SP	4	34,90	4	100%	4,71
Sn-113		3	kein	0	0%	2,48
Sr-85		6	kein	0	0%	3,27
Sr-90	SP	415	1,78	357	86%	1,01
Tc-99m	SP-M	47	568,46	41	87%	69,28
Te-123m		9	0,15	1	11%	2,23
Te-129		3	kein	0	0%	1005,67
Te-129m		6	kein	0	0%	302,67
Te-131m		6	kein	0	0%	8,56
Te-132	SP	72	kein	0	0%	1,12
Th-228	Nat	48	9,15	48	100%	2,35
Th-230	Nat	1	9,01	1		0,11
Th-232	Nat	13	17,94	9	69%	6,12
Tl-201	AP-M	216	kein	0	0%	449,04
Tl-202	AP-M	231	kein	0	0%	0,54
Tl-208	Nat	269	4,61	266	99%	1,32
U-234	Nat	464	61,93	462	100%	0,75
U-235	Nat	604	3,03	480	79%	1,56
U-238	Nat	577	49,63	575	100%	3,28

Radionuklid lt. IMIS	Typ*	Anzahl Messungen N	Mittelwert Messwerte in Bq/kg(TM)	Anzahl Messwerte n	n/N in %	Mittelwert NWG in Bq/kg(TM)
Y-88		6	kein	0	0%	2,71
Zn-65		8	kein	0	0%	7,78
Zr-95		10	0,68	2	20%	4,90
Summe		28702				

* Legende zu „Typ“: AP – Aktivierungsprodukt, Nat - natürlich vorkommend, SP – Spaltprodukt, M – nuklearmedizinisch genutzt, TU – Transuran

Quelle: Autoren

Tabelle 10-7: Anzahl der Datensätze N, davon n mit Messergebnis und Mittelwerte (MW) von natürlich vorkommenden Radionukliden im Abwasser

MST/Labor	N	n	MW	N	n	MW	N	n	MW
	Be-7	Be-7	Be-7 (mBq/l)	H-3	H-3	H-3 (Bq/l)	K-40	K-40	K-40 (Bq/l)
BB-MST1-Oranienburg	0	--	--	0	--	--	133	123	0,95
BB-MST2-FrankfurtOder	0	--	--	0	--	--	153	23	1,91
BE-MST1-Berlin	3	--	--	0	--	--	123	112	1,02
BW-MST1-Karlsruhe	0	--	--	1	--	--	388	343	0,47
BY-KTA-Erlangen_Framatome	0	--	--	4	--	--	4	4	0,85
BY-MST3-Augsburg	0	--	--	23	--	--	194	53	1,17
BY-MST7-Kulmbach	0	--	--	12	--	--	109	2	1,05
BY-MST-Regensburg	0	--	--	0	--	--	28	28	0,50
HB-MST1-Bremen	49	--	--	0	--	--	58	36	0,94
HE-MST2-Kassel	0	--	--	0	--	--	142	36	0,58
HH-MST1-Hamburg	0	--	--	29	27	1,86	31	6	1,45
MV-KTA-Lubmin	0	--	--	0	--	--	15	1	0,73
MV-MST1-Stralsund	121	13	165	1	--	--	149	146	0,85
NI-MST2-Hildesheim	0	--	--	0	--	--	328	224	0,71
NW-MST1-Duisburg	60	--	--	0	--	--	88	10	1,28
NW-MST2-Düsseldorf	57	--	--	0	--	--	57	31	1,08
NW-MST3-Dortmund	28	1	386	0	--	--	59	10	2,65
NW-MST4-Detmold	58	--	--	0	--	--	58	21	1,05
NW-MST5-Münster	30	--	--	0	--	--	30	8	1,38
RP-MST4-Mainz	0	--	--	35	9	3,18	140	118	1,01
SH-MST1-Kiel	144	--	--	0	--	--	144	31	2,09
SL-MST1-Saarbrücken	17	4	90	0	--	--	57	46	0,68
SN-MST1-Radebeul	0	--	--	0	--	--	89	48	1,12
SN-MST2-Chemnitz	0	--	--	0	--	--	58	19	0,89
ST-MST1-HalleSaale	0	--	--	0	--	--	114	92	0,80

MST/Labor	N	n	MW	N	n	MW	N	n	MW
	Be-7	Be-7	Be-7 (mBq/l)	H-3	H-3	H-3 (Bq/l)	K-40	K-40	K-40 (Bq/l)
ST-MST2-Osterburg	0	--	--	0	--	--	30	23	0,59
TH-MST1-Jena	0	--	--	0	--	--	116	22	1,31
TH-MST2-Gera	0	--	--	0	--	--	27	1	1,56
Summe	567	18		105	36		2922	1617	

Quelle: Autoren

Tabelle 10-8: Anzahl der Datensätze N, davon n mit Messergebnis und Mittelwerte (MW) von Fallout-Radionukliden im Abwasser

MST/Labor	N	n	MW	N	n	MW	N	n	MW
	Cs-137	Cs-137	Cs-137 (mBq/l)	Pu-23940	Pu-23940	Pu-23940 (mBq/l)	Sr-90	Sr-90	Sr-90 (mBq/l)
BB-MST1-Oranienburg	133	--	--	18	1	0,65	23	19	2,17
BB-MST2-FrankfurtOder	153	--	--	19	1	0,32	24	15	1,37
BE-MST1-Berlin	123	3	2	56	--	--	53	53	2,72
BW-MST1-Karlsruhe	388	--	--	21	--	--	24	2	2,27
BY-KTA-Erlangen_Framatome	4	--	--	0	--	--	0	--	--
BY-MST3-Augsburg	194	1	54	21	4	1,95	20	14	7,81
BY-MST7-Kulmbach	109	--	--	8	--	--	6	5	39,38
BY-MST-Regensburg	28	--	--	28	1	0,94	0	--	--
HB-MST1-Bremen	58	--	--	23	--	--	19	4	28,18
HE-MST2-Kassel	142	1	25	27	--	--	28	14	13,49
HH-MST1-Hamburg	31	1	23	27	4	0,03	28	19	4,63
MV-KTA-Lubmin	15	--	--	0	--	--	0	--	--
MV-MST1-Stralsund	149	--	--	27	--	--	27	8	8,83
NI-MST2-Hildesheim	328	--	--	0	--	--	31	14	11,21
NW-MST1-Duisburg	88	--	--	0	--	--	0	--	--
NW-MST2-Düsseldorf	57	--	--	12	--	--	11	5	11,40
NW-MST3-Dortmund	59	--	--	15	1	4,75	15	10	67,29*
NW-MST4-Detmold	58	1	65	0	--	--	0	--	--
NW-MST5-Münster	30	1	157	1	--	--	1	--	--
RP-MST4-Mainz	140	--	--	15	--	--	27	25	2,66

MST/Labor	N	n	MW	N	n	MW	N	n	MW
	Cs-137	Cs-137	Cs-137 (mBq/l)	Pu- 23940	Pu- 23940	Pu- 23940 (mBq/l)	Sr-90	Sr-90	Sr-90 (mBq/l)
SH-MST1-Kiel	144	--	--	28	--	--	28	--	--
SL-MST1-Saarbrücken	57	1	2	26	--	--	26	6	21,72
SN-MST1-Radebeul	89	--	--	29	--	--	28	8	11,38
SN-MST2-Chemnitz	58	1	92	0	--	--	0	--	--
ST-MST1-HalleSaale	114	--	--	28	--	--	28	10	14,99
ST-MST2-Osterburg	30	--	--	0	--	--	0	--	--
TH-MST1-Jena	116	--	--	28	--	--	28	--	--
TH-MST2-Gera	27	--	--	0	--	--	0	--	--
Summe	2922	10		457	12		475	231	

*Verifizierung des Wertes steht noch aus

Quelle: Autoren

Tabelle 10-9: Anzahl der Datensätze N, davon n mit Messergebnis und Mittelwerte (MW) von nuklearmedizinischen Radionukliden

MST/Labor	N	n	MW	N	n	MW	N	n	MW
	I-131	I-131	I-131 (mBq/l)	Lu-177	Lu-177	Lu-177 (mBq/l)	Tc-99m	Tc-99m	Tc-99m (mBq/l)
BB-MST1-Oranienburg	143	37	268	13	7	3360	0	--	--
BB-MST2-FrankfurtOder	153	71	444	9	2	1903	0	--	--
BE-MST1-Berlin	176	62	100	3	3	734	0	--	--
BW-MST1-Karlsruhe	151	25	111	26	25	10459	0	--	--
BY-KTA-Erlangen_Framatome	0	--	--	0	--	--	0	--	--
BY-MST3-Augsburg	189	39	299	0	--	--	1	1	2797
BY-MST7-Kulmbach	104	7	249	0	--	--	0	--	--
BY-MST-Regensburg	15	15	80	0	--	--	0	--	--
HB-MST1-Bremen	58	41	181	18	18	9497	8	8	191535
HE-MST2-Kassel	142	22	124	0	--	--	0	--	--
HH-MST1-Hamburg	31	28	165	0	--	--	14	14	11255
MV-KTA-Lubmin	14	2	122	0	--	--	0	--	--
MV-MST1-Stralsund	144	47	101	0	--	--	0	--	--
NI-MST2-Hildesheim	329	109	110	0	--	--	0	--	--
NW-MST1-Duisburg	84	5	126	0	--	--	7	--	--
NW-MST2-Düsseldorf	56	17	165	0	--	--	3	--	--
NW-MST3-Dortmund	59	15	177	0	--	--	0	--	--
NW-MST4-Detmold	58	16	283	0	--	--	0	--	--
NW-MST5-Münster	30	23	229	0	--	--	0	--	--
RP-MST4-Mainz	140	68	115	0	--	--	0	--	--

MST/Labor	N	n	MW	N	n	MW	N	n	MW
	I-131	I-131	I-131 (mBq/l)	Lu-177	Lu-177	Lu-177 (mBq/l)	Tc-99m	Tc-99m	Tc-99m (mBq/l)
SH-MST1-Kiel	144	31	458	0	--	--	0	--	--
SL-MST1-Saarbrücken	57	14	201	0	--	--	0	--	--
SN-MST1-Radebeul	89	32	141	0	--	--	0	--	--
SN-MST2-Chemnitz	58	9	180	0	--	--	0	--	--
ST-MST1-HalleSaale	114	65	71	0	--	--	9	9	1822
ST-MST2-Osterburg	30	6	24	0	--	--	0	--	--
TH-MST1-Jena	116	21	257	0	--	--	0	--	--
TH-MST2-Gera	27	4	149,8	0	--	--	0	--	--
Summe	2711	831		69	55		42	32	

Quelle: Autoren

Anhang II. Übersicht über nuklearmedizinisch genutzte Radionuklide

Tabelle 10-10: Reaktorproduzierte Radionuklide

Radionuklid	HWZ	Anwendungsgebiet
Bi-213	46 min	Gezielte Alphatherapie (TAT), insbesondere bei Krebserkrankungen
Cs-131	9,7 d	Brachytherapie verwendet, sendet weiche Röntgenstrahlen aus.
Cs-137	30 a	Wird für die Sterilisation von Blut mit geringer Intensität und in der Brachytherapie verwendet.
Cr-51	28 d	Wird zur Kennzeichnung roter Blutkörperchen für die Überwachung und zur Quantifizierung von Proteinverlusten oder Blutungen im Magen-Darm-Trakt verwendet.
Co-60	5,27 a	Wurde früher für die externe Strahlentherapie verwendet, heute wird es fast ausschließlich zur Sterilisation eingesetzt. Co-60 mit hoher spezifischer Aktivität (HSA) wird für die Behandlung von Hirntumoren verwendet.
Dy-165	(2 h)	Wird als aggregiertes Hydroxid für die Synovektomie-Behandlung von Arthritis verwendet.
Er-169	(9,4 d)	Wird zur Linderung von Arthritisschmerzen in Synovialgelenken verwendet.
Ho-166	26 h	Wird für die Diagnose und Behandlung von Lebertumoren entwickelt. Wird als Mikrokügelchen verabreicht.
I-125	60 d	Wird in der Krebsbrachytherapie (Prostata und Gehirn) eingesetzt, aber auch diagnostisch zur Beurteilung der Filtrationsrate der Nieren und zur Diagnose von tiefen Beinvenenthrombosen. Es wird auch häufig in Radioimmuno-Assays verwendet, um das Vorhandensein von Hormonen in winzigen Mengen nachzuweisen.
I-131	8 d*	Weit verbreitet in der Behandlung von Schilddrüsenkrebs und in der Bildgebung der Schilddrüse; außerdem in der Diagnose von Leberfunktionsstörungen, Nierendurchblutung und Harnwegsobstruktionen. Ein starker Gammastrahler, der jedoch für die Betastrahlung verwendet wird.
Ir-192	74 d	Wird in Form von Drähten zur Verwendung als interne Strahlenquelle für die Krebsbehandlung geliefert (wird eingesetzt und dann entfernt), z. B. bei Prostatakrebs. Starker Betastrahler für die Brachytherapie mit hoher Dosisleistung.
Fe-59	46 d	Wird in Studien über den Eisenstoffwechsel in der Milz verwendet.
Pb-212	10,6 h	Wird für die TAT bei Krebserkrankungen oder die Alpha-Radioimmuntherapie verwendet, wobei die Zerfallsprodukte Bi-212 (1 h) und Po-212 (0,3 µs) die Alphateilchen liefern. Wird insbesondere bei Melanomen, Brustkrebs und Eierstockkrebs eingesetzt. Die Nachfrage ist steigend. Wird in der Peptidrezeptor-Radionuklidtherapie (PRRT) verwendet.
Lu-177	6,7 d	Lu-177 gewinnt zunehmend an Bedeutung, da es gerade genug Gammastrahlung für die Bildgebung abgibt, während die Betastrahlung die Therapie kleiner (z. B. endokriner) Tumore übernimmt. Seine Halbwertszeit ist lang genug, um eine ausgeklügelte Vorbereitung für den Einsatz zu ermöglichen. Es wird in der Regel durch Neutronenaktivierung von natürlichen oder angereicherten Lutetium-176-Targets oder indirekt durch Neutronenbestrahlung von Yb-176 erzeugt.
Mo-99	66 h*	Wird als "Elternteil" in einem Generator zur Herstellung von Technetium-99m verwendet.
Pd-103	17 d	Wird zur Herstellung von Brachytherapie-Dauerimplantaten für Prostatakrebs im Frühstadium verwendet. Sendet weiche Röntgenstrahlen aus.
P-32	14 d	Wird bei der Behandlung von Polycythemia vera (übermäßige rote Blutkörperchen) verwendet. Betastrahler.
K-42	12 h	Wird für die Bestimmung von austauschbarem Kalium im koronaren Blutfluss verwendet.
Ra-223	11,4 d	Wird für die TAT-Brachytherapie verwendet, lagert sich im Knochen ein und sendet weiche Röntgenstrahlen aus.

Radionuklid	HWZ	Anwendungsgebiet
Re-186	3,8 d	Wird zur Schmerzlinderung bei Knochenkrebs verwendet. Beta-Strahler mit schwacher Gammastrahlung für die Bildgebung.
Re-188	17 h	Wird zur Beta-Bestrahlung von Koronararterien durch einen Angioplastie-Ballon verwendet.
Sm-153	47 h	Sm-153 ist sehr wirksam bei der Linderung von Schmerzen bei sekundären Krebserkrankungen, die sich im Knochen festgesetzt haben; wird als Quadramet verkauft. Auch sehr wirksam bei Prostata- und Brustkrebs. Beta-Strahler.
Sc-47	4,5 d	Sc-47 hat ähnliche Eigenschaften wie Lu-177 und kann zur Therapie oder Diagnose eingesetzt werden. Es wird durch Bestrahlung von Calcium-46 erzeugt, wobei Ca-47 entsteht, das zu Sc-47 zerfällt.
Se-75	120 d	Wird in Form von Seleno-Methionin verwendet, um die Produktion von Verdauungsenzymen zu untersuchen.
Na-24	15 h	Für Untersuchungen der Elektrolyte im Körper.
Sr-89	50 d*	Sehr wirksam bei der Linderung der Schmerzen von Prostata- und Knochenkrebs. Beta-Strahler.
Tc-99m	6 h	Wird insbesondere zur Darstellung des Skeletts und des Herzmuskels verwendet, aber auch für Gehirn, Schilddrüse, Lunge (Durchblutung und Belüftung), Leber, Milz, Niere (Struktur und Filtrationsrate), Gallenblase, Knochenmark, Speichel- und Tränendrüsen, Herzblutgefäß, Infektionen und zahlreiche medizinische Spezialuntersuchungen. Wird in einem Generator aus Mo-99 hergestellt. Das häufigste Radioisotop für die Diagnose, das über 80 % der Scans ausmacht.
Th-227	18,7 d	Wird für TAT verwendet, zerfällt zu Ra-223.
Xe-133	5 d*	Wird für Untersuchungen der Lungenbelüftung verwendet.
Yb-169	32 d	Wird für Liquoruntersuchungen im Gehirn verwendet.
Yb-177	1,9 h	Mutternuklid von Lu-177, hergestellt durch Neutronenbestrahlung von Yb-176.
Y-90	64 h*	Wird für die Krebsbrachytherapie und als Silikatkolloid zur Schmerzlinderung bei Arthritis in größeren Synovialgelenken verwendet. Reiner Betastrahler und von wachsender Bedeutung in der Therapie, insbesondere bei Leberkrebs.

Quelle: Modifiziert nach (WNA, 2023)

Tabelle 10-11: Zyklotron-Radioisotope

Radionuklid	HWZ	Anwendungsgebiet
Ac-225	10 d	Wird für TAT verwendet, insbesondere bei Prostatakrebs.
As-211	7,2 h	Verwendung für TAT.
Bi-213	46 min	Wird für TAT verwendet.
C-11, N-13, O-15, F-18	< 1 h	Diese Positronenstrahler werden in der PET zur Untersuchung der Gehirnfysiologie und -pathologie eingesetzt, insbesondere zur Lokalisierung von epileptischen Herden sowie bei Demenz-, Psychiatrie- und Neuropathologiestudien. Auch in der Kardiologie spielen sie eine wichtige Rolle. F-18 in FDG (Fluorodesoxyglukose) ist sehr wichtig für die Erkennung von Krebserkrankungen und die Überwachung des Fortschritts ihrer Behandlung mit Hilfe der PET geworden.
Co-57	272 d	Wird als Marker zur Schätzung der Organgröße und für In-vitro-Diagnosekits verwendet.
Cu-64	13 h	Wird zur Untersuchung genetischer Krankheiten, die den Kupferstoffwechsel beeinträchtigen, wie z. B. die Wilson-Krankheit und die Menke-Krankheit, für die PET-Bildgebung von Tumoren und für die Krebstherapie verwendet.
Cu-67	2,6 d	Betastrahler, wird in der Therapie eingesetzt.
F-18	110 min	als FLT (Fluorothymidin), F-miso (Fluoromisonidazol), 18F-Cholin: Es zerfällt mit Positronenemission und wird daher als Tracer mit PET zur Darstellung bösartiger Tumore verwendet.

Radionuklid	HWZ	Anwendungsgebiet
Ga-67	78 h	Wird für die Tumordarstellung und die Lokalisierung von entzündlichen Läsionen (Infektionen) verwendet.
Ga-68	68 min	Positronenstrahler, der in PET- und PET-CT-Geräten verwendet wird. Wird in einem Generator aus Germanium-68 gewonnen.
Ge-68	271 d	Wird als Ausgangsstoff in einem Generator zur Herstellung von Ga-68 verwendet.
In-111	2,8 d	Wird für spezielle diagnostische Untersuchungen verwendet, z. B. Gehirnuntersuchungen, Infektionen und Darmtransituntersuchungen. Auch zur Lokalisierung von Blutgerinnseln, Entzündungen und seltenen Krebsarten.
I-123	13 h	Es wird zunehmend zur Diagnose der Schilddrüsenfunktion verwendet und ist ein Gammastrahler ohne die Betastrahlung von I-131.
I-124	4,2 d	Tracer, mit längerer Lebensdauer als F-18, ein Viertel der Zerfälle sind Positronenemissionen, daher Verwendung mit PET. Wird auch zur Darstellung der Schilddrüse mit PET verwendet.
Kr-81m	13 Sekunden	aus Rubidium-81 (4,6 Stunden); Mit Kr-81m-Gas lassen sich funktionelle Bilder der Lungenbelüftung erstellen, z. B. bei Asthmapatienten, und für die Frühdiagnose von Lungenerkrankungen und -funktionen.
Rb-82	1,26 min	Praktisches PET-Mittel für die Herzmuskelperfusionsbildgebung.
Sr-82	25 d	Wird als Ausgangsstoff in einem Generator zur Herstellung von Rb-82 verwendet.
Tl-201	73 h	Wird zur Diagnose koronarer Herzkrankheiten, anderer Herzerkrankungen wie Herzmuskeltod und zur Lokalisierung von niedriggradigen Lymphomen verwendet. Es ist der am häufigsten verwendete Ersatz für Technetium-99 bei Herzbelastungstests.

Quelle: (WNA, 2023)

Anhang III. Dosisabschätzungen

Tabelle 10-12: Berechnung der äußeren Exposition im Normalbetrieb

Radionuklid	Berücksichtigte Tochter-nuklide	DK (EPA, 2019) ($\mu\text{Sv/h}$)/(Bq/g)	DK (Brenk, 2012) ($\mu\text{Sv/h}$)/(Bq/g)	DK (Max) ($\mu\text{Sv/h}$)/(Bq/g)	C Bq/kg	E _{ext} $\mu\text{Sv/a}$
Ac-228		0,155	0,163	0,163	27,98	4,56
Ag-110m	Ag110	0,499	0,487	0,499	1,68	0,84
Ag-111		0,004	0,004	0,004	14,63	0,06
Am-241		0,001	0,001	0,001	4,53	0,006
Ba-133		0,056	0,052	0,056	1,32	0,07
Ba-140		0,029	0,344	0,344	7,04	2,42
Be-7		0,008	0,008	0,008	251,85	2,09
Bi-212	Po12+Tl08	0,020	0,228	0,228	101,02	23,07
Bi-214	Po14+Tl10	0,282	0,148	0,282	7,79	2,19
Cd-109	Ag109m	0,001	0,001	0,001	22,97	0,02
Ce-139		0,018	0,016	0,018	0,96	0,02
Ce-141		0,009	0,008	0,009	2,47	0,02
Ce-143		0,042	0,039	0,042	3,25	0,14
Ce-144	Pr-144m+Pr-144	0,010	0,013	0,013	17,49	0,23
Cm-242		0,000	0,000	0,000	0,00	0,000
Cm-24344		0,017	0,015	0,017	0,00	0,000
Co-57		0,014	0,013	0,014	0,12	0,002
Co-58		0,172	0,170	0,172	1,66	0,29
Co-60		0,475	0,465	0,475	0,12	0,06
Cr-51		0,005	0,005	0,005	5,75	0,03
Cs-134		0,272	0,269	0,272	0,12	0,03
Cs-136		0,381	0,379	0,381	1,65	0,63
Cs-137	Ba137m	0,098	0,102	0,102	3,00	0,31
Eu-152		0,207	0,198	0,207	3,11	0,64
Eu-154		0,225	0,221	0,225	2,16	0,48
Eu-155		0,005	0,004	0,005	3,72	0,02
Fe-59		0,223	0,219	0,223	3,35	0,75

Radionuklid	Berücksichtigte Tochterneuklide	DK (EPA, 2019) ($\mu\text{Sv/h}$)/(Bq/g)	DK (Brenk, 2012) ($\mu\text{Sv/h}$)/(Bq/g)	DK (Max) ($\mu\text{Sv/h}$)/(Bq/g)	C Bq/kg	E _{ext} $\mu\text{Sv/a}$
Hg-203		0,036	0,032	0,036	1,22	0,04
I-123		0,020	0,019	0,020	9,78	0,20
I-125		0,000	0,000	0,000	0,00	0,00
I-131		0,062	0,059	0,062	48,47	2,99
I-132		0,404	0,402	0,404	8,52	3,44
In-111	Cd-111m	0,056	0,052	0,056	2,97	0,17
K-40		0,031	0,029	0,031	164,81	5,08
La-140		0,440	0,427	0,440	3,07	1,35
Lu-177		0,005	0,004	0,005	194,88	0,88
Lu-177m	Hf-177m + Lu-177	0,405	0,235	0,405	1,22	0,49
Mn-54		0,149	0,148	0,149	1,68	0,25
Mo-99	Tc-99m	0,037	0,046	0,046	6,29	0,29
Na-22		0,396	0,389	0,396	2,20	0,87
Nb-95		0,135	0,134	0,135	1,66	0,22
Nd-147		0,019	0,018	0,019	4,50	0,09
Np-239		0,023	0,020	0,023	3,99	0,09
Pa-234m		0,004	0,002	0,004	87,07	0,34
Pb-210	Bi-210+Po-210	0,000	0,000	0,000	76,03	0,02
Pb-212	Bi12+Po12+Tl08	0,224	0,580	0,580	8,04	4,66
Pb-214	Bi14+Po14+Tl10	0,158	0,158	0,158	324,37	51,24
Pm-151		0,051	0,048	0,051	6,19	0,31
Pu-236		0,000	0,010	0,010	0,00	0,00
Pu-238		0,000	0,000	0,000	0,23	0,00
Pu-239	U-235m	0,000	0,000	0,000	0,00	0,00
Pu-240		0,000	0,000	0,000	0,13	0,00
Ra-224	Rn-220+Po-216+Pb-212+Bi-212+Po-212+Tl-208	0,211	0,718	0,718	301,00	216,21

Radionuklid	Berücksichtigte Tochternuklide	DK (EPA, 2019) ($\mu\text{Sv/h}$)/(Bq/g)	DK (Brenk, 2012) ($\mu\text{Sv/h}$)/(Bq/g)	DK (Max) ($\mu\text{Sv/h}$)/(Bq/g)	C Bq/kg	E _{ext} $\mu\text{Sv/a}$
Ra-226	Rn-222+Po-218+ Pb-214+Bi- 124+Po-214	0,321	0,430	0,430	29,41	12,64
Ra-228	Ac28	0,155	0,489	0,489	25,54	12,49
Re-186		0,002	0,002	0,002	0,00	0,000
Ru-103	Rh-103m	0,083	0,080	0,083	2,44	0,20
Ru-106	Rh-106	0,038	0,045	0,045	14,97	0,67
Sb-124		0,348	0,341	0,348	3,36	1,17
Sb-125	Te-125m	0,071	0,069	0,071	4,89	0,35
Sb-127	Te-127	0,119	0,117	0,119	4,16	0,50
Sb-129	Te-129	0,272	0,255	0,272	22,35	6,09
Se-75		0,056	0,053	0,056	0,96	0,05
Sm-153		0,005	0,004	0,005	34,89	0,16
Sn-113	In-113m	0,042	0,080	0,080	1,24	0,10
Sr-85		0,082	0,085	0,085	1,64	0,14
Sr-90	Y-90	0,001	0,000	0,001	1,82	0,00
Tc-99m		0,016	0,014	0,016	580,79	9,27
Te-123		0,000	0,000	0,000	0,15	0,00
Te-129		0,010	0,009	0,010	502,83	5,07
Te-129m	Te-129	0,005	0,011	0,011	151,33	1,66
Te-131m	Te-131	0,259	0,270	0,270	4,28	1,16
Te-132	I-132	0,031	0,390	0,390	1,19	0,46
Th-228	Ra-224+Rn- 220+Po-216 +Pb- 212+Bi-212 +Po-212+Tl-208	0,275	1,141	1,141	9,15	10,44
Th-230		0,000	0,008	0,008	9,01	0,07
Th-232	Ra-228+Ac- 228+Th-228+ Ra-224+Rn- 220+Po-216 +Pb- 212+Bi-212 +Po-212+Tl-208	0,438	2,099	2,099	17,94	37,65
Tl-201		0,008	0,007	0,008	8,46	0,07

Radionuklid	Berücksichtigte Tochter-nuklide	DK (EPA, 2019) ($\mu\text{Sv/h}$)/(Bq/g)	DK (Brenk, 2012) ($\mu\text{Sv/h}$)/(Bq/g)	DK (Max) ($\mu\text{Sv/h}$)/(Bq/g)	C Bq/kg	E _{ext} $\mu\text{Sv/a}$
Tl-202		0,071	0,069	0,071	1,25	0,09
Tl-208		0,674	0,638	0,674	4,63	3,12
U-234		0,000	0,000	0,000	49,49	0,00
U-235	Th-231	0,023	0,020	0,023	2,57	0,06
U-238	Th-234+Pa-234m+Pa-234	0,005	0,009	0,009	43,64	0,37
Y-88		0,523	0,506	0,523	1,36	0,71
Zn-65		0,108	0,106	0,108	3,89	0,42
Zr-95	Nb-95m+Nb-95	0,194	0,258	0,258	0,68	0,18

Quelle: Autoren

Tabelle 10-13: Berechnung der Inhalationsdosis im Normalbetrieb. Leere Felder: Keine Daten vorhanden

Radionuklid	Lungen-abs. Klasse	DK(Arbeiter) $\mu\text{Sv/Bq}$	C Bq/kg	E _{inh} $\mu\text{Sv/a}$
Ac-228	F	0,042	27,979	0,0014
Ag-110m	M	0,007		
Ag-111	M	0,002		
Am-241	M	27,000	1,138	0,0369
Ba-133	M	0,002		
Ba-140	M	0,003		
Be-7	S	0,00005	251,854	0,0000
Bi-212	M	0,039	101,025	0,0047
Bi-214	M	0,021	7,790	0,0002
Cd-109	F	0,010		
Ce-139	M	0,001		
Ce-141	M	0,003		
Ce-143	M	0,001		
Ce-144	M	0,029	2,493	0,0001

Radionuklid	Lungen-abs. Klasse	DK(Arbeiter)	C	Einh
		µSv/Bq	Bq/kg	µSv/a
Cm-242	M	3,850	0,037	0,0002
Cm-243	M	20,000	0,051	0,0012
Cm-244	M	17,100		
Co-57	M	0,001	0,120	0,0000
Co-58	M	0,002	0,165	0,0000
Co-60	M	0,017	0,119	0,0000
Cr-51	S	0,000	5,750	0,0000
Cs-134	F	0,010	0,120	0,0000
Cs-136	F	0,002		
Cs-137	F	0,007	2,998	0,0000
Eu-152	M	0,027		
Eu-154	M	0,035		
Eu-155	M	0,005		
Fe-59	M	0,003		
Hg-203	M	0,001		
I-123	F	0,000	9,775	0,0000
I-125	F	0,007	0,097	0,0000
I-131	F	0,011	48,473	0,0006
I-132	F	0,000	0,000	
In-111	M	0,000	2,971	0,0000
K-40	F	0,003	164,814	0,0006
La-140	M	0,002	0,000	
Lu-177	S	0,001	194,884	0,0003
Lu-177m	S	0,012	1,222	0,0000
Mn-54	M	0,001	0,213	0,0000
Mo-99	M	0,001		
Na-22	F	0,002		
Nb-95	M	0,001		
Nd-147	S	0,002		
Np-239	M	0,001		

Radionuklid	Lungen-abs. Klasse	DK(Arbeiter)	C	Einh
		µSv/Bq	Bq/kg	µSv/a
Pa-234m	0	0,000	87,067	0,0000
Pb-210	M	3,210	76,032	0,2929
Pb-212	M	0,064	8,038	0,0006
Pb-214	M	0,014	324,368	0,0053
Pm-151	S	0,001	0,000	
Pu-236	M	15,100	0,715	0,0130
Pu-238	M	30,000	0,230	0,0083
Pu-239	M	32,000	0,231	0,0089
Pu-240	M	32,000	0,131	0,0050
Ra-224	M	2,450	301,000	0,8849
Ra-226	M	5,340	29,408	0,1884
Ra-228	M	21,700	25,541	0,6651
Re-186	M	0,001	2,540	0,0000
Ru-103	M	0,002	0,536	0,0000
Ru-106	M	0,035	4,491	0,0002
Sb-124	M	0,002	0,175	0,0000
Sb-125	M	0,002		0,0000
Sb-127	M	0,001		0,0000
Sb-129	M	0,000		0,0000
Se-75	M	0,001	0,956	0,0000
Sm-153	M	0,001	34,890	0,0000
Sn-113	M	0,002	0,000	0,0000
Sr-85	M	0,001	0,000	0,0000
Sr-90	M	0,079	1,824	0,0002
Tc-99m	M	0,000	580,792	0,0000
Te-123m	M	0,001	0,147	0,0000
Te-129	M	0,000	0,000	0,0000
Te-129m	M	0,002	0,000	0,0000
Te-131m	M	0,002	0,000	0,0000

Radionuklid	Lungen-abs. Klasse	DK(Arbeiter)	C	Einh
		µSv/Bq	Bq/kg	µSv/a
Te-132	M	0,003	0,504	0,0000
Th-228	S	34,400	9,150	0,3777
Th-230	S	7,390	9,010	0,0799
Th-232	S	48,200	17,937	1,0375
Tl-201	F	0,000	273,867	0,0000
Tl-202	F	0,000	0,166	0,0000
Tl-208	O	0,000	4,627	0,0000
U-234	M	6,860	49,490	0,4074
U-235	M	7,250	2,575	0,0224
U-238	M	5,710	43,644	0,2990
Y-88	S	0,003	0,000	
Zn-65	M	0,003	0,000	
Zr-95	M	0,004	0,680	0,0000

Quelle: Autoren

Tabelle 10-14: Berechnung der äußeren Exposition im Ereignisfall

	Halbwertszeit	DK(Max)	C	Eext
	Tage	µSv/h je Bq/g	Bq/kg	µSv
Ac-228	0,26	0,163	0,000	0,0000
Ag-110m	249,80	0,499	6,637	0,0004
Ag-111	7,50	0,004	36,853	0,0000
Am-241	1,58E+05	0,001	18,122	0,0000
Ba-133	3,84E+03	0,056	5,269	0,0000
Ba-140	12,80	0,344	21,490	0,0009
Be-7	53,20	0,00829	105,526	0,0001
Bi-212	0,04	0,228		0,0000
Bi-214	0,01	0,282		0,0000
Cd-109	462,60	0,001	91,181	0,0000
Ce-139	137,60	0,018	3,725	0,0000
Ce-141	32,50	0,009	8,872	0,0000
Ce-143	1,38	0,042	1,047	0,0000
Ce-144	285,00	0,013	69,113	0,0001
Cm-242	162,90	0,000		0,0000
Cm-243	1,10E+04	0,017		0,0000

	Halbwertszeit	DK(Max)	C	Eext
	Tage	µSv/h je Bq/g	Bq/kg	µSv
Cm-244	6,57E+03	0,000		0,0000
Co-57	271,80	0,014	5,344	0,0000
Co-58	70,90	0,172	6,338	0,0001
Co-60	1,94E+03	0,475	11,635	0,0007
Cr-51	27,70	0,005	46,701	0,0000
Cs-134	767,03	0,272	10,864	0,0004
Cs-136	13,00	0,381	5,053	0,0002
Cs-137	1,10E+04	0,102	14,176	0,0002
Eu-152	4,93E+03	0,207	12,428	0,0003
Eu-154	3,14E+03	0,225	8,610	0,0002
Eu-155	1,75E+03	0,005	14,844	0,0000
Fe-59	44,50	0,223	12,389	0,0003
Hg-203	46,60	0,036	4,533	0,0000
I-123	0,55	0,020		0,0000
I-125	59,40	0,000		0,0000
I-131	8,00	0,062	8,853	0,0001
I-132	0,10	0,404	0,000	0,0000
In-111	2,80	0,056	1,149	0,0000
K-40	4,75E+11	0,031	215,359	0,0008
La-140	1,68	0,440	1,557	0,0001
Lu-177	6,60	0,005	26,290	0,0000
Lu-177m	160,30	0,405		0,0000
Mn-54	312,10	0,149	6,639	0,0001
Mo-99	2,75	0,046	7,126	0,0000
Na-22	949,65	0,396	8,783	0,0004
Nb-95	35,00	0,135	6,009	0,0001
Nd-147	11,00	0,019	13,126	0,0000
Np-239	2,40	0,023	3,765	0,0000
Pa-234m	0,28	0,004		0,0000
Pb-210	8,11E+03	0,000	735,685	0,0000
Pb-212	0,44	0,580	0,012	0,0000
Pb-214	0,02	0,158		0,0000
Pm-151	28,40	0,051	21,919	0,0001
Pu-236	1,06E+03	0,010		0,0000
Pu-238	3,20E+04	0,000		0,0000
Pu-239	8,77E+06	0,000		0,0000
Pu-240	2,41E+06	0,000		0,0000
Ra-224	3,60	0,718		0,0000
Ra-226	5,84E+05	0,430	67,613	0,0035
Ra-228	2,12E+03	0,489		0,0000
Re-186	3,75	0,002		0,0000

	Halbwertszeit	DK(Max)	C	Eext
	Tage	µSv/h je Bq/g	Bq/kg	µSv
Ru-103	39,30	0,083	8,950	0,0001
Ru-106	372,60	0,045	59,321	0,0003
Sb-124	60,20	0,348	12,699	0,0005
Sb-125	1,02E+03	0,071	19,491	0,0002
Sb-127	3,90	0,119	6,849	0,0001
Sb-129	0,18	0,272	0,000	0,0000
Se-75	119,60	0,056	5,855	0,0000
Sm-153	1,93	0,005		0,0000
Sn-113	115,10	0,080	4,806	0,0000
Sr-85	64,80	0,085	6,199	0,0001
Sr-90	1,05E+04	0,001	0,000	0,0000
Tc-99m	6,00	0,016	9,905	0,0000
Te-123m	119,50	0,000	4,826	0,0000
Te-129	0,05	0,010	0,000	0,0000
Te-129m	33,60	0,011	546,007	0,0007
Te-131m	30,00	0,270	15,246	0,0005
Te-132	76,30	0,390	4,533	0,0002
Th-228	693,98	1,141		0,0000
Th-230	2,74E+07	0,008		0,0000
Th-232	5,11E+12	2,099	16,073	0,0040
Tl-201	3,04	0,008	10,834	0,0000
Tl-202	12,20	0,071	3,771	0,0000
Tl-208	0,00	0,674	0,000	0,0000
U-234	9,13E+07	0,000	0,167	0,0000
U-235	2,56E+11	0,023	11,379	0,0000
U-238	1,64E+12	0,009	0,005	0,0000
Y-88	106,60	0,523	5,250	0,0003
Zn-65	244,20	0,108	15,333	0,0002
Zr-95	64,00	0,258	11,382	0,0004

Quelle: Autoren

Tabelle 10-15: Berechnung der Inhalationsdosis im Ereignisfall

	Halbwertszeit	Lungen-Abs.-Klasse	DK(Arbeiter)	C	Einh
	Tage		µSv/Bq	Bq/kg	µSv
Ac-228	0,26	F	0,042	0,000	0,0000
Ag-110m	249,80	M	0,007	6,637	0,0000
Ag-111	7,50	M	0,002	36,853	0,0000
Am-241	158080,20	M	27,000	18,122	0,0587
Ba-133	3835,13	M	0,002	5,269	0,0000
Ba-140	12,80	M	0,003	21,490	0,0000

	Halbwertszeit	Lungen- Abs.-Klasse	DK(Arbeiter)	C	Einh
	Tage		µSv/Bq	Bq/kg	µSv
Be-7	53,20	S	0,00005	105,526	0,0000
Bi-212	0,04	M	0,039		0,0000
Bi-214	0,01	M	0,021		0,0000
Cd-109	462,60	F	0,010	91,181	0,0001
Ce-139	137,60	M	0,001	3,725	0,0000
Ce-141	32,50	M	0,003	8,872	0,0000
Ce-143	1,38	M	0,001	1,047	0,0000
Ce-144	285,00	M	0,029	69,113	0,0002
Cm-242	162,90	M	3,850		0,0000
Cm-243	10957,50	M	20,000		0,0000
Cm-244	6574,50	M	17,100		0,0000
Co-57	271,80	M	0,001	5,344	0,0000
Co-58	70,90	M	0,002	6,338	0,0000
Co-60	1935,83	M	0,017	11,635	0,0000
Cr-51	27,70	S	0,000	46,701	0,0000
Cs-134	767,03	F	0,010	10,864	0,0000
Cs-136	13,00	F	0,002	5,053	0,0000
Cs-137	10957,50	F	0,007	14,176	0,0000
Eu-152	4930,88	M	0,027	12,428	0,0000
Eu-154	3141,15	M	0,035	8,610	0,0000
Eu-155	1753,20	M	0,005	14,844	0,0000
Fe-59	44,50	M	0,003	12,389	0,0000
Hg-203	46,60	M	0,001	4,533	0,0000
I-123	0,55	F	0,000		0,0000
I-125	59,40	F	0,007		0,0000
I-131	8,00	F	0,011	8,853	0,0000
I-132	0,10	F	0,000	0,000	0,0000
In-111	2,80	M	0,000	1,149	0,0000
K-40	4,75E+11	F	0,003	215,359	0,0001
La-140	1,68	M	0,002	1,557	0,0000
Lu-177	6,60	S	0,001	26,290	0,0000
Lu-177m	160,30	S	0,012		0,0000
Mn-54	312,10	M	0,001	6,639	0,0000
Mo-99	2,75	M	0,001	7,126	0,0000
Na-22	949,65	F	0,002	8,783	0,0000
Nb-95	35,00	M	0,001	6,009	0,0000
Nd-147	11,00	S	0,002	13,126	0,0000
Np-239	2,40	M	0,001	3,765	0,0000
Pa-234m	0,28	0	0,000		0,0000
Pb-210	8108,55	M	3,210	735,685	0,2834
Pb-212	0,44	M	0,064	0,012	0,0000

	Halbwertszeit	Lungen- Abs.-Klasse	DK(Arbeiter)	C	Einh
	Tage		µSv/Bq	Bq/kg	µSv
Pb-214	0,02	M	0,014		0,0000
Pm-151	28,40	S	0,001	21,919	0,0000
Pu-236	1059,23	M	15,100		0,0000
Pu-238	3,20E+04	M	30,000		0,0000
Pu-239	8,77E+06	M	32,000		0,0000
Pu-240	2,41E+06	M	32,000		0,0000
Ra-224	3,60	M	2,450		0,0000
Ra-226	5,84E+05	M	5,340	67,613	0,0433
Ra-228	2118,45	M	21,700		0,0000
Re-186	3,75	M	0,001		0,0000
Ru-103	39,30	M	0,002	8,950	0,0000
Ru-106	372,60	M	0,035	59,321	0,0002
Sb-124	60,20	M	0,002	12,699	0,0000
Sb-125	1022,70	M	0,002	19,491	0,0000
Sb-127	3,90	M	0,001	6,849	0,0000
Sb-129	0,18	M	0,000	0,000	0,0000
Se-75	119,60	M	0,001	5,855	0,0000
Sm-153	1,93	M	0,001		0,0000
Sn-113	115,10	M	0,002	4,806	0,0000
Sr-85	64,80	M	0,001	6,199	0,0000
Sr-90	10519,20	M	0,079	0,000	0,0000
Tc-99m	6,00	M	0,000	9,905	0,0000
Te-123m	119,50	M	0,001	4,826	0,0000
Te-129	0,05	M	0,000	0,000	0,0000
Te-129m	33,60	M	0,002	546,007	0,0001
Te-131m	30,00	M	0,002	15,246	0,0000
Te-132	76,30	M	0,003	4,533	0,0000
Th-228	693,98	S	34,400		0,0000
Th-230	2,74E+07	S	7,390		0,0000
Th-232	5,11E+12	S	48,200	16,073	0,0930
Tl-201	3,04	F	0,000	10,834	0,0000
Tl-202	12,20	F	0,000	3,771	0,0000
Tl-208	0,00	0	0,000	0,000	0,0000
U-234	9,13E+07	M	6,860	0,167	0,0001
U-235	2,56E+11	M	7,250	11,379	0,0099
U-238	1,64E+12	M	5,710	0,005	0,0000
Y-88	106,60	S	0,003	5,250	0,0000
Zn-65	244,20	M	0,003	15,333	0,0000
Zr-95	64,00	M	0,004	11,382	0,0000

Quelle: Autoren

Literaturverzeichnis

- Richtlinie 86/278/EWG über den Schutz der Umwelt und insbesondere der Böden bei der Verwendung von Klärschlamm in der Landwirtschaft.
- Richtlinie 91/271/EWG über die Behandlung von kommunalem Abwasser - Kommunale Abwasserrichtlinie, (2008).
- Verordnung über die Verwertung von Klärschlamm, Klärschlammgemisch und Klärschlammkompost (Klärschlammverordnung - AbfKlärV), (2017).
- Verordnung über Anforderungen an das Einleiten von Abwasser in Gewässer (Abwasserverordnung - AbwV), (2022).
- AKU. (2020). *Loseblattsammlung Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität, Loseblattsammlung des Arbeitskreises Umweltüberwachung (AKU): Umweltüberwachung – Strategien und Methoden - Umsetzung und Erfahrungen aus der Praxis* (LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU, Issue. N. Bundesministerium für Umwelt, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz (BMUV) / Fachverband für Strahlenschutz (FS).
- Alhajji, E., Al-Masri, M. S., Khalily, H., Naoum, B. E., Khalil, H. S., & Nashawati, A. (2016). A Study on Sorption of (226)Ra on Different Clay Matrices. *Bull Environ Contam Toxicol*, 97(2), 255-260. <https://doi.org/10.1007/s00128-016-1852-1>
- Andrés, C., Barquero, R., Tortosa, R., Nuñez, C., del Castillo, A., Vega-Carrillo, H. R., & Alonso, D. (2011). 131I activity in urine to the sewer system due to thyroidal treatments. *Health Phys*, 101 Suppl 2, S110-115. <https://doi.org/10.1097/HP.0b013e318209459c>
- Allgemeiner Notfallplan des Bundes nach § 98 des Strahlenschutzgesetzes (ANoPI-Bund) / Referentenentwurf des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz, (2022).
- Attallah, M. F., Hamed, M. M., El Afifi, E. M., & Aly, H. F. (2015). Removal of 226Ra and 228Ra from TENORM sludge waste using surfactants solutions. *J Environ Radioact*, 139, 78-84. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2014.09.009>
- Radioaktivität in Abwasser und Klärschlamm - MERKBLATT ATV - M 267, § ISBN-3-933693 - 59 - 4 (1995).
- Avila, R., de la Cruz, I., Sundell-Bergman, S., & S., H. (2007). *Radiological consequences of radionuclide releases to sewage systems from hospitals in Sweden* (SSI Rapport, Issue.
- Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Integrierten Mess- und Informationssystem zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt (IMIS) nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz, (2006).
- AVV. (2020). Allgemeine Verwaltungsvorschrift zur Ermittlung der Exposition von Einzelpersonen der Bevölkerung durch genehmigungs- oder anzeigebedürftige Tätigkeiten (AVV Tätigkeiten). In: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit BMUV.
- BAG. (2020). Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz. In: Bundesamt für Gesundheit BAG - Abteilung Strahlenschutz.
- BAG. (2021). Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz. In: Bundesamt für Gesundheit BAG - Abteilung Strahlenschutz.
- BAG. (2022). Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz. In: Bundesamt für Gesundheit BAG - Abteilung Strahlenschutz.
- Barbosa, N., Castillo, L. S., & Quimbayo, J. S. (2022). Discharges of Nuclear Medicine Radioisotopes: The Impact of an Abatement System. *Health Phys*, 122(5), 586-593. <https://doi.org/10.1097/hp.0000000000001543>

- Barci-Funel, G., Dalmasso, J., Magneb, J., & Ardisson, G. (1993). Simultaneous detection of short-lived ^{201}Tl , ^{99}Tcm and ^{131}I isotopes in sewage sludge using low energy photon spectrometry. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0048-9697\(93\)90057-D](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0048-9697(93)90057-D)
- Barquero, R., Agulla, M. M., & Ruiz, A. (2008). Liquid discharges from the use of radionuclides in medicine (diagnosis). *J Environ Radioact*, 99(10), 1535-1538. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2007.12.009>
- Barquero, R., Basurto, F., Nuñez, C., & Esteban, R. (2008). Liquid discharges from patients undergoing ^{131}I treatments. *J Environ Radioact*, 99(10), 1530-1534. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2007.12.010>
- BDEW. (2022). Stellungnahme zum Kommissionsvorschlag für die Überarbeitung der Richtlinie über die Behandlung von kommunalem Abwasser (KOM 2022 (541) final). In *Transparenzregisternummer: 20457441380-38*: Bundesverband der Energie- und Wasserwirtschaft e. V. (BDEW).
- BfS. (2009). *Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide im Trinkwasser in der Bundesrepublik Deutschland*. M. B. Beyermann, T.; Gehrcke, K.; Obrikat, D. urn:nbn:de:0221-20100319945
- BMU. (2018). *Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung - Jahresbericht 2018*. N. u. n. S. B. Bundesministerium für Umwelt. urn:nbn:de:0221-2021011124821
- BMUB. (2014). *Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung - Jahresbericht 2014*. urn:nbn:de:0221-2016091514109
- BMUV. (2017, 20.06.2017). *Abwasser*. Retrieved 2023-03-01 from <https://www.bmu.de/themen/wasser-ressourcen-abfall/binnengewasser/abwasser>
- BMUV. (2019). *Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung - Jahresbericht 2019*. Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und, & n. S. (BMU). urn:nbn:de:0221-2022041232235
- BMUV. (2020a). *Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung: Jahresbericht 2020*. urn:nbn:de:0221-2023092039261
- BMUV. (2020b). *Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung: Jahresbericht 2020 (Parlamentsbericht)*. urn:nbn:de:0221-2023092039276
- BMUV. (2021). *Grundlagen zur Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung in Deutschland*.
- Brenk. (2012). *Berechnung von Freigrenzen und Freigabewerten für Nuklide, für die keine Werte in den IAEA-BSS vorliegen* Referenz / Aktenz. 434.0000-101/11.007303/7918731).
- Chang, B. U., Choi, S. W., Song, M. H., Lee, J. S., & Kim, Y. (2011). Medically used radionuclides (^{131}I , $^{99\text{m}}\text{Tc}$) in the urban sewage system: the case of the Daejeon metropolitan city, Korea. *Radiat Prot Dosimetry*, 146(1-3), 318-321. <https://doi.org/10.1093/rpd/ncr108>
- Chemie.de. (2024). *Kläranlage*. © 1997-2024 LUMITOS AG. Retrieved 2024-02-28 from
- DeStatis. (2023a). *Abwasserbehandlungsanlagen, Angeschlossene Einwohnerwerte, Jahresabwassermenge, Schmutzwasser: Bundesländer, Jahre, Art der Abwasserbehandlung*. In: © Statistisches Bundesamt (Destatis), 2023.
- DeStatis. (2023b). *Öffentliche Wasserversorgung und öffentliche Abwasserentsorgung - Strukturdaten zur Wasserwirtschaft*. In (Vol. Fachserie 19 Reihe 2.1.3): © Statistisches Bundesamt (Destatis), 2023.
- DeStatis. (2023c). *Wasserwirtschaft: Anlagen mit biologischer Abwasserbehandlung nach Entsorgungswegen des Klärschlammes 2021*. In: © Statistisches Bundesamt (Destatis), 2023.
- DeStatis. (2023d). *Wasserwirtschaft: Eigengewinnung und Fremdbezug von Wasser sowie Einleitung von Abwasser und ungenutztem Wasser*. In: © Statistisches Bundesamt (Destatis), 2023.
- DeStatis. (2023e). *Wasserwirtschaft: Erzeugung, Bezug und Abgabe von Klärschlamm aus der biologischen Abwasserbehandlung 2021*. In: © Statistisches Bundesamt (Destatis), 2023.
- DeStatis. (2023f). *Wasserwirtschaft: Klärschlammbehandlung aus der biologischen Abwasserbehandlung in Deutschland und ins Ausland 2021*. In: © Statistisches Bundesamt (Destatis), 2023.
- Durth, A., & Kolvenbach, F. J. (2014). *Abwasser und Klärschlamm in Deutschland - statistische Betrachtungen*. DWA-Arbeitsgruppe KEK-1.2 Statistik; Nachdruck aus der Zeitschrift *Korrespondenz Abwasser, Abfall* - 2014 (61) Nr. 12, 2015 (62) Nr. 1. In.

- Elashmawy, M. (2022). DESIGN, COMMISSIONING AND OPERATION OF PROGRAMMABLE DRAINAGE SYSTEM FOR PET-CT: AN OPTIMIZED APPROACH TO PROTECT PERSONNEL AND ENVIRONMENT IN NUCLEAR MEDICINE FACILITIES. *Radiation Protection Dosimetry*, 198(5), 257-264. <https://doi.org/10.1093/rpd/ncac037>
- EPA. (2019). Federal Guidance Report No. 15: External Exposure to Radionuclides in Air, Water and Soil. In *External Dose Rate Coefficients for General Application* (Vol. EPA-402/R19/002): U.S. Environmental Protection Agency, Washington, DC 20460.
- Erlandsson, B., Bjurman, B., & Mattsson, S. (1989). Calculation of radionuclide ground deposition by means of measurements on sewage sludge. *Water, Air, and Soil Pollution*, 45(3), 329-344. <https://doi.org/10.1007/BF00283462>
- Ertl, V. C., & Ginzl, G. (2000). Naturnahe Nachbehandlung von gereinigtem Abwasser auf einer umgestalteten Rieselfeldtafel. *Wasser Boden*, 9, 23-28.
- Eschner, W., Breustedt, B., Lassmann, M., & Hänscheid, H. (2004). Erfassung der über Ausscheidungen in die Umwelt abgegebenen radioaktiven Stoffe nach ihrer Anwendung in der Nuklearmedizin. In *Schrittfreihe Reaktorsicherheit und Strahlenschutz: Klinikum der Universität zu Köln, Universitätsklinikum Würzburg*.
- VERORDNUNG (Euratom) 2016/52 DES RATES vom 15. Januar 2016 zur Festlegung von Höchstwerten an Radioaktivität in Lebens- und Futtermitteln im Falle eines nuklearen Unfalls oder eines anderen radiologischen Notfalls und zur Aufhebung der Verordnung (Euratom) Nr. 3954/87 des Rates und der Verordnungen (Euratom) Nr. 944/89 und (Euratom) Nr. 770/90 der Kommission, (2016).
- Fenner, F. D., & Martín, J. E. (1997). Behavior of Na¹³¹I and meta(131I) iodobenzylguanidine (MIBG) in municipal sewerage. *Health physics*, 73 2, 333-339.
- Fischer, H. W., Hormann, V., & Souti, M. E. (2017). Abschlussbericht des Teilprojekts H des BMBF-Verbundprojekts TransAqua (02NUK30H) - AP 1.1: Radionuklide als Tracer in fluvialen Systemen, AP 4.1: Bestimmung und Modellierung der Partitionierung von künstlichen und natürlichen Radionukliden in Klärschlamm und Abwasser : Laufzeit: 1.6.2013 bis 31.5.2017 <https://www.tib.eu/de/suchen/id/TIBKAT%3A1012672670>
- Fischer, H. W., Ulbrich, S., Pittauerová, D., & Hettwig, B. (2009). Medical radioisotopes in the environment - following the pathway from patient to river sediment. *J Environ Radioact*, 100(12), 1079-1085. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2009.05.002>
- Fischer, H. W., & Yokoo, Y. (2014). Preliminary comparison of radioisotope concentration in sewage sludge after the Fukushima and Chernobyl accidents. *European Geosciences Union General Assembly 2014, EGU 2014; Energy Procedia* 59 (2014) 256 – 262. <https://doi.org/10.1016/j.egypro.2014.10.375>
- Fusban, H. U., Bünger, T., Rühle, H., & Gans, I. (2000). Verfahren zur gammaspektrometrischen Bestimmung von Radionukliden im Abwasser, H-γ-SPEKT-AWASS-01. In: Leitstelle für die Überwachung der Radioaktivität in Trinkwasser, Grundwasser, Abwasser, Klärschlamm, Reststoffen und Abfällen.
- Gallego, E. (2006). MUD: a Model to investigate the migration of ¹³⁷Cs in the Urban environment and Drainage and sewage treatment systems. *J Environ Radioact*, 85(2-3), 247-264. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2004.10.017>
- Gandhi, T. P., Sampath, P. V., & Maliyekkal, S. M. (2022). A critical review of uranium contamination in groundwater: Treatment and sludge disposal. *Sci Total Environ*, 825, 153947. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2022.153947>
- Gans, I., Abelman, S., Bünger, T., Fusban, H. U., Rühle, H., Rughöft, S., & Vierte, I. H. (1991). Langfristige Auswirkung des Reaktorunfalls in Tschernobyl auf Abwasser und Klärschlamm in der Bundesrepublik Deutschland. *Korrespondenz Abwasser*, 38, 711-721.
- Gans, I., Rühle, H., Bünger, T., & Beckmann, D. (1986). Radioaktivitätsüberwachung von Abwasser und Klärschlamm unter besonderer Berücksichtigung des Reaktorunfalls in Tschernobyl. *Bundesgesundheitsblatt*, 29, 305-314.
- Gellermann, R. (2009). Phenomenological model of TENORM formation in industrial processes. *Kerntechnik*, May 2008. <https://doi.org/10.3139/124.100548>

- Gellermann, R. (2019). Radioecology of tritium in sewage water of a landfill in northern Germany. Gellermann, R. (2019). Tritium in Deponiesickerwässern. *Strahlenschutz PRAXIS*, 2/2019.
- Gellermann, R., Krägenow, J., Müller, A., & Schulze, R. (2019). FUNDE MEDIZINISCH GENUTZTER RADIONUKLIDE IN ABFALLSTRÖMEN – PRAKTISCHE ERFAHRUNGEN UND STRAHLENSCHUTZFRAGEN.
- Goossens, R., Delville, A., Genot, J., Halleux, R., & Masschelein, W. J. (1989). Removal of the typical isotopes of the chernobyl fall-out by conventional water treatment. *Water Research*, 23(6), 693-697. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0043-1354\(89\)90201-7](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0043-1354(89)90201-7)
- Hormann, V., & Fischer, H. W. (2017). The physicochemical distribution of ¹³¹I in a municipal wastewater treatment plant. *Journal of Environmental Radioactivity*, 178-179, 55-62. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.07.008>
- Hormann, V., & Fischer, H. W. (2018). A Simple Compartment Model for the Dynamical Behavior of Medically Derived (¹³¹)I in a Municipal Wastewater Treatment Plant. *Environ Sci Technol*, 52(16), 9235-9242. <https://doi.org/10.1021/acs.est.8b01553>
- Hossain, K., Maruthi, Y. A., Das, N. L., Rawat, K. P., & Sarma, K. S. S. (2018). Irradiation of wastewater with electron beam is a key to sustainable smart/green cities: a review. *Applied Water Science*, 8(1), 6. <https://doi.org/10.1007/s13201-018-0645-6>
- IAEA. (1994). Sewage sludge and wastewater for use in agriculture: Proceedings of consultants meetings organized by the Joint FAO/IAEA Division of Nuclear Techniques in Food and Agriculture and the IAEA Division of Physical and Chemical Sciences, and held in Vienna, 5-9 December 1994. In.
- IAEA. (2001). Models for Use in Assessing the Impact of Discharges of Radioactive Substances to the Environment. In (Safety Reports Series No. 19 ed.): International Atomic Energy Agency IAEA.
- IAEA. (2009). Release of patients after radionuclide therapy / with contributions from the International Commission on Radiological Protection. In *Safety reports series*: International Atomic Energy Agency.
- IAEA. (2013). *Radiation protection and management of norm residues in the phosphate industry*.
- ICRP. (1997). *Individual Monitoring for Internal Exposure of Workers (preface and glossary missing)*. ICRP Publication 78. (ICRP Publication 78, Issue.
- ICRP. (2004). ICRP Publication 94: Release of patients after therapy with unsealed radionuclides. *Ann ICRP*, 34(2), v-vi, 1-79. <https://doi.org/10.1016/j.icrp.2004.08.001>
- ICRP. (2011, October 24-26, 2011). First ICRP Symposium on the International System of Radiological Protection. Bethesda, USA.
- ICRP. (2019). ICRP Publication 140: Radiological Protection in Therapy with Radiopharmaceuticals. *Ann ICRP*, 48(1), 5-95. <https://doi.org/10.1177/0146645319838665>
- Imhoff, K. R., Koppe, P., & Dietz, F. (1988). Investigations on the concentration of radionuclides in sewage sludges of Ruhrverband wastewater treatment plants 1960 through to 1986. *Water Research*, 22(8), 1059-1067. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0043-1354\(88\)90155-8](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0043-1354(88)90155-8)
- IMIS-Zuständigkeitsverordnung (IMIS-ZustV) vom 5. Oktober 2017, (2017).
- Institut für Strahlenschutz, O.-N. (2018). *Verbundprojekt TransAqua - Transfer von Radionukliden in aquatischen Ökosystemen : Abschlussbericht : Förderzeitraum 01.06.2013-30.11.2017*. <https://www.tib.eu/de/suchen/id/TIBKAT%3A1028330197>
- ISCORS. (2003). *ISCORS Assessment of Radioactivity in Sewage Sludge: Radiological Survey Results and Analysis* (NUREG-series publications, Issue.
- ISCORS. (2004). *ISCORS Assessment of Radioactivity in Sewage Sludge: Modeling to Assess Radiation Doses* (NUREG-series publications, Issue.
- Jain, R., Peräniemi, S., Jordan, N., Vogel, M., Weiss, S., Foerstendorf, H., & Lakaniemi, A. M. (2018). Removal and recovery of uranium(VI) by waste digested activated sludge in fed-batch stirred tank reactor. *Water Res*, 142, 167-175. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2018.05.042>
- Jeffries, C. (2023). In *Summary of typical disposal to wastewater for South Australia*.
- Kamei-Ishikawa, N., Ito, A., Tagami, K., & Umita, T. (2013). Fate of radiocesium in sewage treatment process released by the nuclear accident at Fukushima. *Chemosphere*, 93(4), 689-694. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2013.06.012>

- Kanisch, G., Mundschenk, H., Schkade, U. K., & Wershofen, H. (2019). Interferences in gamma spectrometry: Y-SPEKT/INTERF. In *Messanleitungen für die „Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und externer Strahlung*: Thünen-Institut für Fischereiökologie, undesanstalt für Gewässerkunde – BfG, Bundesamt für Strahlenschutz – BfS, Physikalisch-Technische Bundesanstalt.
- Kaste, J. M., Norton, S. A., & Hess, C. T. (2002). Environmental chemistry of beryllium-7. *Mineralogy, petrology, and geochemistry, Washington: Mineralogical Soc America* pp. 271–289.
- Kavtuka, G. A., Basharin, A. V., Vishnevskaya, A. A., Ivanskii, I., Skurat, V. V., Shiriaeva, N. M., & Stankevich, L. A. (1999). Radioecological condition of cleansing structures on the territory contaminated with radionuclides as a result of the accident on the Chernobyl Nuclear Power Station and the problems handling with the forming precipitates of sewage in republic Belarus. *Radiats Biol Radioecol*, 39(5), 514-520. (Radioökologicheskoe sostoianie ochistnykh sooruzhenii na territorii, zagriaznennoi radionuklidami v rezul'tate avarii na ChAES, i problemy obrashcheniia s obrazuiushchimisya osadkami stochnykh vod v respublike Belarus'.)
- Kirchner, G., Steiner, M., & Zähringer, M. (2009). A new approach to estimate nuclide ratios from measurements with activities close to background. *Journal of Environmental Radioactivity*, 100(6), 484-488. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2009.03.009>
- Kosaka, K., Asami, M., Kobashigawa, N., Ohkubo, K., Terada, H., Kishida, N., & Akiba, M. (2012). Removal of radioactive iodine and cesium in water purification processes after an explosion at a nuclear power plant due to the Great East Japan Earthquake. *Water Res*, 46(14), 4397-4404. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2012.05.055>
- Kozai, N., Sato, J., Osugi, T., Shimoyama, I., Sekine, Y., Sakamoto, F., & Ohnuki, T. (2021). Sewage sludge ash contaminated with radiocesium: Solidification with alkaline-reacted metakaolinite (geopolymer) and Portland cement. *J Hazard Mater*, 416, 125965. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2021.125965>
- Kozai, N., Suzuki, S., Aoyagi, N., Sakamoto, F., & Ohnuki, T. (2015). Radioactive fallout cesium in sewage sludge ash produced after the Fukushima Daiichi nuclear accident. *Water Res*, 68, 616-626. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2014.10.038>
- Landtag-NRW. (2021). Antwort der Landesregierung auf die Kleine Anfrage 6141 vom 22. November 2021 der Abgeordneten Wibke Brems BÜNDNIS 90/DIE GRÜNEN Drucksache 17/15673. In.
- LfU. (2007). *Ermittlung von Arbeitsfeldern mit erhöhten Expositionen durch natürliche Radioisotope und von überwachungsbedürftigen Rückständen - Rückstände aus der Trinkwasseraufbereitung - Teil I* (UmweltSpezial, Issue).
- LfU. (2008). *Abschlussbericht Ermittlung von Arbeitsfeldern mit erhöhten Expositionen durch natürliche Radioisotope und von überwachungsbedürftigen Rückständen – Rückstände aus der Trinkwasseraufbereitung, Teil I* (UmweltSpezial, Issue).
- Martín, J. E., & Fenner, F. D. (1997). Radioactivity in municipal sewage and sludge. *Public Health Rep*, 112(4), 308-316; discussion 317-308.
- Martínez, J., Baciú, T., Peñalver, A., Aguilar, C., & Borrull, F. (2019). Occurrence of and radioanalytical methods used to determine medical radionuclides in environmental and biological samples. A review. *J Environ Radioact*, 207, 37-52. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2019.05.015>
- McGowan, D. R., Pratt, B. E., Hinton, P. J., Peet, D. J., & Crawley, M. T. (2014). Iodine-131 monitoring in sewage plant outflow. *J Radiol Prot*, 34(1), 1-14. <https://doi.org/10.1088/0952-4746/34/1/1>
- Mohl, A. (2014). Wasserqualität nach Kläranlagen: Mit Aktivkohle gegen Hormone im Wasser. *Stuttgarter Nachrichten*. <https://www.stuttgarter-nachrichten.de/inhalt.wasserqualitaet-nach-klaeranlagen-mit-aktivkohle-gegen-hormone-im-wasser.44a08f2f-b96e-44e0-945d-2cb2021118b4.html>
- Mosos, F., Velásquez, A. M., Mora, E. T., & Tello, C. D. (2020). Determination of (131)I activity concentration and rate in main inflows and outflows of Salitre wastewater treatment plant

- (WWTP), Bogota. *J Environ Radioact*, 225, 106425.
<https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2020.106425>
- Mulas, D., Camacho, A., Garbayo, A., Devesa, R., & Duch, M. A. (2019). Medically-derived radionuclides levels in seven heterogeneous urban wastewater treatment plants: The role of operating conditions and catchment area. *Sci Total Environ*, 663, 818-829.
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.01.349>
- Nemcik, J., Krupa, F., Ozana, S., & Z., S. (2022). Wastewater Treatment Modeling Methods Review. *IFAC PapersOnLine*, 55-4, 195–200.
- Nies, H., Herrmann, G. J., Michel, R., Daraoui, A., Gorny, M., Jakob, D., Sachse, R., Tosch, L., Nielsen, S. P., Dawdall, M., Rudjord, A. L., Gäfvert, T., Synal, H. A., Stocker, M., & Alifimov, V. (2010). *Kartierung von Tc-99, I-129 und I-127 im Oberflächenwasser der Nordsee – Vorhaben 3605S04481* (BfS-RESFOR-31/10). (Ressortforschungsberichte zur kerntechnischen Sicherheit und zum Strahlenschutz, Issue. urn:nbn:de:0221-201008263031
- OSPAR. (2017). *Messtechnische und modellbasierte Abschätzung des Eintrags von I-131 in die OSPAR-Regionen aufgrund der nuklear-medizinischen Anwendung von Radioiod in Deutschland*. N. Bundesministerium für Umwelt, Bau und Reaktorsicherheit vertr. durch die Präsidentin des Bundesamtes für Strahlenschutz.
- Palomo, M., Peñalver, A., Aguilar, C., & Borrull, F. (2010). Presence of naturally occurring radioactive materials in sludge samples from several Spanish water treatment plants. *J Hazard Mater*, 181(1-3), 716-721. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2010.05.071>
- Parajuli, D., Tanaka, H., Hakuta, Y., Minami, K., Fukuda, S., Umeoka, K., Kamimura, R., Hayashi, Y., Ouchi, M., & Kawamoto, T. (2013). Dealing with the aftermath of Fukushima Daiichi nuclear accident: decontamination of radioactive cesium enriched ash. *Environ Sci Technol*, 47(8), 3800-3806. <https://doi.org/10.1021/es303467n>
- Pratama, M. A., Takahara, S., Munakata, M., & Yoneda, M. (2018). Estimation of radiocesium dietary intake from time series data of radiocesium concentrations in sewer sludge. *Environ Int*, 115, 196-204. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2018.03.009>
- Pratama, M. A., Yoneda, M., Yamashiki, Y., Shimada, Y., & Matsui, Y. (2018). Modeling and identifying the sources of radiocesium contamination in separate sewerage systems. *Science of The Total Environment*, 622-623, 1098-1108.
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.12.046>
- Prichard, H. M., Gesell, T. F., & Davis, E. (1981). Iodine-131 levels in sludge and treated municipal wastewaters near a large medical complex. *Am J Public Health*, 71(1), 47-52.
<https://doi.org/10.2105/ajph.71.1.47>
- Punt, A., Millward, G., & Gardner, M. (2007). *Radionuclide partitioning to sewage sludge - a laboratory investigation* (ISBN: 978-1-84432-818-5).
- Punt, A., Wood, M., & Rose, D. (2007). *Radionuclide discharges to sewer – A field investigation* (ISBN 978-1-84432-819-2). www.environment-agency.gov.uk
- Rieger, L., Koch, G., Kühni, M., Gujer, W., & Siegrist, H. (2001). THE EAWAG BIO-P MODULE FOR ACTIVATED SLUDGE MODEL NO. 3 (ASM3). *Water Resources Vol. 35, No. 16*, pp. 3887–3903.
- Rose, P. S. (2003). *Medical radioisotopes in municipal sewage and sewage sludge* Stony Brook University, Stony Brook, NY, 63 pp.].
- Rose, P. S., Swanson, R. L., & Cochran, J. K. (2012). Medically-derived 131I in municipal sewage effluent. *Water Res*, 46(17), 5663-5671. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2012.07.045>
- S. Abelmann, T. Bünge, Rühle, H., & Viertel, H. (1993). Materialienband 1990 zur Radioaktivität in Trinkwasser, Grundwasser, Abwasser, Klärschlamm, Reststoffen und Abfällen zum Jahresbericht "Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung.". *WaBolu-Heft 5/1993, Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene des Bundesgesundheitsamtes Berlin*.
- Shiota, K., Takaoka, M., Fujimori, T., Oshita, K., & Terada, Y. (2015). Cesium Speciation in Dust from Municipal Solid Waste and Sewage Sludge Incineration by Synchrotron Radiation Micro-X-ray Analysis. *Anal Chem*, 87(22), 11249-11254.
<https://doi.org/10.1021/acs.analchem.5b03298>

- SHMÚ. (2022). Radiačný monitoring - Štatistická analýza radiačných dát za rok 2022 zo sietí SHMÚ a vybraných partnerov. In SHMÚ (Ed.).
- SSK. (1988). *Radionuklide in Wasser-Schwebstoff-Sediment-Systemen und Abschätzung der Strahlenexposition* (Veröffentlichungen der Strahlenschutzkommission - Band 9, Issue. G. F. V. S. N. York.
- SSK. (1998). *Auswirkungen des Reaktorunfalls in Tschernobyl auf die Bundesrepublik Deutschland* (Veröffentlichungen der Strahlenschutzkommission, Issue. Der Bundesminister für Umwelt, Naturschutz, und, Reaktorsicherheit, G. F. Verlag, Stuttgart, & N. York.
- SSK. (2004). *Ermittlung der Vorbelastung durch Radionuklid-Ausscheidungen von Patienten der Nuklearmedizin / Empfehlung der Strahlenschutzkommission*
- Verabschiedet in der 197. Sitzung der Strahlenschutzkommission am 16./17. Dezember 2004* (Veröffentlichungen der Strahlenschutzkommission, Issue.
- SSK. (2024). Umgang mit Parameterwerten zur Herleitung und Bedingungen für die Anwendung von Freigabewerten zur Beseitigung geringfügig radioaktiver Stoffe auf Deponien im Freigabeverfahren. Handreichung der Strahlenschutzkommission. . In *Verabschiedet in der 330. Sitzung der Strahlenschutzkommission am 30. Januar 2024*: Strahlenschutzkommission (SSK).
- Steinhäusler, F., Hofmann, W., Daschil, F., & Reubel, B. (1988). Chernobyl and its radiological and socio-economic consequences for the province of Salzburg, Austria. *Environment International*, 14(2), 91-111. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0160-4120\(88\)90085-2](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0160-4120(88)90085-2)
- Stetar, E. A., Boston, H. L., Larsen, I. L., & Mobley, M. H. (1993). The Removal of Radioactive Cobalt, Cesium, and Iodine in a Conventional Municipal Wastewater Treatment Plant. *Water Environment Research*, 65(5), 630-639. <http://www.jstor.org/stable/25044351>
- Gesetz zum Schutz vor der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlung (Strahlenschutzgesetz - StrlSchG), (2022).
- Verordnung zum Schutz vor der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlung (Strahlenschutzverordnung); Zuletzt geändert durch Art. 1 V v. 8.10.2021 I 4645, (2021).
- SUJB. (2018). *Monitorování radiační situace na území České republiky v teritoriálních sítích v roce 2018* (Národní program Monitorování, Issue. https://www.sujb.cz/fileadmin/sujb/docs/dokumenty/NPM/010119/NPM_text.pdf
- SUJB. (2021). *Monitorování radiační situace na území České republiky v teritoriálních sítích v roce 2021* (Národní program Monitorování, Issue.
- Sundell-Bergman, S., de la Cruz, I., Avila, R., & Hasselblad, S. (2008). A new approach to assessment and management of the impact from medical liquid radioactive waste. *J Environ Radioact*, 99(10), 1572-1577. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2007.12.005>
- Tait, D., & Kock, B. (2013). PLUTONIUM AND AMERICIUM IN TILLED SOILS IN GERMANY. 15. Fachgespräch zur Überwachung der Umweltradioaktivität, Bremen.
- Tsushima, I. (2017). Behavior of radioactive materials and safety stock of contaminated sludge. *J Environ Sci Health A Tox Hazard Subst Environ Eng*, 52(2), 158-165. <https://doi.org/10.1080/10934529.2016.1240486>
- Umweltbundesamt. (2018). *Klärschlamm Entsorgung in der Bundesrepublik Deutschland* ISSN (Print) 2363-8311 / ISSN (Online) 2363-832X). www.umweltbundesamt.de/publikationen
- Vanek, M., Hybská, H., & Dúřicová, A. (2014). *Gamaspetrometrická analýza vzoriek čistiarenského kalu z čistiarne odpadových vôd vo Zvolene*.
- Wang, X. L., Li, Y., Huang, J., Zhou, Y. Z., Liu, D. B., Hu, J. T., Li, B. L., & Ke, Y. (2019). Efficiency and mechanism of sorption of low concentration uranium in water by powdery aerobic activated sludge. *Ecotoxicol Environ Saf*, 180, 483-490. <https://doi.org/10.1016/j.ecoenv.2019.04.085>
- WNA. (2023). Radioisotopes in Medicine. In. <https://world-nuclear.org/information-library/non-power-nuclear-applications/radioisotopes-research/radioisotopes-in-medicine.aspx>: World Nuclear Association, WNA.

- Yang, J. H., Lei, Z. J., Dai, Y. H., Luo, Y., Xie, S. B., Wang, J. S., Zhou, S. K., Wei, B., Li, C., & Hu, S. Q. (2020). Preparation of aluminum sludge composite gel spheres and adsorption of U(IV) from aqueous solution. *Environ Sci Pollut Res Int*, 27(21), 26835-26844. <https://doi.org/10.1007/s11356-020-09032-4>
- Zannoni, D., Cantaluppi, C., Ceccotto, F., Giacetti, W., & Lovisetto, B. (2019). Human and environmental factors affecting the activity of ¹³¹I and ¹³⁷Cs in urban wastewater: A case study. *Journal of Environmental Radioactivity*, 198, 135-146. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.12.026>
- Zeng, T., Li, L., Mo, G., Wang, G., Liu, H., & Xie, S. (2019). Analysis of uranium removal capacity of anaerobic granular sludge bacterial communities under different initial pH conditions. *Environ Sci Pollut Res Int*, 26(6), 5613-5622. <https://doi.org/10.1007/s11356-018-4017-4>
- Zeng, T., Zhang, S., Gao, X., Wang, G., Lens, P. N. L., & Xie, S. (2018). Assessment of Bacterial Community Composition of Anaerobic Granular Sludge in Response to Short-Term Uranium Exposure. *Microb Ecol*, 76(3), 648-659. <https://doi.org/10.1007/s00248-018-1152-x>
- Zhang, T., Hammack, R. W., & Vidic, R. D. (2015). Fate of Radium in Marcellus Shale Flowback Water Impoundments and Assessment of Associated Health Risks. *Environ Sci Technol*, 49(15), 9347-9354. <https://doi.org/10.1021/acs.est.5b01393>