

**Onesnaženost slovenskih rek z I-131 zaradi  
njegove uporabe v terapevtskih postopkih v  
nuklearni medicini**

**Ljubljana, oktober - november 1998**

**Naročnik:** Ministrstvo za okolje in prostor  
Uprava RS za jedrsko varnost  
Vojkova 59  
1000 Ljubljana

**Št. in datum naročila:** Po pogodbi št. 2513-98-019507/M\_R z dne 26.8.1998

**Delovni nalog:** 98513

**Predmet:** Onesnaženost slovenskih rek z I-131 zaradi njegove uporabe v terapevtskih postopkih v nuklearni medicini

**Oceno pripravil:** ZAVOD ZA VARSTVO PRI DELU, d.d.  
Oddelek za ekologijo in toksikologijo in varstvo pred sevanji  
Bohoričeva 22a, 1105 LJUBLJANA  
tel.: 061 1320 253, fax.: 061 312-562

**Nosilec ocene:** Barbara BERKOPEC, univ. dipl. in \_kem.  
**Sodelavaci:** Peter JOVANOVIČ, inž. fiz.  
mag. Miran KANDUČ, univ. dipl. inž. fiz.

**Direktor:** mag. Marko MIŠ, univ. dipl. psih.

## VSEBINA

### Stran

1. UVOD
2. METODE DE LA
  - 2.1. VZORČENJE
  - 2.2. RADIOKEMIJSKA DOLOČITEV I-131
  - 2.3. GAMASPEKTROMETRIČNA DOLOČITEV I-131
3. REZULTATI MERITEV
4. KOMENTAR
5. REFERENCE

## 1. UVOD

Izotop I-131 spada med radionuklide z visoko radiotoksičnostjo. V naravi ne nastaja, njegova prisotnost v okolju je posledica izpustov iz jedrskih objektov in uporabe v medicini. V medicini se uporablja v terapevtske namene za odkrivanje in zdravljenje bolezni ščitnice. Pacienti lahko dobijo manjše aktivnosti I-131, do 550 MBq in takoj po aplikaciji odidejo domov. V primeru višjih aktivnosti odležijo nekaj dni v bolnišnici.

V Sloveniji se na klinikah za nuklearno medicino letno uporabi cca 890 GBq I-131 (REF: Poročilo o jedrski in radiološki varnosti v Sloveniji v letu 1996, RUJV-RP-024), največ na Univerzitetnem kliničnem centru (UKC) na Kliniki za nuklearno medicino in na Onkološkem Inštitutu (OI) v Ljubljani. Občasno se terapije z I-131 izvajajo tudi v bolnicah Maribor in Slovenj Gradec.

V okviru naloge smo zbrali podatke o pogostosti in dinamiki diagnostičnih in terapevtskih postopkov z uporabo I-131 po posameznih slovenskih bolnišnicah. Na podlagi zbranih podatkov in meritev vzorcev vod nekaterih slovenskih rek, ob katerih so klinike smo ugotovili stopnjo kontaminacije le-teh med izvajanjem terapij. I-131 smo določali z metodama visokoločljivostne gamaspektrometrije in radiokemije.

Meritve smo izvedli na rekah Ljubljanici in Savi, kjer sta glavna možna onesnaževalca UKC in Onkološki Inštitut iz Ljubljane; na Dravi, kot posledico izvajanja terapij v Mariborski bolnišnici in na Muri, kjer smo z meritvami preverjali podatke, dostopne v avstrijskem letnem poročilu, kjer navajajo aktivnosti I-131 v Spieelefdu za leto 1994 od 4 do 74 Bq/m<sup>3</sup>. (REF:::). Po naših podatkih v bolnici Slovenj Gradec ne izvajajo več terapij z I-131. Na Oddelku za nuklearno medicino v Kliničnem centru običajno izvajajo terapije z I-131 dvakrat tedensko. Hospitalizirani pacienti prejmejo terapijo ob sredah opoldne. Pacienti, ki takoj po terapiji odidejo domov, prejmejo izotop ob petkih. Po podatkih UKC porabijo tedensko 100-200 mCi (3.7-7.4 GBq) I-131 na teden. Približno dve tretjini te aktivnosti prejmejo pacienti, ki so sprejeti na oddelek.

Terapije na Onkološkem Inštitutu se izvajajo po potrebi in vsi pacienti so sprejeti na poseben

bolnišnični oddelek. Povprečna aktivnost I-131, ki jo pacient prejme, je 150 mCi (5.5 GBq). V letu povprečno sprejmejo 90 pacientov.

Biološki razpolovni čas I-131 v ščitnici je 120 dni, v ostalih organih pa 12 dni. (REF:: ICRP 30, Part 1) Po nekaterih ocenah se ena tretjina prejete doze zadrži v ščitnici, dve tretjini pa se v treh dneh izločita iz organizma.( ICRP 10, ICRP 2??)

Odpadne vode iz posebnih bolniških oddelkov Onkološkega Inštituta, kjer ležijo pacienti po terapiji z I-131, se od avgusta leta 1996 zbirajo v zaprtem zadrževalnem bazenu. Zadrževalni bazen ima dva prekata. Ko je en poln, se izpusti odpadnih vod speljejo v drugi prekat (priključen je bil 1.7.1998). Vsebino bazena po nekaj mesecih izprazni podjetje Vodovod-kanalizacija (VO-KA) kot neaktiven odpadek.

Odpadne vode iz Kliničnega Centra se pri Mrtvaškem mostu izlijejo v kanalizacijski sistem speljan ob levem bregu Ljubljani in se šele za čistilno napravo Zalog (ČN) izlijejo v Ljubljani. Kanalizacijski sistem ima prelivna mesta, ki v primeru visokih voda omogočajo razbremenitev sistema v Ljubljani.

## DOSEDANJE STANJE V SLOVENIJI

V Splošni bolnici Maribor vsi pacienti terapijo z I-131 prejmejo ambulantno. V letu 1997 je terapijo z I-131 prejelo 40 pacientov. Povprečna doza, ki jo posamezen pacient prejme, je 10 mCi (0.37 GBq).

Podatkov o izvajanju terapij z I-131 v Avstriji ne poznamo, zato smo na reki Muri vzorčili dva zaporedna dneva v Sladkem vrhu na enem vzorčevalnem mestu istočasno kot na reki Dravi.

## 2. METODE DE LA

## 2.1. VZORČENJE - Način, termin in kraj vzorčenja

Zajem vzorcev na rekah je potekal po metodah za zajem rečnih voda ISO 5667-6 (R: Water quality - Sampling - Part 6: Guidance on sampling of rivers and streams).

Na vseh vzorčevalnih mestih, razen na čistilni napravi v Zalogu, smo vzorčevali enkratno 10 litrski vzorec iz sredine rečne struge. Vzorčevali smo iz mostu ali pa s kajakom v jutranjih urah. (Sliki 2 in 3).

Termin vzorčenja na Ljubljanici, Savi in ČN Zalog smo izbrali glede na zbrane podatke o dinamiki terapij z I-131 v UKC in na OI.

Na reki Ljubljanici in Savi smo vzorčevali na petih izbranih lokacijah v treh zaporednih dneh pri normalnem vodostaju v času hospitalizacije pacientov v UKC. Hkrati smo vzorčili tudi po en vzorec odpadnih vod na ČN Zalog. Vzorčevalna mesta so shematično prikazana na Sliki 1 in opisana v Tabeli 1.

Vzorčenje odpadnih vod na čistilni napravi v Zalogu je potekalo po dogovorjenem protokolu s pomočjo vzorčevalnika Sigma Stream Line. Potekalo je v času vzorčenja na rekah Ljubljanici in Savi vsak dan med sedmo in deseto uro s hitrostjo vzorčenja cca. 3 litre na uro. Deset litrske kompozitne vzorce odpadnih vod so pred radiokemično analizo prefiltrirali skozi filter črni trak v laboratoriju na ČN Zalog.

Dva zaporedna dneva smo vzorčili na rekah Dravi in Muri. Splošna bolnica Maribor namreč občasno tudi izvaja terapije z I-131, vendar pacientov ne sprejemajo v posebne bolnišnične oddelke temvečle ti po aplikaciji odidejo domov.

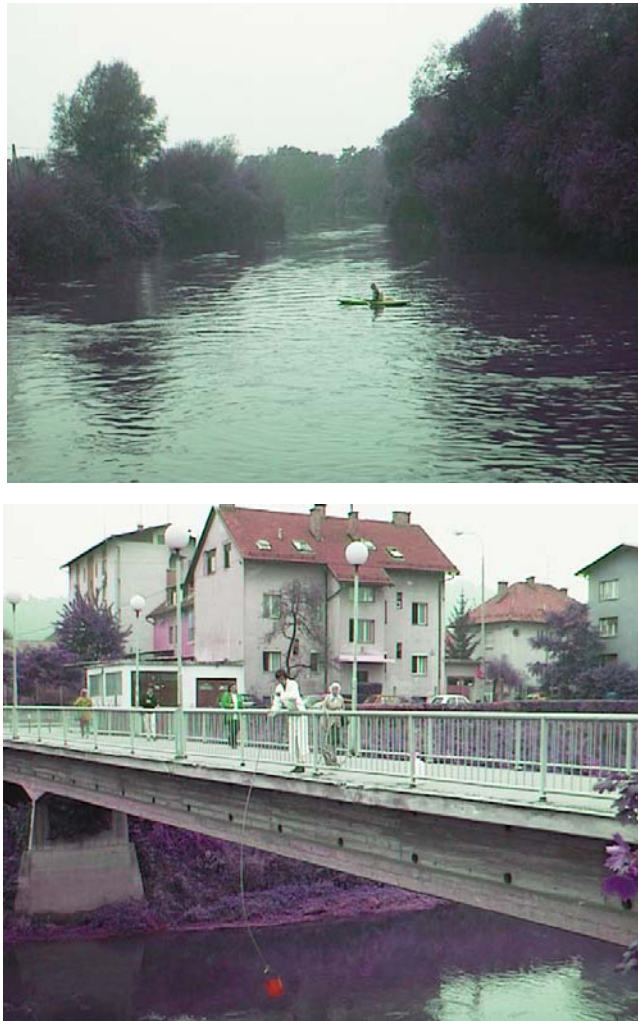
Tabela 1: Opis lokacij vzorčevalnih mest na izbranih rekah.

--	--

VZORČEVALNO MESTO	LOKACIJA
Ljubljana	pred bolnicami pri Šempetrskem mostu
	za bolnicami iz mostu za pešce pri tržnici Moste
	400 m po izlivu odpadnih vod iz ČN Zalog
ČN Zalog	vzorčevalec VO-KA
Sava	20 m nad pritokom Ljubljanice
	300 m pod pritokom Ljubljanice
Drava	pred mestom Maribor (Mariborski otok)
	za mestom Maribor (pri Malečniku)
Mura	pri maloobmejnem mejnem prehodu Sladki vrh



Slika 1. Vzorčevalna mesta na Ljubljani in Savi



Slika 2. Vzorčevalno mesto na Ljubljanici za ČN Zalog - vzorčenje s kajakom

Slika 3. Vzorčevalno mesto na Ljubljanici pri tržnici – vzorčenje z mosta



## 2.2. RADIOKEMIJSKA DOLOČITEV I-131

Jodidne ione adsorbiramo na anionski smoli, nato jih oksidiramo z NaClO v I<sub>2</sub>. Jod ekstrahiramo v CCl<sub>4</sub>. S ponovno redukcijo joda v jodid in po ekstrakciji v vodno fazo oborimo PdI<sub>2</sub>, čigar aktivnost merimo v umerjenem beta števcu z nizkim ozadjem. (ref. Analysenvorschrift für die Abtrennung von I-131 aus Milchproben: Institut für Strahlenhygiene des Bundesgesundheitsamtes, Ingolstädter Landstrasse 1. Neuherberg, München, 1986).

Instrument BERTHOLD 10-channel low-level  $\alpha, \beta$  counter je bil pred meritvami umerjen z referen\_ no raztopino I-131 R8/188/2 proizvajalca Amersham International.

Karakteristike števca:

- ozadje od 0.48 do 0,74 cpm
- meja detekcije za 4 litre vode je 1Bq/m<sup>3</sup>
- izkoristek štetja za I-131 je 15.9%

## 2.3. DOLOČITEV I-131 Z METODO VISOKOLOČLJIVE SPEKTROMETRIJE GAMA

Vzorci vode za merjenje na spektrometru gama smo pripravili na dva načina; pri prvem smo jodidne ione adsorbirali na anionsko smolo, ki smo jo prenesli v plastično posodico s premerom 6 cm do višine 10 oziroma 15 mm, zaprli, ustrezno označili in merili; pri drugem smo vodo direktno nalili v plastično posodico s premerom 9 cm do višine 2 cm in vzorec pripravili in merili na enak način kot prej.

Gama spektrometer je bil umerjen z referen\_ no raztopino I-131 R8/188/2 proizvajalca Amersham International.

Filtre od filtracije odpadne vode iz čistilne naprave Zalog smo merili direktno na detektorju sevanja gama, ki je bil umerjen z referenčnim filtrom 52535-359, firme Analytcs.

### 3. REZULTATI MERITEV

#### 3.1. DINAMIKA TERAPIJ V ČASU MERJENJA

##### LJUBLJANICA, SAVA in ČISTILNA NAPRAVA ZALOG

V Kliničnem centru na Oddelku za nuklearno medicino so v petek 4.9.1998 ambulantno aplicirali skupaj 225 mCi (8.3 GBq) I-131 petnajstim pacientom. Po podatkih štirje od teh pacientov, ki so prejeli skupno terapevtsko dozo 60 mCi (2.2 GBq), živijo na območju Ljubljanskega kanalizacijskega območja.

Dne 9.9.98 je ob 12. uri v UKC šest pacientov prejelo skupno terapevtsko dozo 140 mCi (5.2 GBq) I-131. Pacienti so bili hospitalizirani do 14.9.1998. Jod, ki so ga pacienti izločili iz organizma, je skupaj z ostalimi odpadnimi vodami po kanalizacijskem sistemu prispel do čistilne naprave v Zalogu in nato v reki Ljubljanico in Savo.

Na Onkološkem Inštitutu je v petek 4.9 en pacient prejel terapevtsko dozo I-131 100 mCi ( $3.7 \times 10^9$  Bq). Na posebnem bolnišničnem oddelku je bil do 7.9. in nato odpuščen. Doma je iz Štajerske.

##### DRAVA

V času vzorčenja so v Splošni bolnici Maribor enemu pacientu aplicirali izotop I-131, vendar leta stanuje izven območja mesta Maribor.

##### MURA

Dinamika terapij v avstrijskih bolnišnicah nam ni poznana.

#### 3.2. TABELE REZULTATOV

**TABELA 1:** Rezultati meritev specifične aktivnosti I-131 v rekah Ljubljanici in Savi, ter na čistilni napravi Zalog, 9. do 11. septembra

MESTO VZORČENJA	AKTIVNOST I-131 (Bq/m <sup>3</sup> )		
	9.september 1998	10.september 1998	11.september 1998
Ljubljana, Šempetrski most	< 1	< 1	9±1
Ljubljana, pri tržnici Moste	< 1	2.5±0.5	3.6±0.8
ČN Zalog	1250±10	21.200±30	5800±20
Ljubljana po izlivu odpadnih vod iz ČN Zalog, Cesta v Kresnice 11	7.5±1 (zjutraj)	220±2	60±2
	25±1 (popoldne)	295±2	150±2
Sava pred izlivom Ljubljanice, Cesta v Kresnice 30	< 1	< 1	< 1
Sava po izlivu Ljubljanice, Cesta v Kresnice 40	8.0±1	65±2	60±2

**TABELA 2:** Rezultati meritev specifične aktivnosti I-131 v rekah Muri in Dravi, 19. in 20. oktober

MESTO VZORČENJA	AKTIVNOST I-131 (Bq/m <sup>3</sup> )	
	19.oktober	20.oktober
Drava, otok	< 1	< 1
Drave, Malečnik	< 1	< 1
Mura, Sladki vrh	< 1	< 1

**TABELA 3:** Pretoki rek v času vzorčenja povzeti po podatkih Hidrometeorološkega zavoda

RS.

Datum	Pretok (m <sup>3</sup> /s)		Datum	Pretok (m <sup>3</sup> /s)	
	Ljubljanica	Sava		Drava	Mura
9.9.98	56	55	19.10.98	390	205
10.9.98	48	54	20.10.98	400	380
11.9.98	40	47	-	-	-

**TABELA 4:** Rezultati meritev specifične aktivnosti I-131 in Tc-99m v vzorcih filtriranih odpadnih vod in na filtrih iz ČN Zalog

Datum	Pretok odpadne vode (m <sup>3</sup> /h)	Temp. odpadne vode (°C)	Aktivnost I-131 v filtratu odpadne vode (Bq/m <sup>3</sup> )	Aktivnost I-131 na filtrih (Bq/m <sup>3</sup> )	Aktivnost Tc-99m na filtrih (Bq/m <sup>3</sup> )
9.9.98	4010	20	1250 ± 10	-	8 ± 2
10.9.98	4171	20	21200 ± 30	3 ± 1	4 ± 1
11.9.98	4217	20	5800 ± 20	2 ± 0.5	-

#### 4. KOMENTAR

I-131 se v rečnih vodah nahaja kot posledica diagnostičnih in terapevtskih postopkov nuklearne medicine. V okviru naloge smo na primeru rek Ljubljanice in Save ugotovili odvisnost specifične aktivnosti I-131 v rečnih vodah od dinamike medicinskih postopkov v Kliničnem Centru in na Onkološkem Inštitutu.

V točki 3.2. je opisana dinamika terapij z I-131 v času vzorčenja, v Tabeli 1, točka 3.2. pa so zbrani rezultati meritev specifične aktivnosti I-131 v rečnih in odpadni vodi. Rezultati meritev kažejo, da so specifične aktivnosti I-131 na vseh merjenih mestih, kjer smo pričakovali kontaminacijo, najvišje v četrtek, to je en dan po aplikaciji radioizotopa pacientom, sprejetim na posebni bolnišnični oddelek Kliničnega Centra. Ker ta bolnišnični oddelek še nima urejenega zaprtega sistema kanalizacije, se dve tretjini aplicirane doze v prvih treh dneh izločita iz organizma in se nekontrolirano izpuščata v okolje.(REF: ICRP 10).

Pacienti so v sredo 9.9.98 v KC prejeli skupno terapevtsko dozo 5.2 GBq, kar pomeni, da se je cca. 3 GBq I-131 v treh dneh izlilo v kanalizacijo. Iz podatkov v tabeli 4 lahko izračunamo, da smo z našimi meritvami zajeli 2.7 GBq I-131.

Vzorci rečne vode so enkratni, trenutni vzorci, vzorci odvzeti na čistilni napravi pa predstavljajo tri urno povprečje odpadne vode. Način vzorčenja nam ne omogoča določitve natančnejšega časovnega poteka izpuščanja I-131 v kanalizacijo, zato verjetno vrednost  $21200 \text{ Bq/m}^3$  ni najvišja. Z večjo pogostostjo meritev (vsaj 4-krat dnevno), bi lahko ugotovili dejansko največjo aktivnost I-131, saj iz podatkov za pretok odpadne vode lahko sklepamo, da pride odpadna voda iz UKC po kanalih na čistilno napravo že po nekaj urah.

Rezultati meritev nam kažejo, da na mestih, kjer I-131 nismo pričakovali, to je na Ljubljanici pred izlivom odpadnih vod v Zalogu (vzorčevalni mesti Šempeterski most in Moste) ter na reki Savi pred izlivom Ljubljanice, specifične aktivnosti I-131 niso zaznavne ali pa so zelo nizke.

Vzorec odpadne vode na merilnem mestu ČN Zalog je bil v sredo 9.9.98 odvzet zjutraj preden so v KC aplicirali I-131. Izmerjena aktivnost  $1250 \text{ Bq/m}^3$  torej ni posledica teh terapij, je pa lahko posledica terapij pacientov, ki so radioizotop prejeli že v petek 4.9.98 in so odšli domov.

V Tabeli 4 so posebej zbrani samo rezultati meritev na ČN Zalog. V tabeli navajamo tudi izmerjene aktivnosti Tc-99m. Dinamika terapij s tem radioizotopom nam ni poznana.

Na Onkološkem Inštitutu v Ljubljani posamezen pacient prejme mnogo večjo dozo I-131, kot pacienti v KC in je obvezno sprejet v posebni bolnišnični oddelek za nekaj dni. Izločki pacientov se zbirajo v zaprtem zadrževalnem bazenu in naj ne bi vplivali na aktivnost I-131 v odpadnih in rečnih vodah. Nadzora nad pacienti, ki Onkološki Inštitut zapustijo, ni. Dinamika sprejemanja pacientov na Onkološkem Inštitutu je odvisna od potreb.

Maksimalno dopustne aktivnosti radionuklidov v pacientu pri odpustitvi iz stacionarne zdravstvene organizacije smejo biti 0.55 GBq za I-131. Pacient, ki v terapijske namene prejme radionuklid aktivnosti večje kot 1.1 GBq, ostane v posebnem bolniškem oddelku, dokler aktivnosti ne padejo pod 0.55 GBq. (Pravilnik o dajanju v promet in uporabi radioaktivnih snovi, katerih aktivnost presega določeno mejo, rentgenskih in drugih aparatov, ki proizvajajo ionizirajoča sevanja, ter o ukrepih za varstvo pred sevanjem teh virov, Pravilnik Z4, Ur. l. SFRJ 40/86)

V tabeli 2 so zbrani rezultati meritev na rekah Dravi in Muri. Specifične aktivnosti I-131 so bile na vseh merjenih mestih pod mejo zaznavnosti.

V septembru in oktobru, ko smo predvidevali vzorčenje rečnih vod, v mariborski bolnišnici niso imeli pacientov, ki bi prejeli terapijo z I-131 in bi stanovali na območju mesta Maribor. Zaradi izredno obilnega jesenskega deževja in dinamike analiz, ki zahtevajo vzorčenje v začetku tedna, smo vzorce vode reke Drave zbirali v času, ko je bil njen vodostaj nekoliko višji kot običajno (tabela 3). Menimo, da bi meritve morali izvesti še takrat, ko bodo v bolnici potekale terapije pacientov, ki živijo na območju Maribora in bo vodostaj reke Drave normalen.

Na reki Muri iz enakih razlogov kot pri reki Dravi, optimalnega časa vzorčenja ni bilo možno izbrati.

Pravilnik o največjih mejah radioaktivne kontaminacije. (Z9) določa mejo letnega vnosa za radionuklide in njihove izvedene koncentracije. Izvedena koncentracija za vsebnost I-131 v pitni vodi 20000 Bq/m<sup>3</sup>. Na podlagi opravljenih meritev ne moremo določiti razmerja med dejansko in dovoljeno mejo letnega vnosa, ker ne poznamo natančnejšega časovnega poteka kontaminacije odpadne vode z I-131.

Ob upoštevanju rezultatov meritev lahko predpostavimo, da je vsakodnevna povprečna specifična aktivnost I-131 v odpadnih vodah na ČN Zalog okoli 4000 Bq/m<sup>3</sup>, kar je 20% dovoljene vrednosti v pitni vodi. Zato smatramo, da zaposleni na ČN niso neposredno ogroženi, iz stališča varovanja okolja in tudi zdravja ljudi pa priporočamo upoštevanje principa ALARA in čim več aktivnega I-131 zajeti že na viru, to je v bolnišnicah.

Če privzamemo, da se v ljubljanskih bolnicah porabi letno cca 90% celotnega uvoza izotopa <sup>131</sup>I (za leto 1996 znaša celotna aktivnost uvoženega <sup>131</sup>I 893 GBq (1)) ter da tako OI kot UKC nimata urejenih zadrževalnih bazenov, ter da dve tretjini aplicirane doze (8) odtečeta v ljubljansko kanalizacijo, ki ima povprečni pretok odpadne vode cca 4100 m<sup>3</sup>/h, je povprečna letna aktivnost <sup>131</sup>I na ČN Zalog cca 15 000 Bq/m<sup>3</sup>.

## 5. REFERENCE

1. Poročilo o jedrski in radiološki varnosti v Sloveniji v letu 1996, RUJV-PR-024
2. Radioaktivnost v življenjskem okolju Republike Slovenije za leto 1991
3. Radioaktivnost v življenjskem okolju Republike Slovenije za leto 1992
4. Radioaktivnost v življenjskem okolju Republike Slovenije za leto 1993
5. Radioaktivnost v življenjskem okolju Republike Slovenije za leto 1994
6. Radioaktivnost v življenjskem okolju Republike Slovenije za leto 1995
7. ICRP 30, Part 1
8. ICRP 2
9. ICRP 10
10. ISO 5667-6: Water quality – Sampling – part 6: Guidance on sampling of rivers and streams
11. Analysenvorschrift für die Abtrennung von I-131 aus Milchproben: ISH, Ingolstatter Landstrasse 1, Neuherberg, München, 1986
12. Pravilnik Z4, Ur.l. SFRJ 40/86
13. Pravilnik Z9