



Rijksinstituut voor Volksgezondheid  
en Milieu  
*Ministerie van Volksgezondheid,  
Welzijn en Sport*

# Radionucliden in het Nederlandse **rioolwater**

Een pilotstudie

RIVM-rapport 2023-0438





# **Radionucliden in het Nederlandse rioolwater**

Een pilotstudie

RIVM-rapport 2023-0438

## Colofon

© RIVM 2024

Delen uit deze publicatie mogen worden overgenomen op voorwaarde van bronvermelding: Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM), de titel van de publicatie en het jaar van uitgave.

DOI 10.21945/RIVM-2023-0438

Y. Szeto (auteur), RIVM  
C. Rosenbaum (auteur), RIVM

Contact:  
Yenny Szeto  
Stralingsonderzoek, Kennis en Beleid  
[yenny.szeto@rivm.nl](mailto:yenny.szeto@rivm.nl)

Dit onderzoek werd verricht in opdracht van de Autoriteit Nucleaire Veiligheid en Stralingsbescherming in het kader van onderzoeksprogramma radioactief afval en ontmanteling.

Dit is een uitgave van:  
**Rijksinstituut voor Volksgezondheid  
en Milieu**  
Postbus 1 | 3720 BA Bilthoven  
Nederland  
[www.rivm.nl](http://www.rivm.nl)

## Publiekssamenvatting

### **Radionucliden in het Nederlandse rioolwater**

Een pilotstudie

In Nederland mogen ondernemers onder bepaalde voorwaarden radioactieve stoffen lozen op het openbare riool. Dat zijn vooral ziekenhuizen met een afdeling nucleaire geneeskunde. Via patiënten komen de gebruikte radionucliden in het toilet terecht en dus in de rioolwaterzuiveringsinstallatie. Maar ook onderzoeksinstellingen en industrie lozen deze stoffen.

Radioactieve stoffen die in het afvalwater van bedrijven of industrie zitten, zijn op te sporen in de watermonsters van de rioolwaterzuiveringsinstallaties (RWZI's). Dat blijkt uit deze pilot van het RIVM. Dit was tot nu toe niet onderzocht in Nederland.

De pilot geeft een eerste indruk welke radionucliden in het rioolwater aantoonbaar zijn. In deze metingen zijn jodium-131 en lutetium-177 gevonden. Deze radionucliden komen van ziekenhuizen met een afdeling nucleaire geneeskunde.

Deze informatie geeft handvatten voor meer onderzoek. Bijvoorbeeld of RWZI-medewerkers onbedoeld aan radionucliden blootstaan. En of daarvoor beschermende maatregelen nodig zijn. Verder zou een meetnet kunnen worden opgezet door structureel bij alle RWZI's in Nederland radionucliden in rioolwater te meten. Met dit soort informatie kunnen onverwachte lozingen of een ongeval met straling worden opgespoord.

Voor de pilot is het systeem gebruikt dat tijdens de corona-epidemie in Nederland is opgezet om via de rioolwaterzuiveringsinstallaties te volgen hoeveel mensen er besmet zijn met het virus. Op basis van dit beperkte onderzoek is niet bekend in welke hoeveelheden radionucliden in Nederland in het riool te vinden zijn.

Het is nuttig om rioolwater op radioactieve stoffen te onderzoeken, omdat de nucleaire geneeskunde groeit en verandert. Dit komt onder andere door technologische ontwikkelingen. Ook zijn andere radionucliden in opkomst voor nieuwe medische behandelingen. Een voorbeeld is de inwendige bestraling van prostaatkanker met lutetium-177. Jodium-131 wordt al lange tijd gebruikt om aandoeningen van de schildklier te behandelen.

**Kernwoorden:** lozingen, radionucliden, rioolwater, nucleaire geneeskunde



## Synopsis

### **Radionuclides in Dutch wastewater**

#### A pilot study

Certain public bodies and private enterprises are allowed to discharge radioactive substances into the Dutch sewage system under strict conditions. Most of these substances come from hospitals, specifically from patients undergoing a nuclear medicine procedure. Such patients will discharge radioactive substances into the sewage system through toilet use. Ultimately, the radioactivity ends up in a wastewater treatment plant (WWTP). Other sources of the discharge of radioactive substances into the sewage system include research facilities and general industry.

In this RIVM pilot study, we show that radioactive substances in wastewater can be detected in the water sampled at the WWTPs. This has not been investigated before in The Netherlands.

This study provides an initial insight into the radionuclides that can be measured in wastewater samples. In our preliminary measurements, iodine-131 and lutetium-177 were detected. These radionuclides originate from hospitals with a nuclear medicine department.

The provided data offers guidance for further research. Such as, whether employees of a WWTP are exposed to radionuclides and if protection against this exposure is needed. In addition, a measurement network could be set up to gain knowledge on the Dutch radiological background value. This kind of knowledge could be used to identify unexpected discharges or incidents with radioactivity.

This research was conducted by using the COVID-19 monitoring infrastructure set up to analyse wastewater samples collected from WWTPs. Given the limitations of this study, the quantities of radionuclides present in the Dutch sewage remain unknown.

Research on radionuclides in wastewater is important, as nuclear medicine undergoes constant change. While iodine-131 has been used for decades to treat thyroid disorders, new nuclides are emerging for novel medical treatments. An example is the use of lutetium-177 for a new type of prostate cancer treatment.

Keywords: discharges, radionuclides, wastewater, nuclear medicine





## Inhoudsopgave

### **Samenvatting — 9**

#### **1 Inleiding — 11**

- 1.1 Aanleiding en hoofdvraag — 11
- 1.2 Opzet van de pilotstudie — 11
- 1.3 Afbakening — 13
- 1.4 Leeswijzer — 14
- 1.5 Dankwoord — 14

#### **2 Het Nederlandse afvalwaterbeheer — 17**

- 2.1 Nederlandse rioleringsstelsel — 17
- 2.2 De zuivering van rioolwater — 19
- 2.3 De Nationale Rioolwatersurveillantie — 21

#### **3 Radionucliden in het Nederlandse rioolwater — 23**

- 3.1 Ondernemingen met lozingsvergunning van radioactieve stoffen — 23
  - 3.1.1 Overzicht vergunninghouders — 24
  - 3.1.2 Het gebruik van betijktanks — 26
- 3.2 De route van medische isotopen naar het riool — 26
- 3.3 Medische isotopen in Nederland — 27
- 3.4 Monitoring radioactiviteit in Nederlands water — 30
  - 3.4.1 Metingen door waterschappen — 30
  - 3.4.2 Metingen door Rijkswaterstaat — 30
  - 3.4.3 Metingen bij drinkwaterbedrijven — 31

#### **4 Literatuuronderzoek — 33**

- 4.1 Internationale stralingsbeschermingsorganisaties — 33
- 4.2 Buitenlandse organisaties voor stralingsbescherming — 34
- 4.3 Wetenschappelijke literatuur — 36
  - 4.3.1 Beschreven soorten monsters en radionucliden — 36
  - 4.3.2 Methode van monstername — 36
  - 4.3.3 Meetresultaten — 38

#### **5 Methode proefmetingen — 41**

- 5.1 Mogelijk te detecteren radionucliden — 41
- 5.2 Gebruik van de NRS-infrastructuur — 42
- 5.3 Selectie rioolwaterzuiveringsinstallaties — 44
- 5.4 Selectie bemonsteringsdagen — 45
- 5.5 Keuze meettechnieken — 46
- 5.6 Monstervoorbereiding — 46
  - 5.6.1 Gammaspectrometrie — 46
  - 5.6.2 Liquid scintillation counting (LSC) — 47
- 5.7 Meettechnieken — 47
  - 5.7.1 Nuclide-specifieke gamma-analyse — 47
  - 5.7.2 Totaal alfa/bèta-analyse — 48

#### **6 Resultaten — 49**

- 6.1 Geschiktheid van de NRS-infrastructuur — 49
- 6.2 Meetresultaten — 50
  - 6.2.1 Meetserie 1 — 50

- 6.2.2 Meetserie 2 — 50
- 6.2.3 Meetserie 3 — 51
- 6.2.4 Meetserie 4 — 52

## **7 Discussie — 53**

- 7.1 Gedetecteerde radionucliden — 53
- 7.2 Omvang van de lozingen — 53
- 7.3 Aanbevelingen voor mogelijke toekomstige onderzoeken — 54
  - 7.3.1 Gevolgen van lozingen voor mens en milieu — 55
  - 7.3.2 Radiologische achtergrondwaarde in Nederlandse riool — 55
  - 7.3.3 Lozingen uit specifieke sectoren — 56
  - 7.3.4 Radionucliden in zuiveringsslib — 57

## **8 Conclusie — 59**

### **Literatuuroverzicht — 61**

### **Bijlage A Beschrijving van de waterschaps-RWZI's — 67**

### **Bijlage B Radionucliden in metingen van Rijkswaterstaat — 69**

### **Bijlage C Modelling activiteitsconcentratie — 70**

- C.1 Traject nucleaire-geneeskundige radionucliden — 70
- C.2 Het model — 72
- C.3 Invoerwaarden van parameters — 74
  - C.3.1 Parameters radionucliden — 74
  - C.3.2 Influentvolume ( $VW$ ) — 75
  - C.3.3 Tijdsperiodes  $\Delta t_1$  en  $\Delta t$  — 76
- C.4 Schatting activiteitsconcentratie in influent — 76

## Samenvatting

In Nederland mogen ondernemers onder bepaalde voorwaarden radioactieve stoffen lozen op het openbare riool. Momenteel is er weinig informatie beschikbaar over de daadwerkelijke hoeveelheden van deze stoffen in ons rioleringsstelsel. Tijdens de COVID-19-pandemie is de Nationale Riolerings-surveillance (NRS) van het RIVM opgezet, waarbinnen nog steeds structureel rioolwatermonsters worden verzameld. Omdat in deze monsters ook andere stoffen meetbaar kunnen zijn dan virusdeeltjes, is door RIVM een kleinschalige kwalitatieve studie naar radionucliden in rioolwater opgezet in opdracht van de Autoriteit Nucleaire Veiligheid en Stralingsbescherming (ANVS). In deze studie is onderzocht of radionucliden detecteerbaar zijn in watermonsters van de rioolwaterzuiveringsinstallaties (RWZI's).

Vanuit internationale stralingsbeschermingsorganisaties is beperkte documentatie vindbaar over radionucliden in ongezuiverd (inluent) rioolwater. Op het niveau van de nationale stralingsbeschermingsorganisaties zijn in een aantal ons omringende landen metingen gedaan aan rioolwater, hoewel dit niet landelijk is gebeurd. In de wetenschappelijke peer-reviewed-literatuur valt op dat deze voor het overgrote deel gaat over radionucliden voor medisch gebruik en wel over I-131. Uiteraard is Lu-177 als therapeutisch radionuclide zo recent in opkomst, dat nog weinig onderzoek is gedaan naar de activiteitsconcentratie ervan in rioolwater. De wetenschappelijke literatuur laat verder zien dat methodes en frequenties van bemonstering tussen studies sterk van elkaar verschillen.

De meeste ondernemers met een vergunning om radioactieve stoffen op het openbaar riool te lozen, zijn ziekenhuizen met een afdeling nucleaire geneeskunde. Lozingen vinden bijvoorbeeld plaats omdat patiënten van deze afdeling een deel van de toegediende radionucliden uitscheiden op het toilet. Naast ziekenhuizen lozen ook enkele onderzoeksinstellingen en bedrijven op het riool. Op basis van de locatie van deze vergunninghouders zijn vijf RWZI's geselecteerd om de aanwezigheid van radionucliden in hun rioolwater te meten. De kans op lozing, en dus ook het eventueel meten van radioactieve stoffen, is groter bij deze vergunninghouders. Op vier van de vijf geselecteerde RWZI's is een ziekenhuis aangesloten. Al deze ziekenhuizen voeren I-131 behandelingen uit. Twee van deze ziekenhuizen behandelen ook patiënten met Lu-177. Daarnaast lozen ook een onderzoeksinstelling en een bedrijf op één van de geselecteerde RWZI's. Er zijn in dit onderzoek in totaal elf rioolwatermonsters geanalyseerd op de aanwezigheid van radionucliden met gammaspectrometrie en *liquid scintillation counting* (LSC). Enkel het ongezuiverde rioolwater (inluent) is bemonsterd.

Naast het uitvoeren van metingen, is geschat welke radionucliden nog detecteerbaar zouden *kunnen* zijn in de huidige RWZI-watermonsters bij analyse in het radionuclidenlaboratorium. Er is gekeken naar 22 radionucliden uit de nucleaire geneeskunde. Bij deze schattingen is onder andere rekening gehouden met het biokinetische-model van het

radiofarmacon, de toedieningsdosis van het radiofarmacon, de tijd tussen lozing en analyse, en de verdunning van de activiteit door het afvalwater bij de RWZI.

Op basis van de schatting zouden er acht radionucliden, namelijk Sr-89, In-111, I-131, Sm-153, Er-169, Lu-177, Re-186 en Re-188, in detecteerbare hoeveelheden aanwezig kunnen zijn in de rioolwatermonsters bij analyse in het radionuclidenlaboratorium bij 3 dagen na de lozing.

In de rioolwatermonsters die in deze studie beschikbaar waren, zijn alleen I-131 en Lu-177 in detecteerbare hoeveelheden aangetroffen. De korter levenden radionucliden, waaronder ook het werkpaard van de nucleaire geneeskunde Tc-99m, zijn niet gedetecteerd, meest waarschijnlijk door de relatief lange tijd tussen bemonstering en analyse van circa 3 of 4 dagen.

Door ontwikkelingen op het gebied van de nucleaire geneeskunde zal in de toekomst de hoeveelheid behandelingen met radionucliden gaan toenemen en zullen ook nieuwe radionucliden aan het behandelingspectrum worden toegevoegd. Dit zal gevolgen hebben voor lozingen op het riool, die met onderzoek van rioolwater in kaart gebracht kunnen worden.

De mogelijkheden voor vervolgonderzoek naar radionucliden in afvalwater zijn op dit moment nog breed. Afhankelijk van het doel en de vraag van toekomstig onderzoek moeten geïnformeerde keuzes gemaakt worden voor bemonsteringslocaties (e.g. RWZI's of lozingspunten van instellingen), type monsters (e.g. influent-rioolwater, effluent rioolwater, zuiveringsslib), frequentie van monsternamen (e.g. incidenteel, jaarlijks, meerdere keren per jaar) en analysemethode (onder andere type metingen en tijd tussen bemonstering en analyse).

Voor een landelijk beeld van radionucliden in rioolwater is het nodig om in ieder geval alle RWZI's te onderzoeken waarop lozingen van radionucliden te verwachten zijn en daarnaast ter referentie een aantal RWZI's waar geen lozingen verwacht worden.

# 1 Inleiding

## 1.1 Aanleiding en hoofdvraag

Tijdens de uitbraak van coronavirus SARS-CoV-2 is surveillance van het rioolwater op virusdeeltjes ingesteld (Nationale Rioolwatersurveillance, NRS). In 2023 werden hiervoor nog steeds vier keer per week circa 300 monsters bij het RIVM ingeleverd [1]. Deze monsters kunnen breder worden ingezet, omdat ze naast meetbare virusdeeltjes nog andere informatie kunnen geven, bijvoorbeeld over de aanwezigheid van radioactieve deeltjes in het rioolwater.

In Nederland is het toegestaan om onder strikte voorwaarden radioactieve stoffen te lozen op het openbare riool. Een voorbeeld hiervan zijn ziekenhuizen met een afdeling nucleaire geneeskunde. Een deel van de toegepaste medische isotopen wordt namelijk door patiënten uitgescheiden via urine en/of ontlasting. De huidige samenstelling van radioactieve stoffen in het Nederlandse rioolwater is onbekend. Kennis hierover kan informatie geven over de omvang van lozingen op het riool en hoe deze variëren in de tijd, bijvoorbeeld door ontwikkelingen in sectoren die radioactieve stoffen lozen. Om inzicht te krijgen in de activiteitsconcentraties van radionucliden in rioolwater zijn metingen nodig. Bovendien kunnen deze metingen ook informatie opleveren die de mogelijkheid scheppen om dosisberekeningen voor blootstelling uit te voeren. Blootstelling kan bijvoorbeeld voorkomen tijdens of na het zuiveren van rioolwater bij een rioolwaterzuiveringsinstallatie (RWZI). Omdat gezuiverd rioolwater wordt geloosd op het oppervlaktewater, kunnen aanwezige radionucliden zich verder verspreiden in het milieu. Radionucliden in het rioolwater kunnen zich ook ophopen bij het doorlopen van het zuiveringsproces in bijvoorbeeld filters en slib, wat tot blootstelling van medewerkers zou kunnen leiden.

De Autoriteit Nucleaire Veiligheid en Stralingsbescherming (ANVS) heeft het RIVM opdracht gegeven om een kleinschalige studie op te zetten waarin onderzocht wordt of radionucliden detecteerbaar zijn in de rioolwatermonsters bemonsterd voor het NRS-meetprogramma. De hoofdvraag van deze pilotstudie luidt:

### **Hoofdvraag**

*Zijn radioactieve stoffen in rioolwatermonsters uit het NRS-meetprogramma te detecteren, en zo ja, in welke mate zijn ze aanwezig?*

De primaire focus van deze studie ligt op het kwalitatieve aspect met de nadruk op de aanwezigheid van medische isotopen.

## 1.2 Opzet van de pilotstudie

De opzet van deze pilotstudie is om met een beperkt aantal proefmetingen de hoofdvraag te beantwoorden. Hiertoe is het belangrijk om voorafgaand aan de metingen te onderzoeken waar en wanneer de

waarschijnlijkheid het hoogst is om ook daadwerkelijk radioactiviteit te kunnen meten in het rioolwater. Als onderdeel hiervan is literatuuronderzoek gedaan. Verder is in dit onderzoek rekening gehouden met de mogelijkheden binnen de bestaande bemonsteringsinfrastructuur die de NRS heeft opgezet en de beschikbare meetinstrumenten binnen het RIVM-radionuclidenlaboratorium.

Een belangrijk deel van dit onderzoek omvatte de selectie van geschikte RWZI's voor proefmetingen in hun rioolwater. Om deze reden is het systeem van rioolwaterzuivering in kaart gebracht en is onderzocht welke type ondernemingen radioactiviteit (mogen) lozen. Verschillende (Nederlandse) literatuur, zoals rapporten, artikelen en documenten, zijn hiervoor geraadpleegd. De volgende deelvragen zijn hierbij beschouwd:

#### **Deelvraag i**

*Hoe ziet het systeem van rioolwaterzuivering in Nederland eruit?*

#### **Deelvraag ii**

*Welke instellingen/ondernemingen lozen mogelijk radioactiviteit op het riool?*

#### **Deelvraag iii**

*Worden er momenteel al radioactiviteitsmetingen uitgevoerd in het kader van het monitoringsprogramma van de RWZI's of de waterschappen?*

#### **Deelvraag iv**

*Welke informatie over radionucliden in rioolwater is bekend in de wetenschappelijke literatuur?*

Voor de uitvoering van de proefmetingen, is gebruikgemaakt van de bestaande NRS-infrastructuur (het proces van bemonstering bij een RWZI tot aan de levering van de watermonsters bij het NRS-laboratorium). Om radioactiviteit te kunnen meten in de rioolwatermonsters die de NRS al ontvangt voor hun eigen onderzoek, is een aantal aanpassingen gedaan in de infrastructuur. Hierbij is de volgende deelvraag beschouwd:

#### **Deelvraag v**

*Welke al beschikbare of te nemen monsters uit het NRS-meetprogramma zijn geschikt voor een proefmeting van radioactiviteit in rioolwater? Waar (welke RWZI's) en wanneer moeten de monsters genomen worden?*

Tijdens de proefmetingen is de geschiktheid van de NRS-infrastructuur voor de radionuclidenmetingen getest en geoptimaliseerd. Hierbij is de locatie en het moment van monsterafname geselecteerd op basis van de waarschijnlijkheid om radioactiviteit te kunnen meten.

Niet alle geloosde radioactieve stoffen zullen in detecteerbare hoeveelheden aanwezig zijn in het rioolwater. Enerzijds komt dat doordat soms kleine hoeveelheden worden geloosd, die vervolgens sterk verdund worden in het totale rioolwater dat naar een RWZI wordt afgevoerd. De concentratie van een radionuclide kan dan onder de detectiegrens van de gebruikte meettechniek komen. Anderzijds neemt de activiteitsconcentratie ook af door radioactief verval. Doordat er tijd zit tussen het bemonsteren van rioolwater bij een RWZI en het daadwerkelijk meten van dit watermonster in een radionuclidenlaboratorium (meerdere dagen), zal bij de meting een deel van de bemonsterde radionucliden niet meer meetbaar aanwezig zijn. In deze pilotstudie is daarom ook de volgende deelvraag beschouwd:

#### **Deelvraag vi**

*Welke radionucliden zijn naar verwachting aantoonbaar in een rioolwatermonster?*

Om deze deelvraag te beantwoorden is een model opgesteld om de activiteitsconcentratie van verschillende radionucliden in rioolwater te berekenen, zowel bij binnenkomst bij de RWZI als op het moment van de meting op het radionuclidenlaboratorium. De berekeningen betreffen orde-grootte-schattingen, vanwege aanzienlijke onzekerheden in bepaalde parameters. Deze schattingen zijn gebruikt in de discussie van de meetresultaten en bij het beoordelen van de in deze pilotstudie toegepaste bemonsteringsinfrastructuur.

Voor het beantwoorden van de hoofdvraag zijn vier verschillende reeksen metingen uitgevoerd. Per reeks zijn rioolwatermonsters van twee of drie RWZI's gemeten met vloeistofscintillatie en gammaspectrometrie. De eerste drie meetseries waren gericht op optimalisatie van de NRS-infrastructuur voor de meting van de radionucliden in RWZI watermonsters. De laatste serie was specifiek gericht op de detectie van het radionuclide lutetium-177 (Lu-177) in het rioolwater. Lu-177 gaat naar verwachting in de nabije toekomst bij de behandeling van (prostaat)kanker veelvuldig worden ingezet. De metingen richten zich op het beantwoorden van volgende deelvraag:

#### **Deelvraag vii**

*Welke radionucliden zijn aantoonbaar in een proefmonster met gammaspectrometrie? Zijn alfa- en/of bèta-stralers meetbaar in een proefmonster met vloeistofscintillatie (liquid scintillation counting, LSC)?*

### **1.3 Afbakening**

De huidige opdracht heeft zich beperkt tot het meten van het ongezuiverde rioolwater (influent), zoals dat al is en wordt verzameld in de infrastructuur van de NRS. Andere (bij)producten bij het zuiveringsproces zoals het zuiveringslib en het gezuiverde water (effluent) vielen buiten de scope van dit project.

Slechts een aantal RWZI's is in onze proefmetingen geïnccludeerd. Van de ruim 300 RWZI's zijn van vijf RWZI's rioolwatermonsters

geanalyseerd. Wij hebben ons beperkt tot het analyseren van in totaal elf verschillende watermonsters.

Er is voor gekozen om de rioolwatermonsters niet biologisch inactief te maken voor de proefmetingen. Hierdoor zijn sommige meettechnieken niet inzetbaar vanwege biologische veiligheid binnen het radionuclidenlaboratorium van het RIVM. Voor onze studie hebben wij ons beperkt tot gammaspectrometrie voor de identificatie van nuclide-specifieke gammastralers en vloeistofscintillatie (*liquid scintillation counting*, LSC) voor detectie van alfa- en bèta-straling. Het ontwikkelen van nieuwe meetprotocollen voor de influentmonsters is buiten de scope van deze pilotstudie. Het gebruik van standaard meetprotocollen betekent in de praktijk dat het zwevende stof in de monsters wel gemeten wordt met gammaspectrometrie, maar niet met LSC.

Voor de schattingen van de activiteitsconcentraties in influent hebben wij ons beperkt tot de medische radionucliden die zijn toegepast bij de afdeling nucleaire geneeskunde. Alleen radionucliden die onder de declareerbare zorg vallen en een enkele veelbelovende radionucliden die in klinische studies zijn gebruikt, zijn in dit deel van onze studie opgenomen.

Meetresultaten zijn gerapporteerd in activiteitsconcentraties; er zijn in deze pilotstudie geen dosisberekeningen uitgevoerd.

#### **1.4 Leeswijzer**

Dit rapport begint met een beschrijving van het Nederlandse afvalwaterbeheer, inclusief de Nationale Rioolwatersurveillance (hoofdstuk 2). In hoofdstuk 3 is beschreven welke ondernemers radionucliden op het riool lozen, en staat er meer informatie over deze radionucliden. Hoofdstuk 4 bevat de resultaten van een literatuurstudie naar radionucliden in rioolwater. Deze drie hoofdstukken geven achtergrondinformatie voor de pilotstudie.

De experimentele opzet van deze pilotstudie, van bemonstering tot meting in het radionuclidenlaboratorium, wordt beschreven in hoofdstuk 5. Het model voor het berekenen van activiteitsconcentratie in influent wordt ook besproken in hoofdstuk 5. De resultaten van de pilotstudie staan in hoofdstuk 6. In de discussie (hoofdstuk 7) worden de resultaten besproken, en zijn verschillende onderwerpen belicht die mogelijk van belang kunnen zijn in een toekomstig onderzoek. In hoofdstuk 8 zijn de conclusies opgenomen.

In de bijlagen is meer informatie te vinden over de RWZI's (Bijlage A), radioactiviteitsmetingen uitgevoerd door Rijkswaterstaat (Bijlage B) en het gebruikte model om activiteitsconcentraties in rioolwater te berekenen (Bijlage C).

#### **1.5 Dankwoord**

Deze studie is uitgevoerd in nauwe samenwerking met de Nationale Rioolwater Surveillance (NRS) en het radionuclidenlaboratorium van het RIVM. De auteurs bedanken Erwin Roex (NRS), Jeroen Korevaar (NRS), Peter Bosch (radionuclidenlaboratorium) en hun team voor deze



samenwerking. Daarnaast bedanken wij de medewerkers van de door ons bezochte RWZI voor de informatieve rondleiding. Verder bedanken wij drie collega's voor hun bijdrage: Patricia Bekhuis voor het inzichtelijk krijgen van het vergunningsstelsel, Marloes Velsma voor haar inbreng van medische kennis en Teun van Dillen voor zijn kritische blik op ons model. Als laatste een speciale dank aan onze collega Marte van der Linden voor haar waardevolle bijdrage bij het tot stand brengen van dit rapport.



## 2 Het Nederlandse afvalwaterbeheer

Dit hoofdstuk beschrijft het Nederlandse rioleringsstelsel en het zuiveringsproces van rioolwater. Paragraaf 2.3 beschrijft de NRS.

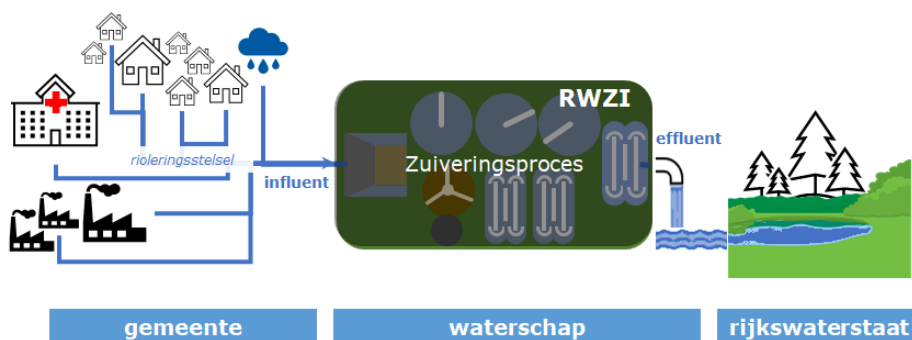
### Samenvatting

Antwoord op deelvraag i: *Hoe ziet het systeem van rioolwaterzuivering in Nederland eruit?*

De waterschappen zijn verantwoordelijk voor het zuiveren van rioolwater en beheren ruim 300 RWZI's. Het zuiveringsproces is niet specifiek gericht op het verwijderen van radionucliden. Het gezuiverde rioolwater wordt geloosd op het oppervlaktewater. Bij ongeveer 2/3 van de rioleringsystemen wordt ook regenwater opgevangen. Bij hevige regenval kan de capaciteit van de RWZI onvoldoende zijn, waardoor ook ongezuiverd rioolwater op het oppervlaktewater wordt geloosd (overstort).

### 2.1 Nederlandse rioleringsstelsel

In Nederland wordt jaarlijks meer dan 1,9 miljard m<sup>3</sup> afvalwater<sup>1</sup> op het riool geloosd [2]. Het afvalwater is niet alleen afkomstig uit huizen of bedrijven. Het bevat ook regenwater en in de riolering infiltrerend water met straatvuil. Het rioolwater dat een rioolwaterzuiveringsinstallatie (RWZI) binnenkomt, wordt het influent genoemd. Voordat het rioolwater op het oppervlaktewater wordt geloosd, wordt het gezuiverd. Het gezuiverde rioolwater wordt het effluent genoemd.



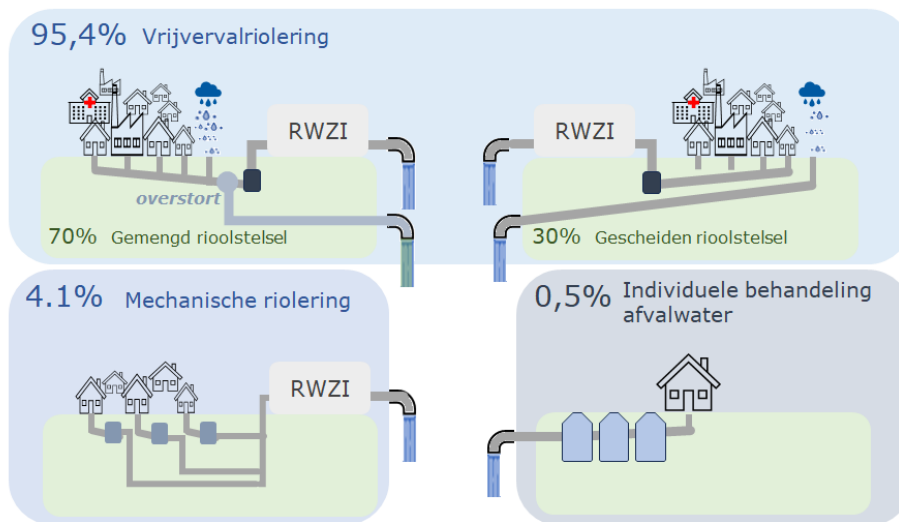
Figuur 2-1 Schematische weergave van de verantwoordelijkheden van de diverse overheden voor het reinigen van rioolwater en voor het toezicht houden op de kwaliteit van ons water.

Voor de verschillende stappen in het proces zijn verschillende overheden verantwoordelijk, zie Figuur 2-1. De gemeenten zorgen voor de infrastructuur van de afvoer van zowel het riool- als regenwater. Voor het zuiveren van het rioolwater zijn de 21 Nederlandse waterschappen

<sup>1</sup> Afvalwater uit industrie die niet op het openbare riool lozen, zijn niet opgenomen in deze cijfers, evenals regenwater dat via een gescheiden rioleringsstelsel wordt afgevoerd (zie Figuur 2-2).

verantwoordelijk. Ook zijn de waterschappen verantwoordelijk voor de regionale wateren waar de meeste RWZI's het effluent op lozen. Rijkswaterstaat houdt onder andere toezicht op de kwaliteit van het Rijks(opper)vlakte)water waar het effluent uiteindelijk terechtkomt.

Met 99,7% van de huishoudens aangesloten op een afvalwatersysteem, heeft Nederland de hoogste aansluitingsgraad van Europa [3]. Het gemeentelijke rioleringsysteem voert zowel het afvalwater uit woningen en bedrijfspanden als regenwater af via pijpen. Er zijn voornamelijk twee soorten gemeentelijke rioleringsystemen, zie Figuur 2-2. Het meest voorkomende (95,4%) is de vrijvervalriolering die gebruikmaakt van de zwaartekracht om het water te transporteren. Er bestaan twee soorten vrijvervalrioleringen, namelijk gemengd en gescheiden. Bij een gemengd systeem komt het regenwater in hetzelfde hoofdriool terecht als het afvalwater. Als er veel regen valt, kan het voorkomen dat de zuiveringsinstallatie de grote hoeveelheden water niet aan kan. De zuiveringsinstallaties hebben namelijk een maximale hoeveelheid water die aangevoerd en verwerkt kan worden (hydraulische capaciteit). Om overbelasting te voorkomen is een overstort geplaatst, waardoor een gedeelte van het ongezuiverde water meteen het oppervlaktewater ingaat. Door gebruik te maken van een gescheiden systeem, kan overstorting ondervangen worden. Het afvalwater en regenwater worden dan in verschillende pijpen afgevoerd. Het regenwater wordt in dit geval dan direct op het oppervlaktewater geloosd.



Figuur 2-2 De verschillende rioleringsystemen met het aansluitingspercentage in Nederland.

Wanneer vrijvervalriolering niet mogelijk is, zoals in sommige buitengebieden, wordt gebruikgemaakt van een mechanisch systeem. Het afvalwater wordt dan verplaatst door bijvoorbeeld een drukverschil in plaats van de zwaartekracht. Slechts 4,1% van de aansluitingen betreft een mechanisch systeem.

Bij 0,5% van de woningen en bedrijven is een aansluiting op het gemeentelijke rioleringsysteem niet mogelijk. Nagenoeg 80% hiervan

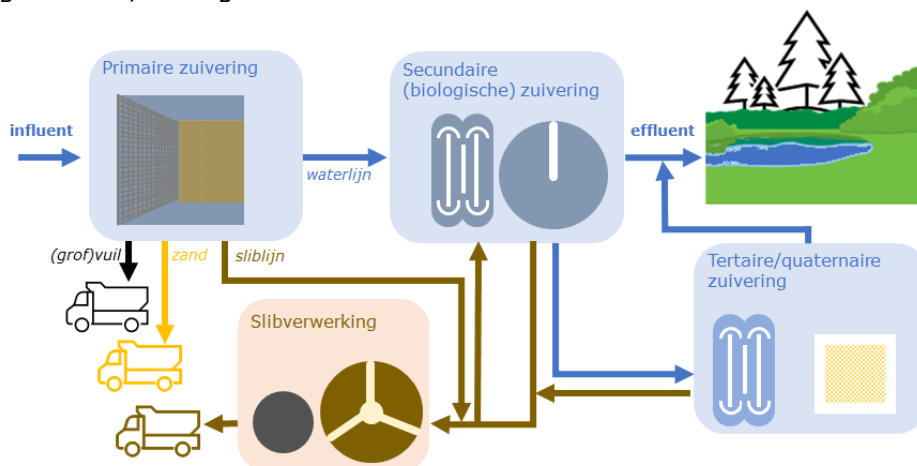
gaat alsnog gezuiverd het milieu weer in via het zogeheten Individuele Behandeling van Afvalwater (IBA) systeem. Het overige afvalwater verdwijnt ongezuiverd in het milieu.

## 2.2 De zuivering van rioolwater

Via het gemeentelijke rioleringsstelsel komt afvalwater uit bij een RWZI. Onder beheer van met name de 21 waterschappen, zuiveren de RWZI's het aangevoerde rioolwater [4]. Er zijn in totaal 315 RWZI's<sup>2</sup> die het rioolwater zuiveren, waarvan er slechts twee (Bruggehof en Schiphol) niet vallen onder het beheer van een waterschap maar onder particulieren [5]. De verzorgingsgebieden van de RWZI's zijn gepubliceerd op de website van Centraal Bureau voor de Statistiek [5] en worden iedere jaar geactualiseerd.

Een RWZI krijgt per dag een gemiddelde hoeveelheid influent aangevoerd, het volumedebiet  $Q_{\text{influent}}$  [ $\text{m}^3 \text{dag}^{-1}$ ]. De variatie in  $Q_{\text{influent}}$  tussen de RWZI's is vrij groot, namelijk  $4,5 \cdot 10^2 \text{ m}^3 \cdot \text{dag}^{-1}$  voor de kleinste RWZI en  $2,1 \cdot 10^5 \text{ m}^3 \cdot \text{dag}^{-1}$  voor de grootste RWZI (ongeveer een factor 450 verschil). De mediaan  $\mu_{\text{infl}}$  van het volumedebiet over alle RWZI's is  $9,0 \cdot 10^3 \text{ m}^3 \cdot \text{dag}^{-1}$  [6]. Meer informatie over de 313 waterschaps-RWZI's is te vinden in Bijlage A.

Het zuiveringsproces van het rioolwater, het influent, gebeurt in verschillende stappen<sup>3</sup> [7], waarbij het water steeds verder wordt gezuiverd, zie Figuur 2-3.



*Figuur 2-3 De verschillende (globale) stappen van het zuiveringsproces van het rioolwater, het influent, bij een RWZI. Het influent gaat bij de primaire zuivering achtereenvolgend door roosters, (zand)vangers en bezinktanks, waar het zichtbare vuil wordt verwijderd. Het vuil (grofvuil, zand en slib) wordt apart verzameld en het water (waterlijn) gaat verder door naar het secundaire zuiveringsproces (beluchtingstank en nabezinktank) voor biologische zuivering. Bij sommige RWZI's wordt het water verder gezuiverd (tertiaire en quaternaie zuivering), maar vaak wordt het gezuiverde water (het effluent) na het secundaire zuiveringsproces geloosd op het oppervlaktewater. Het slib (sliblijn) dat ontstaat bij de verschillende zuiveringsstappen wordt hergebruikt bij de secundaire zuivering of verwerkt voor andere doeleinden.*

<sup>2</sup> Data komen uit 2022.

<sup>3</sup> Informatie verkregen tijdens werkbezoek aan een RWZI.

Het proces begint bij de **primaire zuivering**, waar het zichtbare vuil groter dan 0,2 mm wordt verwijderd in verschillende stappen. Het grovere vuil, bijvoorbeeld papier en plastic, wordt als eerste verwijderd en bij elke volgende stap wordt steeds kleiner vuil, zoals zand en slib, van het water gescheiden. Nadat de meeste zichtbare stoffen zijn verwijderd, begint het proces van de **secundaire (biologische) zuivering**. Bij deze secundaire zuivering wordt gebruikgemaakt van micro-organismen om het organisch materiaal af te breken. Bij dit proces ontstaat ook slib. Het slib wordt grotendeels weer teruggepompt naar het begin van deze zuiveringsstap, vanwege zijn hoge concentratie aan bruikbare micro-organismen. Na deze stap is het afvalwater meestal schoon genoeg om op het oppervlaktewater geloosd te worden. Het gezuiverde water dat geloosd wordt, wordt het effluent genoemd. Bij sommige RWZI's wordt het water na de secundaire zuivering verder gezuiverd. Een **tertiaire (biologische) zuivering** wordt toegepast om de nutriëntconcentraties verder terug te dringen om zo alsnog te voldoen aan de lozingsisen, of om het teruggewonnen fosfaat uit rioolwater te gebruiken in meststoffen. Als laatste kan er een **quaternaire (na)zuivering** plaatsvinden. Dit proces zorgt ervoor dat de gehalten van de resterende stoffen, met name microverontreinigingen, veel lager worden en/of de hoeveelheid ziekteverwekkende kiemen nog verder verminderd wordt. De doorlooptijd van het rioolwater door de zuiveringsprocessen is RWZI-specifiek en varieert ook met de dag, aangezien deze tijd ook afhangt van het aangevoerde volume. Typisch is de doorlooptijd in de orde van uren.

Het verwijderde vuil uit het rioolwater, bijvoorbeeld grofvuil, slib en zand, wordt apart verzameld. Het slib dat ontstaat bij de zuiveringsprocessen is een mengsel van vuil, micro-organismen en water en wordt bij de RWZI's nog verwerkt tot een droog compact geheel. Jaarlijks produceren de RWZI's samen bijna 1,4 miljard kg ontwaterd slib [8]. Slib wordt deels gebruikt als brandstof [9] om de RWZI te voorzien van energie. Het resterende slib wordt net als het andere vuil door verschillende partijen opgehaald. Uit dit slib wordt door sommige bedrijven nog geprobeerd om grondstoffen te winnen. De rest wordt uiteindelijk verbrand.

Het influent wordt niet speciaal gezuiverd op de aanwezigheid van radionucliden. Radionucliden kunnen zich tijdens transport door het riool en tijdens het zuiveringsproces echter wel hechten aan vaste stof. De radionucliden blijven zowel deels achter bij de verschillende zuiveringscomponenten (bijvoorbeeld roosters, tanks en leidingen) als bij de afgescheiden bijproducten (grofvuil, zand en slib). De rest van de radionucliden stroomt met het effluent mee het oppervlaktewater in. De verschillende bijproducten worden apart verzameld in containers en worden pas na enkele weken tot maanden opgehaald. Hierin kunnen dus ook radionucliden zitten. Daarnaast kunnen radionucliden zich ook ophopen binnen de verschillende zuiveringscomponenten. De uiteindelijke activiteitsconcentratie van radionucliden in bijproducten of zuiveringscomponenten hangt ook af van de halveringstijd.

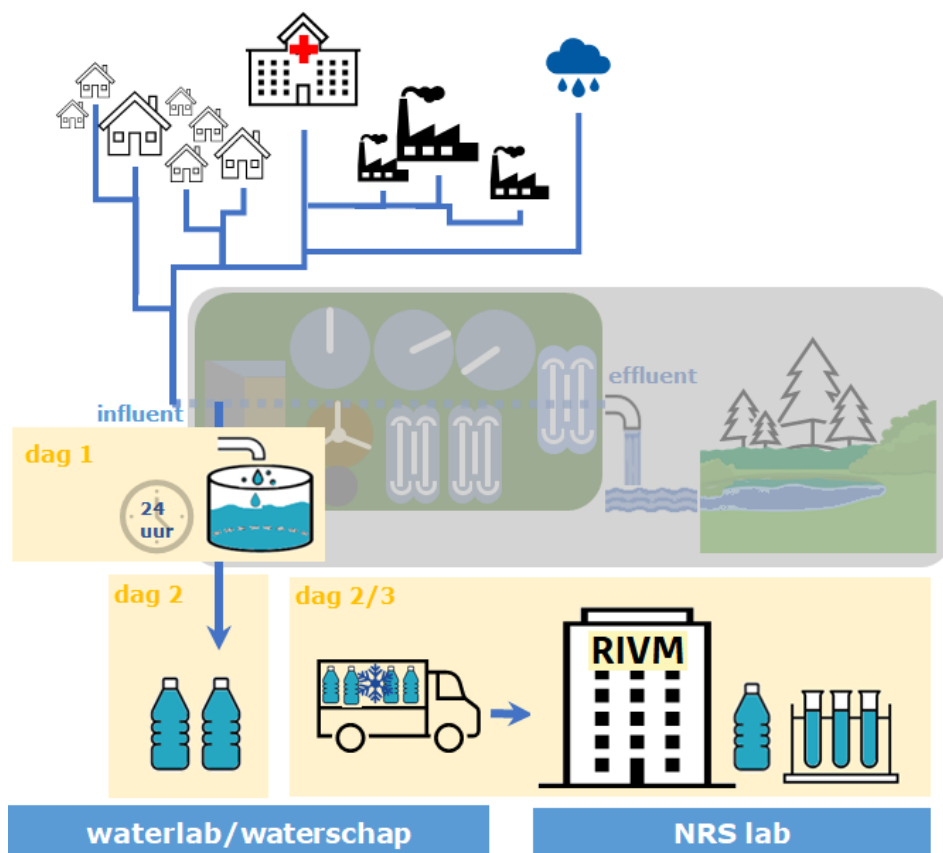
## 2.3 De Nationale Rioolwatersurveillance

Sinds 2020 wordt in het kader van de Nationale Rioolwatersurveillance (NRS) meerdere dagen per week<sup>4</sup> influent bemonsterd en geanalyseerd voor de monitoring van het coronavirus SARS-CoV-2. Dit gebeurt bij alle RWZI's die onder het beheer van de waterschappen vallen. De verschillende stappen in dit proces van bemonstering tot analyse, en de bijbehorende verantwoordelijkheden, worden in dit rapport de NRS-infrastructuur genoemd.

De NRS-infrastructuur begint bij de bemonstering van het influent, zie Figuur 2-4. Dit wordt uitgevoerd door een van de vijf waterlaboratoria in opdracht van de waterschappen [10], conform NEN 6600-1 [11] of door de waterschappen zelf. De bemonsteringsdagen van het influent worden ingepland door deze waterlaboratoria. Gedurende 24 uur worden deelmonsters van het influent genomen die qua hoeveelheid evenredig zijn met het debiet van dat moment (24-uurs debiet-proportionele monsters). Deze monsters worden opgeslagen in de bemonsteringskast. Na 24 uur wordt er een verzamelmonster gemaakt uit de verzamelde watermonsters, wat een afspiegeling geeft van de influent-samenstelling van die dag (dag 1). De gebruikte bemonsteringskasten zijn geschikt voor meerdere 24-uursbemonsteringen. Het bemonsteringspunt zit meestal na het grofvuilrooster. Bij RWZI's waar dat vanwege gebrek aan ruimte niet mogelijk is, zijn de bemonsteringskasten voor het grofvuilrooster geplaatst.

De waterlaboratoria scheppen vervolgens (dag 2) de 24-uurs-monsters over in verschillende flessen en vervoeren deze dezelfde dag (dag 2) of de dag erna (dag 3) gekoeld naar het NRS-laboratorium van het RIVM in Bilthoven. Dit transport gebeurt alleen op doordeweekse dagen. Bemonsteringen die gedaan zijn op vrijdagen en zaterdagen worden pas op maandag geschept en vervolgens vervoerd. Van elke RWZI wordt voor het NRS-meetprogramma 500 ml monster per keer aangeleverd. Van deze 500 ml wordt ongeveer 200 ml voor het NRS-onderzoek naar COVID-19 gebruikt. De overige 300 ml kan doorgaans beschikbaar worden gesteld voor andere onderzoeken. De monsters bevatten biologische agentia. Het NRS-laboratorium is toegerust voor het verwerken van dergelijke monsters.

<sup>4</sup> Sinds september 2020 werd er wekelijks bemonsterd en opgeschaald tot vier keer per week in september 2021. Vanaf begin 2023 begon de afschaling tot twee keer per week aan het einde van 2023. Vanaf januari 2024 wordt er gemiddeld 1,4 keer per week bemonsterd.



Figuur 2-4 De Nationale rioolwatersurveillance (NRS)-infrastructuur van bemonstering van het ongezuiverde rioolwater (influent) tot aan de analyse bij het NRS-laboratorium. Op dag 1 wordt een 24-uurmonster samengesteld. Op dag 2 wordt hieruit een deel overgeschept in flessen door de waterlaboratoria. Het transport naar het RIVM vindt plaats op dag 2 of 3.



### 3 Radionucliden in het Nederlandse rioolwater

Dit hoofdstuk geeft achtergrondinformatie over hoe en welke radionucliden hun weg vinden naar het rioleringsstelsel, welke route deze nucliden doorlopen na de lozing op het riool en of deze nucliden al worden gemonitord. De nadruk ligt op medische isotopen.

#### Samenvatting

Antwoord op deelvraag ii: *Welke instellingen/ondernemingen lozen mogelijk radioactiviteit op het riool?*

Tot 10 radiotoxiciteitsequivalent voor ingestie ( $Re_{ing}$ ) per jaar kan vergunningvrij geloosd worden op het openbare riool. Daarboven is een vergunning nodig. De grootste groep vergunninghouders zijn ziekenhuizen met een afdeling nucleaire geneeskunde. Daarnaast is er ook een kleine groep onderzoeksinstellingen en bedrijven met een dergelijke vergunning.

Antwoord op deelvraag iii: *Worden er momenteel al radioactiviteitsmetingen uitgevoerd in het kader van het monitoringsprogramma van de RWZI's of de waterschappen?*

Er zijn momenteel geen routinematige metingen van radioactiviteit in monsters (influent, effluent of slib) van RWZI's in Nederland.

#### 3.1 Ondernemingen met lozingsvergunning van radioactieve stoffen

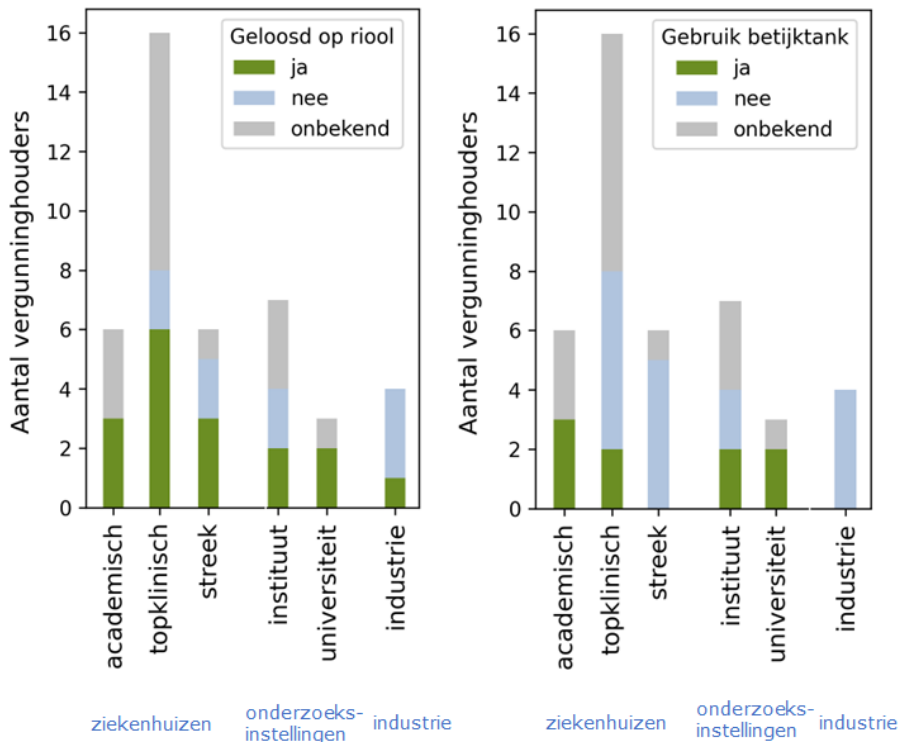
In Nederland zijn de wetten rondom handelingen met radioactieve stoffen opgenomen in de Kernenergiewet (Kew) [12]. Dit is om onder andere de leden van de bevolking te beschermen tegen de nadelige gevolgen van ioniserende straling. Een vergunning kan verplicht zijn bij lozingen in lucht, oppervlaktewater en/of openbaar riool. Een vergunning is verplicht als de totale geloosde activiteit naar het riool per kalenderjaar groter of gelijk is aan 10 radiotoxiciteitsequivalent voor ingestie ( $Re_{ing}$ ). De activiteit van de radionucliden wordt hierbij gecorrigeerd voor de fysische halveringstijd [13].

Bij een lozingsactiviteit op het openbare riool die hoger dan of gelijk is aan 100  $Re_{ing}$  per kalenderjaar [14] [15], is een ondernemer daarnaast ook verplicht om lozingsbeperkende maatregelen te treffen. Een dergelijke maatregel is een betijktank (zie paragraaf 3.1.2). In het Besluit basisveiligheidsnormen stralingsbescherming (Bbs) [13] staan de regels hierover verder uitgewerkt. En in de ANVS-verordening basisveiligheidsnormen stralingsbescherming (Bijlage 10, onderdeel 4) [14] staan de rekenregels die de ondernemers kunnen gebruiken voor hun vergunningsaanvraag. De verwachting is dat de kans groter is om radioactiviteit te meten in het afvalwater van deze vergunninghouders dan de niet-vergunde ondernemingen. Ons onderzoek richt zich daarom op ondernemingen met een lozingsvergunning op het openbare riool. De informatie uit deze paragraaf is gebruikt om RWZI's te selecteren voor onze proefmetingen.

### 3.1.1

#### Overzicht vergunninghouders

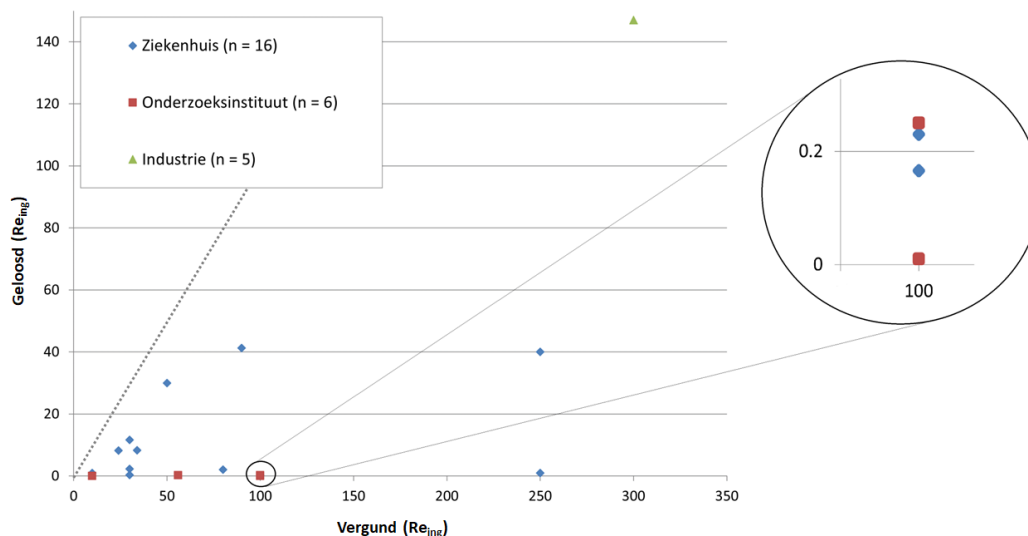
In 2023 hadden 56 ondernemingen een vergunning om radioactiviteit te lozen, waarvan iets minder dan 40 op het openbare riool [16]. Onder deze 56 vergunninghouders is ruim de helft (32) een ziekenhuis<sup>5</sup>. Deze 32 ziekenhuizen hebben een afdeling nucleaire geneeskunde, waarvan het merendeel een vergunning heeft voor het lozen op het riool. Naast ziekenhuizen hebben ook bepaalde onderzoeksinstellingen (inclusief universiteiten) en bedrijven (industrie) een vergunning voor het lozen van radionucliden op het riool. In Figuur 3-1 zijn gegevens uit 2018 samengevat van 42 ondernemingen met een vergunning voor het lozen van bepaalde radionucliden op het openbare riool.



Figuur 3-1 Aantal ondernemingen met een vergunning om in 2018 radioactiviteit te lozen op het openbaar riool op basis van de Kernenergiewet, verdeeld in (sub)sectoren [16]. Links geeft weer of deze vergunninghouders ook daadwerkelijk in 2018 op het riool hebben geloosd en of ze betijktanks (rechts) [17] hebben gebruikt.

Uit het RIVM-briefrapport van Brandhoff en Cats [17] blijkt dat de meeste ziekenhuizen en onderzoeksinstituten hun (radioactieve) afvalwater met kunstmatige nucliden direct op de openbare riolering lozen. Deze gegevens zijn gebaseerd op informatie uit 2018. Destijds is een enquête gehouden waarop 27 van de 56 vergunninghouders hadden gereageerd. De respondenten lozen op basis van hun eigen metingen en/of berekeningen in de meeste gevallen veel minder dan wat zij vergund hebben gekregen (zie Figuur 3-2). Daarom kan op basis van de informatie in de vergunningen (de vergunde hoeveelheden) niet worden afgeleid hoeveel ze daadwerkelijk lozen.

<sup>5</sup> Meerdere ziekenhuizen en/of ziekenhuislocaties kunnen onder een vergunninghouder vallen. Deze verschillende locaties zijn niet meegenomen in dit cijfer.



Figuur 3-2 Daadwerkelijke lozing ten opzichte van vergunde lozingen in radiotoxiciteitsequivalent ( $Re_{ing}$ ) naar het openbare riool in 2018 onder respondenten van de survey [17]. Alle respondenten lozen minder dan wat ze vergund hebben gekregen, want alle datapunten bevinden zich rechts van de stippellijn die de 1-op-1-verhouding vergund versus geloosd weergeeft.

Een deel van de ziekenhuizen, merendeels academische en een enkele topklinische ziekenhuizen, passen een lozingsbeperkende maatregel toe in de vorm van een betijltank. Van de zes aan de enquête deelnemende onderzoeksinstituten hadden vier betijltanks. De industrie gebruikt en loost overwegend natuurlijke nucliden en maakt meestal gebruik van hun eigen bedrijfsriool, waarbij geloosd wordt op het oppervlaktewater.

Uit Figuur 3-2 kan worden afgeleid dat uit de medische sector meer instellingen activiteit lozen op het openbare riool en de hoeveelheden (aantal  $Re_{ing}$ ) vaak ook hoger zijn dan de andere sectoren. Deze radioactieve stoffen komen primair uit de afdeling nucleaire geneeskunde. Medische isotopen worden gebruikt voor het diagnosticeren (medische beeldvorming) of voor de behandeling van een ziekte (therapie).

In totaal hebben 63 Nederlandse ziekenhuizen een afdeling nucleaire geneeskunde [18]. Zoals hierboven genoemd, hebben 32 ziekenhuizen met een afdeling nucleaire geneeskunde een vergunning voor lozen, waarvan het merendeel voor lozen op het riool. Dat wil zeggen dat ruim de helft van de 63 ziekenhuizen met een afdeling nucleaire geneeskunde geen vergunning hebben en dus jaarlijks minder dan 10  $Re_{ing}$  lozen op het openbare riool. Alle acht academische ziekenhuizen doen zowel diagnostiek als therapie op hun afdeling nucleair geneeskunde. Van de algemene ziekenhuizen<sup>6</sup> voeren ruim 50 ziekenhuizen diagnostische onderzoeken uit en ruim 20 ziekenhuizen therapeutische behandelingen [19].

<sup>6</sup> Meerdere ziekenhuizen en/of ziekenhuislocaties kunnen onder een stichting of B.V. vallen. De aantallen representeren de overkoepelende stichting of B.V.

### 3.1.2 Het gebruik van betijktanks

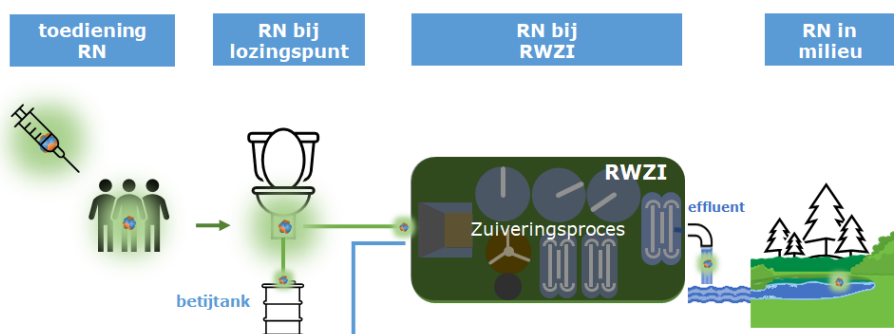
Een ondernemer is verplicht om lozingsbeperkende maatregelen te implementeren wanneer meer dan 100  $Re_{ing}$  per kalenderjaar op het riool [14] [15] wordt geloosd. Een maatregel hiervoor is het gebruik van betijktanks. Dit zijn speciale opslagtanks waarin het radioactieve afvalwater gedurende een bepaalde periode wordt bewaard. De inhoud van deze tanks wordt geleegd op het riool wanneer de activiteit door verval van de radionucliden tot een aanvaardbaar niveau is gedaald. Zo wordt voorkomen dat te grote hoeveelheden radioactiviteit via het rioleringsstelsel in het milieu terechtkomen.

Ziekenhuisgebouwen met een radionuclidenlaboratorium, gebouwd voor het jaar 1993, hebben betijktanks geplaatst om te voldoen aan de destijds geldende voorschriften [20]. Bij lozing van radioactieve stoffen op het riool moest tot 1993 de activiteitsconcentratie voor alfastralers lager zijn dan  $0,37 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$  en die van bèta- en gammastralers lager zijn dan  $11 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$  per lozing. Tevens gold ook dat er per vier opeenvolgende weken niet meer geloosd mocht worden dan 11 kBq aan alfastralende stoffen en 0,37 MBq aan bèta/gammastralende stoffen [21]. Hieronder vielen ook de radionucliden, die door behandelde patiënten werden uitgescheiden.

Het beleid veranderde in 1993 [15]. Wanneer het totaal aan jaarlijkse activiteitslozingen onder 100  $Re_{ing}$  blijft, hoeven er bij nieuwbouw geen betijktanks meer te worden geplaatst. Ook zijn ziekenhuizen met betijktanks niet meer verplicht deze te gebruiken wanneer zij onder deze waarde blijven. Door het huidige beleid is het gebruik van betijktanks onder ziekenhuizen vrij laag (Figuur 3-1). Na deze beleidswijziging zijn er geen tot nauwelijks onderzoeken geweest naar de radioactiviteit in het medische afvalwater.

## 3.2 De route van medische isotopen naar het riool

In Figuur 3-3 is de route die medische isotopen doorlopen, van toediening in het ziekenhuis tot ze terechtkomen in het milieu, schematisch weergegeven.



*Figuur 3-3 Schematische weergave van het traject dat een radionuclide (RN) doorloopt na toediening aan een patiënt voor een onderzoek of behandeling bij de afdeling nucleaire geneeskunde. Lozingen uit andere sectoren, bijvoorbeeld de industrie, volgen vanaf het lozingspunt hetzelfde proces.*

Na toediening van medische isotopen scheidt de patiënt de radionucliden gedeeltelijk weer uit. De snelheid waarin dat gebeurt, verschilt per toegediend radiofarmacon en per patiënt. De biokinetiek van de verschillende radiofarmaca zijn te vinden in de Richtlijndatabase van de Federatie Medische Specialisten [22]. Patiënten verblijven na toediening een bepaalde periode in het ziekenhuis voor ze naar huis mogen. De lengte van deze periode is afhankelijk van het type behandeling en de toegediende radionuclide. De patiënten kunnen een deel van de toegediende medische isotopen dus zowel binnen als buiten het ziekenhuis uitscheiden. Bij sommige ziekenhuizen zijn de toiletten die deze patiënten in het ziekenhuis dienen te gebruiken, aangesloten op een betijtank (zie paragraaf 3.1.2). Bij deze ziekenhuizen is de geloosde activiteit daarom lager dan wanneer er geen betijtank zou worden gebruikt. In het laatste geval, en wanneer patiënten de toegediende medische isotopen thuis op het toilet uitscheiden, belanden deze radionucliden samen met het overige afvalwater in het rioleringsstelsel.

Niet alle op het openbare riool geloosde radionucliden komen aan bij een RWZI. De radionucliden kunnen zich bijvoorbeeld hechten aan de rioleringspijpen. Bovendien kan tijdens zware regenval een deel van de geloosde radionucliden door overstorting meteen naar het oppervlaktewater worden geleid in plaats van naar de RWZI. Bij ongeveer tweederde van de Nederlandse rioleringsstelsels kan overstorting plaatsvinden (zie paragraaf 2.1).

De uiteindelijke activiteitsconcentratie in het influent is afhankelijk van de omvang van de lozing (na verval in een eventuele betijtank), de mate van verdunning met overig rioolwater, de fractie van de activiteit die achterblijft in rioleringspijpen, eventuele overstorting en radioactief verval tussen lozing en aankomst bij de RWZI.

### 3.3 Medische isotopen in Nederland

Voor de verschillende nucleair geneeskundige onderzoeken en behandelingen in Nederland worden verscheidene radionucliden gebruikt. Jaarlijks worden er in Nederland rond de 330.000 diagnostische onderzoeken en rond de 3.500 therapeutische behandelingen binnen de nucleaire geneeskunde [19]<sup>7</sup> uitgevoerd. In deze pilotstudie hebben wij ons beperkt tot het bestuderen van de medische isotopen die in de Nederlandse declareerbare zorg worden gebruikt en vier radionucliden die gebruikt worden in studieverband (Zr-89 [23], Ho-166, Lu-177<sup>8</sup> en Th-227 [23] [25]).

In Tabel 3-1 en Tabel 3-2 staat een overzicht van de relevante medische isotopen die worden gebruikt in respectievelijk diagnostiek en therapie<sup>9</sup>. In deze tabellen zijn ook enkele fysische eigenschappen, de gangbare toedieningsactiviteit,  $A_t$ , en het gemiddelde aantal onderzoeken of

<sup>7</sup> Alleen cijfers voor declareerbare zorg zijn hierin opgenomen. Deze cijfers zijn handmatig ingevoerd door de ondernemer via een jaarlijkse enquête en kunnen hierdoor fouten bevatten.

<sup>8</sup> Sinds 1 augustus 2021 is de apotheekbereiding van Lu-177-Prostaat-Specifiek-Membraan-Antigeen (Lu-PSMA) declareerbaar. De behandeling met PMSA is per 1 januari 2024 opgenomen in de declareerbare zorg [24].

<sup>9</sup> Het lijstje van medische isotopen is samengesteld op basis van de Jaarverantwoording Zorg [19]. Naast de declareerbare zorg is er daarbij ook een aantal radionucliden toegevoegd, dat momenteel wordt toegepast in klinische studies en dat in de nabije toekomst bij de declareerbare zorg gaat horen. Mogelijk is het lijstje niet helemaal compleet.

behandelingen per jaar,  $T_{\text{jaar}}$ , getoond. De gegevens over behandelingen gelden voor de situatie in Nederland voor de periode van 2019 tot 2021. De meeste radionucliden zijn bèta- en/of gammastralers. De hoeveelheid activiteit die een patiënt toegediend krijgt, varieert per onderzoek/behandeling [26, 27]. Over het algemeen is de toedieningsactiviteit,  $A_t$ , hoger bij een therapeutische behandeling dan bij een diagnostisch onderzoek. Sommige medische isotopen worden ingezet bij verschillende soorten onderzoeken en/of behandelingen. Hierdoor kan de toedieningsactiviteit van een radionuclide variëren. In de tabellen is voor deze gevallen een range gegeven, in plaats van een waarde voor de toedieningsactiviteit. Bij sommige therapieën kunnen verschillende medische isotopen worden toegepast voor dezelfde soort behandeling. Deze vallen onder dezelfde zorgcode [19]. In Tabel 3-2 is voor  $T_{\text{jaar}}$  het aantal toedieningen van de desbetreffende behandeling(en) weergegeven en niet van het radionuclide zelf.

*Tabel 3-1 Overzicht van de gebruikte radionucliden (RN) in de declareerbare zorg bij afdelingen nucleaire geneeskunde voor diagnostiek, met de bijbehorende fysische eigenschappen (belangrijkste uitgezonden straling en halveringstijd  $t_{1/2}$  [28]), de hoeveelheid activiteit gebruikt voor de toediening  $A_t$  [26] [27], en het gemiddelde aantal toedieningen per jaar in de periode van 2019 tot 2021  $T_{\text{jaar}}$  (met 2 significante cijfers) [19]. Tot de belangrijkste uitgezonden straling behoren bèta-minus ( $\beta^-$ ), bèta-plus ( $\beta^+$ ), gamma ( $\gamma$ ) en conversie-elektronen (ce) [29].*

RN	Uitgezonden straling	$t_{1/2}$ [d]	$A_t$ [Bq]	$T_{\text{jaar}}$
C-14	$\beta^-$	$2,1 \cdot 10^6$	$2,0 \cdot 10^5$	370
F-18	$\beta^+$ , $\gamma$	$7,6 \cdot 10^{-2}$	$2,5 \cdot 10^8 - 4,0 \cdot 10^8$	120.000
Ga-68	$\beta^+$	$4,7 \cdot 10^{-2}$	$1,0 \cdot 10^8 - 2,0 \cdot 10^8$	2.500
Se-75	$\gamma$ , ce	$1,2 \cdot 10^2$	$3,7 \cdot 10^5$	59
Kr-81m	$\gamma$ , ce	$1,5 \cdot 10^{-4}$	$4,0 \cdot 10^7 - 4,0 \cdot 10^8$	2.800
Tc-99m	$\beta^-$ , $\gamma$ , ce	$2,5 \cdot 10^{-1}$	$2,0 \cdot 10^6 - 7,5 \cdot 10^8$	180.000
In-111	$\gamma$ , ce	$2,8 \cdot 10^0$	$2,0 \cdot 10^7 - 2,0 \cdot 10^8$	390
I-123	$\gamma$ , ce	$5,5 \cdot 10^{-1}$	$4,0 \cdot 10^6 - 3,7 \cdot 10^8$	4.200
I-125	$\gamma$ , ce	$6,0 \cdot 10^1$	$3,5 \cdot 10^6$	310
I-131	$\beta^-$ , $\gamma$	$8,0 \cdot 10^0$	$1,0 \cdot 10^5 - 2,0 \cdot 10^7$	950
Tl-201	$\gamma$ , ce	$3,0 \cdot 10^0$	$7,4 \cdot 10^7 - 4,0 \cdot 10^8$	onbekend

Uit Tabel 3-1 volgt dat Tc-99m een factor 100 tot 10.000 vaker wordt toegepast bij diagnostische onderzoeken dan de meeste andere medische isotopen. In Nederland worden jaarlijks bijna 200.000 procedures met dit radionuclide uitgevoerd bij ruim 60 ziekenhuizen [19]. Dit betekent dat er vrijwel op alle werkdagen bij de desbetreffende ziekenhuizen meerdere toedieningen met Tc-99m zijn. De kans dat een ziekenhuis Tc-99m loost op een werkdag is daarom groot.

Bij de therapeutische behandelingen (Tabel 3-2) wordt I-131 het vaakst toegediend. De toedieningsactiviteit ten opzichte van de andere behandelingen is relatief hoog. Jaarlijks worden rond de 1.900 therapeutische toedieningen uitgevoerd met I-131 door ongeveer 20 verschillende afdelingen nucleaire geneeskunde [19]. Dit betekent dat er

Tabel 3-2 Overzicht van de gebruikte radionucliden (RN) bij afdelingen nucleaire geneeskunde voor therapie met de bijbehorende fysische eigenschappen (belangrijkste uitgezonden straling voor metingen en halveringstijd  $t_{1/2}$  [28]), de hoeveelheid gebruikte activiteit voor de toediening  $A_t$  [26] [27], en het gemiddelde aantal toedieningen per jaar over de periode van 2019 tot 2021  $T_{\text{jaar}}$  (met 2 significante cijfers) [19]. Voor de radionucliden Ho-166, Lu-177 en Th-227 die zijn toegepast in studieverband zijn de cijfers uit 2019 [27]. Tot de belangrijkste uitgezonden straling behoren bèta-minus ( $\beta^-$ ), bèta-plus ( $\beta^+$ ), gamma ( $\gamma$ ) en conversie-elektronen (ce) [29].

RN	Uitgezonden straling	$t_{1/2}$ [d]	$A_t$ [Bq]	$T_{\text{jaar}}$
Sr-89	$\beta^-$	$5,1 \cdot 10^1$	$1,5 \cdot 10^8$	<240 <sup>10</sup>
Zr-89	$\beta^+$ , $\gamma$	$3,3 \cdot 10^0$	$3,7 \cdot 10^7$	onbekend <sup>11</sup>
Y-90	$\beta^-$	$2,7 \cdot 10^0$	$2,0 \cdot 10^8 - 4,0 \cdot 10^9$	<40 <sup>10</sup>
I-131	$\beta^-$ , $\gamma$	$8,0 \cdot 10^0$	$4,0 \cdot 10^8 - 1,1 \cdot 10^{10}$	1.900
Sm-153	$\beta^-$ , $\gamma$	$1,9 \cdot 10^0$	$4,0 \cdot 10^9$	<240 <sup>10</sup>
Ho-166	$\beta^-$ , $\gamma$	$1,1 \cdot 10^0$	$1,2 \cdot 10^{10}$	30
Er-169	$\beta^-$ , ce	$9,3 \cdot 10^0$	$1,9 \cdot 10^8$	<40 <sup>10</sup>
Lu-177	$\beta^-$ , $\gamma$ , ce	$6,7 \cdot 10^0$	$6,0 \cdot 10^9 - 7,4 \cdot 10^9$	40
Re-186	$\beta^-$ , $\gamma$ , ce	$3,8 \cdot 10^0$	$1,9 \cdot 10^8 - 1,3 \cdot 10^9$	<40 <sup>10</sup>
Re-188	$\beta^-$ , $\gamma$ , ce	$7,1 \cdot 10^{-1}$	$1,9 \cdot 10^8 - 1,3 \cdot 10^9$	<240 <sup>10</sup>
Ra-223	$\alpha$ , $\gamma$ , ce	$1,1 \cdot 10^1$	$5,0 \cdot 10^6$	720
Th-227	$\alpha$ , $\gamma$ , ce	$1,9 \cdot 10^1$	$7,0 \cdot 10^6$	10

op een gemiddelde afdeling niet dagelijks, maar nagenoeg wekelijks, een patiënt met I-131 wordt behandeld. Patiënten die meer dan 400 MBq I-131 krijgen toegediend, worden vanwege stralingsbeschermingsredenen kort opgenomen in het ziekenhuis [26]. Om te voorkomen dat deze patiënten in het weekend in het ziekenhuis moeten verblijven, worden deze behandelingen meestal in het begin van de werkweek gedaan. Deze overnachtende patiënten scheiden een groot deel van de toegediende activiteit uit op het toilet in het ziekenhuis. De kans dat dan een ziekenhuis I-131 loost, is daarom groot, zeker aan het begin van de week.

Bij behandelingen met Lu-177 blijven patiënten meestal maximaal een dag in het ziekenhuis. Op het moment van schrijven is er slechts een aantal ziekenhuizen dat behandelingen uitvoert met Lu-177. De verwachting is dat vanaf 2024 meer ziekenhuizen Lu-177 gaan toepassen, gezien de goede behandelingsresultaten in de uitgevoerde studies [30-32]. Het groeiende aantal ziekenhuizen dat het gebruik van Lu-177 in de vergunning opneemt, bevestigt dit [16].

Een veel gebruikt radiofarmacon is Lu-177-PSMA (Prostaat-Specifiek-Membraan-Antigeen). Voor de Lu-PSMA behandeling werd in de afgelopen jaren vooral *carrier added* Lu-177 ('Lu-177 c.a.') gebruikt, waarbij in het productieproces het metastabiele radionuclide Lu-177m als bijproduct ontstaat. Alhoewel het percentage aan activiteit klein is van dit bijproduct ( $\sim 0,05\%$  [27]), heeft dit radionuclide een relatief lange halveringstijd van 160 dagen en daarmee een langere verblijftijd

<sup>10</sup> Een aantal radionucliden wordt voor dezelfde behandeling gebruikt onder dezelfde declaratiecode. Het gemiddelde aantal toedieningen per jaar bij deze radionucliden is weergegeven als minder dan (<) het gemiddelde aantal toedieningen per jaar voor desbetreffende behandeling(en).

<sup>11</sup> Behandeling met Zr-89 behoort nog niet tot de declareerbare zorg en is daarom niet opgenomen in de openbare cijfers.

in het milieu na lozing via het riool. Tegenwoordig wordt steeds vaker *non carrier added* Lu-177 ('Lu-177 n.c.a.') toegepast. Deze methode wordt geprefereerd boven 'Lu-177 c.a.' vanwege een hogere radiolabelingsefficiëntie [33]. Een gunstige bijkomstigheid bij het toepassen van 'Lu-177 n.c.a.' is dat dit nauwelijks Lu-177m bevat.

### 3.4 Monitoring radioactiviteit in Nederlands water

#### 3.4.1 *Metingen door waterschappen*

De waterschappen houden toezicht op de regionale wateren waarop hun RWZI's lozen. Zij laten het influent, effluent en/of zuiverings-slib bemonsteren en analyseren door water(schaps)laboratoria. Het meten van radioactiviteit en de aanwezigheid van radionucliden, valt echter niet binnen het analysepakket van deze laboratoria. De meeste laboratoria zijn ook niet uitgerust om radioactiviteit te meten. Wel zijn de waterschappen samen met Rijkswaterstaat betrokken bij het landelijke routine- en calamiteitenmeetnet, waarbij als test eens in de drie jaar radioactiviteit gemeten wordt in verschillende type monsters van specifieke meetlocaties. Bij RWZI's wordt hier alleen incidenteel zuiverings-slib bemonsterd en vervolgens door Rijkswaterstaat op radionucliden gemeten [34, 35]. Het doel van deze metingen is het testen van de infrastructuur en niet het monitoren van radioactiviteit. De resultaten van deze metingen zijn niet geschikt voor het beoordelen van de waterkwaliteit en daardoor niet openbaar.

#### 3.4.2 *Metingen door Rijkswaterstaat*

Rijkswaterstaat monitort periodiek radioactiviteit en de aanwezigheid van radionucliden in oppervlaktewater en zeewater als onderdeel van het programma Monitoring Waterstaatkundige Toestand des Lands (MWTL) [36]. Binnen dit programma worden op 105 verschillende locaties – zoet- en zoutwater - periodiek bemonsteringen en metingen gedaan van bodem/sediment, oppervlaktewater, organismen (biota) en zwevende stof. De frequentie van de metingen varieert van één keer per week tot één keer per kwartaal. Resultaten van deze metingen worden gepubliceerd op de Waterinfo-website [37].

Uit de meetresultaten van Rijkswaterstaat blijkt dat vier radionucliden die worden geloosd door medische instellingen af en toe in het oppervlaktewater worden gedetecteerd. Dat zijn Tc-99m, I-131, In-111 en Lu-177 [37]. In 2021 zijn I-131 en Lu-177 met name aangetroffen in de monsters genomen van zwevend stof. Een overzicht van de radionucliden die door Rijkswaterstaat worden gemeten, is gegeven in Bijlage B.

Een deel van de resultaten uit het MWTL-programma is opgenomen in een jaarlijks RIVM-rapport [38] over de gemiddelde jaarlijkse radioactiviteit die wordt gemeten in het Nederlandse watermilieu. Deze jaarlijkse rapportage is een verplicht onderdeel van het Euratom-verdrag. De meest recente publicatie laat zien dat er in de afgelopen decennia verschillende radionucliden zijn aangetroffen in het water en zwevende stof bij zowel oppervlaktewater- als zeewaterlocaties [39]. De gemiddelde activiteitsconcentratie van deze radionucliden varieert per jaar. De gerapporteerde gemeten nucliden komen uit lozingen van kerncentrales (H-3, Co-60 Sr-90 en Cs-137), de erts-verwerkende



industriële (Pb-210 en Ra-226) en van medische instellingen (I-131). Van deze radionucliden zijn Co-60, I-131, Cs-137 en Pb-210 alleen aangetroffen in het zwevende stof en niet in het water, terwijl de andere drie nucliden (H-3, Ra-226 en Sr-90) alleen gemeten zijn in het water.

Behalve het MWTL programma monitort Rijkswaterstaat ook 24 uur per dag het radioactiviteitsniveau van het rivierwater met het monitoringssysteem *Aqualarm* [40]. De twee meetstations van dit systeem bevinden zich vlakbij de landsgrenzen bij de Rijn en de Maas. De intensieve monitoring is van belang, aangezien het water van deze twee rivieren als bron voor de drinkwaterproductie dienen. Bij een overschrijding van de activiteitsconcentratie van  $25 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$  aan totaal-gamma wordt er een alarmmelding uitgegeven [37].

### 3.4.3 *Metingen bij drinkwaterbedrijven*

In Nederland voeren drie laboratoria radioactiviteitsmetingen uit voor alle drinkwaterbedrijven als onderdeel van hun monitoringsprogramma [38]. De metingen worden gedaan op zowel het ongezuiverde als het gezuiverde water. Er worden metingen uitgevoerd om activiteitsconcentraties te bepalen van totaal alfa/bètastraling, rest bètastraling<sup>12</sup> en H-3. De frequentie van de metingen hangt af van de grootte van het drinkwaterbedrijf en ligt tussen de 1 en 26 keer per jaar. Het RIVM verzamelt en interpreteert de resultaten van deze metingen. Incidenteel wordt ook het radonniveau gemeten [41] [42].

<sup>12</sup> Dit is totaal-bètastraling minus K-40.



## 4 Literatuuronderzoek

In dit hoofdstuk bespreken we relevante eerder gepubliceerde informatie over radionucliden in rioolwater. De informatie is gezocht in documenten en aanbevelingen van internationale stralingsbeschermingsorganisaties, in rapporten van buitenlandse stralingsbeschermingsorganisaties, in eerdere RIVM- en RWS-rapporten, en in wetenschappelijke literatuur (pubmed en scopus). Via cross-referencing zijn ook nog documenten gevonden.

### Samenvatting

Antwoord op deelvraag iv: *Welke informatie over radionucliden in rioolwater is bekend in de wetenschappelijke literatuur?*

Vanuit internationale stralingsbeschermingsorganisaties is beperkte documentatie vindbaar over radionucliden in influent-rioolwater. Op het niveau van de nationale stralingsbeschermingsorganisaties zijn in een aantal ons omringende landen metingen gedaan aan rioolwater, hoewel dat niet landelijk is gebeurd. Het onderzoek uit België is het meest omvangrijk gezien de zeer grote hoeveelheid meetwaarden. Tegelijk is dit onderzoek ook het minst vergelijkbaar met andere literatuur, omdat in België gebruik is gemaakt van gammametingen direct in het water.

Wat betreft wetenschappelijke peer-reviewed literatuur valt op dat deze voor het overgrote deel gaat over radionucliden voor medisch gebruik en wel over I-131. Uiteraard is Lu-177 als therapeutisch radionuclide zo recent in opkomst dat er nog weinig onderzoek is gedaan naar de activiteitsconcentratie ervan in rioolwater.

De wetenschappelijke literatuur laat verder zien dat methodes en frequenties van bemonstering zo sterk van elkaar verschillen dat vergelijking van meetwaarden ingewikkeld is.

### 4.1 Internationale stralingsbeschermingsorganisaties

De *International Commission on Radiological Protection* (ICRP) heeft twee publicaties die gaan over of raken aan lozing van radionucliden van medische toepassingen. Hoofdstuk 9 van de ICRP-publicatie 94 uit 2004 getiteld '*Release of patients after therapy with unsealed radionuclides*' besteedt aandacht aan lozingen door therapie met radionucliden [43]. Het gaat hierbij bijna alleen maar over I-131, wat ook begrijpelijk is, aangezien in 2004 nog niet of nauwelijks therapie met andere radionucliden gebruikelijk was. De conclusies zijn dat – voor radioactief jodium – geen betijktanks hoeven te worden gebruikt, en dat de doses voor rioolwerkers en het algemene publiek door in het riool geloosde radionucliden, ver onder de dosislimieten voor het algemene publiek blijven. In ICRP-publicatie 140 uit 2019 getiteld '*Radiological Protection in Therapy with Radiopharmaceuticals*' is geen relevante nieuwe informatie te vinden voor onze pilotstudie ten opzichte van de ICRP-publicatie 94 uit 2004 [44].

In 2013 publiceerde het *International Atomic Energy Agency* (IAEA) een technisch document getiteld '*Management of discharge of low level liquid radioactive waste generated in medical, educational, research and industrial facilities*' [45]. In hoofdstuk 4 staat dat algemeen erkend is, dat het bijna altijd gerechtvaardigd is om excreta van patiënten die voor diagnostiek Tc-99m gelabelde radiofarmaca hebben toegediend gekregen, direct op het riool te lozen. Dit geldt zowel voor lozingen op het riool tijdens ziekenhuisverblijf als thuis. De auteurs geven een aantal factoren dat in ogenschouw genomen moet worden bij de beslissing tot lozing van *low level radioactive waste*. Het gaat daarbij onder andere om het aantal lozende instellingen per RWZI en hun collectieve impact. In een beschrijving van het gebruik van betijltanks wordt aangegeven dat in de processen in een RWZI de radionucliden opnieuw geconcentreerd kunnen raken (na eerdere verdunning) in het zuiverings-slib. Specifieke aanwijzingen voor het omgaan met radionucliden in rioolwater zijn niet gegeven.

Een veel ouder IAEA-tecdoc uit 1998 beschrijft de vrijgave van radioactieve materialen uit de medische hoek, de industrie en de wetenschap [46]. Specifieke en relevante informatie over het meten van radionucliden in rioolwater staan hier niet in.

In 1992 werd de OSPAR-conventie getekend voor het voorkómen en verminderen van vervuiling van het mariene milieu in de noordoostelijke Atlantische oceaan. Het gaat hierbij om bescherming van het oceaanmilieu in brede zin, waarbij voor radioactieve stoffen een aparte werkgroep bestaat, naast bijvoorbeeld werkgroepen voor andere gevaarlijke stoffen of menselijke activiteiten. In 2021 zijn twee OSPAR-rapporten verschenen over lozingen van radionucliden: één over vloeibare lozingen van nucleaire installaties in 2019 en één over lozingen van radionucliden van niet-nucleaire sectoren in 2019 [47] [48]. Deze OSPAR-rapporten en de databestanden die daarbij vanaf de OSPAR-website te downloaden zijn, beschrijven geaggregeerde data over hoeveelheden radioactiviteit die in verschillende sectoren zijn geloosd per land. De data die in het kader van OSPAR worden verzameld, betreffen lozingen van radionucliden in de noordoostelijke Atlantische oceaan vanuit nationale rivieren. Er is vanuit OSPAR geen structurele informatie over de hoeveelheid radionucliden op het niveau van RWZI's in Europa.

## 4.2 Buitenlandse organisaties voor stralingsbescherming

### *België*

In 2015 is door het Federaal Agentschap voor Nucleaire Controle (FANC) een rapport gepubliceerd over een meetcampagne bij RWZI's waar instellingen met nucleaire geneeskunde activiteiten (grotendeels ziekenhuizen) hun afvalwater op lozen [49]. Hierbij zijn gedurende drie maanden metingen gedaan bij vijf RWZI's met gammaspectrometers die *in* het water waren geplaatst. Er zijn metingen gedaan op twee plaatsen bij de RWZI's: bij de inlet na het groffilter (influent) en bij de outlet (effluent). Daarnaast zijn ook monsters genomen van het slib.

In totaal zijn duizenden metingen per deelnemende RWZI verzameld. I-131 werd gedetecteerd in maximaal 2,8% van de metingen met als

hoogst gemeten waarde 4817 Bq·l<sup>-1</sup>. Tc-99m werd veel vaker gedetecteerd, tussen de 15,4% en 68,4% van de metingen, met als hoogst gemeten waarde 1127 Bq·l<sup>-1</sup>. I-123 en Sm-153 werden slechts sporadisch gevonden. Bij één RWZI werd in 13% van de metingen F-18 gedetecteerd met een maximale waarde van 45 Bq·l<sup>-1</sup>. In België geldt een maximale concentratie van 45 Bq·l<sup>-1</sup> voor I-131 in vloeibare lozingen (Koninklijk besluit ARBIS, Bijlage III, Tabel H1). Bij drie van de onderzochte RWZI's zijn meerdere meetwaarden (ver) boven deze limiet gevonden.

De meetwaarden voor Tc-99m hebben een cyclisch verloop met zowel dagelijkse als wekelijkse fluctuaties. Het detecteren van Tc-99m start over het algemeen op maandagen (tussen het eind van de ochtend en middernacht) en eindigt op zaterdag. Dit past bij de momenten van toediening van Tc-99m bij patiënten op werkdagen vanaf 's ochtends in combinatie met de halveringstijd van deze radio-isotoop. In het algemeen wordt in het water bij de outlet van de RWZI geen radioactiviteit gemeten, behoudens af en toe sporen van Tc-99m ( $\leq 10$  Bq·l<sup>-1</sup>). In het slib zijn ook af en toe sporen van Tc-99m en I-131 aangetroffen.

In deze Belgische studie zijn metingen uitgevoerd met een gammaspectrometer die direct *in* het water was geplaatst op locatie in de RWZI. Daardoor is geen tijdverlies opgetreden tussen een monsternamen bij de RWZI en analyse op een laboratorium elders. Er zijn wel alleen metingen met gammaspectrometrie gedaan en geen alfa- of bèta-metingen.

#### Zweden

De Zweedse Radiation Protection Authority (*Statens Strålskyddsinstitut SSI*, heet nu *Strålsäkerhetsmyndigheten SSM*) heeft in 2007 een rapport gepubliceerd over radiologische consequenties van lozingen van radionucliden uit ziekenhuizen naar het riool [50]. In dit onderzoek zijn geen metingen gedaan, maar alleen modelsimulaties met als input de maximale jaarlijkse lozingen van ziekenhuizen, gebaseerd op de aan patiënten toegediende activiteit. De uitkomst was de dosis voor de bevolking en voor werkers bij RWZI's door deze lozingen. Ondanks zeer conservatieve aannames blijven de berekende doses voor de meeste radionucliden en blootstellingspaden ver onder de 10  $\mu\text{Sv}\cdot\text{jaar}^{-1}$ . Met name voor I-131 blijken meer gedetailleerde schattingen nodig, en in mindere mate ook voor P-32, Sr-89, Tc-99m, I-123 en Tl-201. Daaruit blijkt dat voor I-131 de 95<sup>ste</sup>-percentiel net boven de 10  $\mu\text{Sv}\cdot\text{jaar}^{-1}$  ligt (19  $\mu\text{Sv}\cdot\text{jaar}^{-1}$ ). In het geval van In-111 zitten de realistischere modelresultaten ver boven de 10  $\mu\text{Sv}\cdot\text{jaar}^{-1}$  (ordegrootte 100  $\mu\text{Sv}\cdot\text{jaar}^{-1}$ ).

#### Verenigd Koninkrijk

Het *Environment Agency* in het Verenigd Koninkrijk heeft in 2007 een rapport gepubliceerd over een studie naar radionucliden in het rioolwater in één RWZI in Londen [51]. Het onderzoek is gedaan naar aanleiding van een initiële verwachting dat de dosis door lozingen van I-131 groter zou kunnen zijn dan 0,3  $\text{mSv}\cdot\text{jaar}^{-1}$ . Uit metingen gedurende twee niet-opvolgende weken bleek gemiddeld 26 Bq·l<sup>-1</sup> I-131 gemeten te worden in influent, 11 Bq·l<sup>-1</sup> in effluent en tot 1.800 Bq·kg<sup>-1</sup> in

ontwaterde slibcake. Ook bij conservatieve scenario's blijft de dosis in de RWZI door externe straling ver onder de dosislimiet voor de bevolking.

### 4.3 Wetenschappelijke literatuur

In de peer-reviewed wetenschappelijke literatuur is gezocht met de volgende zoektermen: (radionucl\* OR radioact\*) AND (sewer OR sewage OR WWTP). WWTP staat voor waste water treatment plant. De zoekopdracht is beperkt tot publicatiedatum vanaf het jaar 2000. Dit is gekozen om artikelen met verouderde analyse te vermijden en omdat met name het gebruik van radionucliden in ziekenhuizen in de afgelopen decennia sterk is veranderd en toegenomen.

Het doorzoeken van de wetenschappelijke literatuur sinds het jaar 2000 heeft enkele tientallen artikelen over radionucliden in afvalwater opgeleverd. Met het oog op de pilot naar rioolwateronderzoek gaat onze interesse uit naar artikelen die *metingen van influent bij RWZI's* beschrijven. In Tabel 4-1 staat een overzicht van de voor onze pilot relevante studies, met in Tabel 4-2 per studie de beschreven meetresultaten.

#### 4.3.1 *Beschreven soorten monsters en radionucliden*

In meerdere papers is zowel influent als effluent bemonsterd [52] [53] [54] [55] [56] [57] [58]. Ook andere compartimenten worden soms bemonsterd naast influent, zoals vuil en zand [59], en (as van verbrande) slib [54] [57].

Een aanzienlijk deel van de literatuur over het meten van radionucliden in rioolwater beschrijft onderzoek aan (alleen) het slib in RWZI's. Hieruit blijkt dat een radionuclide als bijvoorbeeld I-131 hierin ophoopt en in hogere concentratie aantoonbaar is dan in het afvalwater [55] [57] [60]. De concentratie van radionucliden in slib wordt door Nakamura *et al.* beschreven als een orde van grootte die groter is dan in effluent, en voor TI-201 zelfs twee orden van grootte hoger [61]. Dit onderzoek heeft geen influent bemonsterd en staat derhalve niet in Tabel 4-1.

Veruit de meeste artikelen gaan over radionucliden voor medische toepassingen, met name over I-131 en in iets mindere mate ook over Tc-99m. Enkele artikelen beschrijven nog enkele andere kunstmatige radionucliden die in ziekenhuizen worden gebruikt. Camacho *et al.* hebben juist gekeken naar van nature voorkomende radionucliden in afvalwater [56]. In de voor onze huidige studie relevante artikelen uit de internationale literatuur zijn geen studies gevonden waarbij Lu-177 is aangetoond of onderzocht in rioolwater. Dit alles is waarschijnlijk een reflectie van het feit dat de nucleaire geneeskunde een relatief jong en nog groeiend vakgebied is.

#### 4.3.2 *Methode van monsternamen*

De frequentie van monsternamen en het totaal aantal monsters is zeer wisselend in de gevonden artikelen. In veruit de meeste gevonden artikelen worden slechts enkele tot enkele tientallen monsters beschreven, die verspreid over een aantal dagen of weken zijn genomen. Langdurige en structurele monsterverzameling wordt

nauwelijks beschreven. De studie met de grootste aantallen meetwaarden is van Camacho *et al.* uit 2012 [56]. Dit onderzoek beschrijft 56 monsters van twee RWZI's in het noordoosten van Spanje over een periode van drie jaar.

Eén van de zaken die in maar weinig artikelen eenduidig of überhaupt wordt beschreven, is de tijd tussen monstername en analyse. Dit interval is echter van groot belang om überhaupt een radionuclide te kunnen meten<sup>13</sup>. Zodra de activiteitsconcentratie boven de detectiegrens uitkomt, kan de concentratie teruggerekend worden naar het moment van monstername. Maar als de analyse zo laat valt ten opzichte van de monstername dat de activiteitsconcentratie onder de detectielimiet is gekomen, dan kan er niets gezegd worden over de aanwezigheid van radionucliden in het oorspronkelijke monster.

Het interval tussen de monstername en de analyse wordt door Camacho *et al.* beschreven als "meer dan twee weken" [56]. De analyses richtten zich hier op langlevende radionucliden K-40, radium, uranium, totaal-alfa en totaal-bèta, en niet op medische isotopen met relatief korte halveringstijden.

Cosenza *et al.* beschrijven een interval van monstername tot meting tussen de 0 en 4 dagen [55]. In deze studie zijn eerst screenende metingen gedaan bij drie RWZI's op Sicilië. Vervolgens zijn bij één RWZI iedere vijftien dagen gedurende een half jaar op meerdere plaatsen in het proces monsters genomen. Meetresultaten in dit artikel worden gegeven in  $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$  nat gewicht ( $\text{Bq}\cdot\text{kg}_{\text{ww}}^{-1}$ ). Alleen I-131 is sporadisch in influent gevonden in een grotere hoeveelheid dan de minimaal detecteerbare activiteit. In slib zijn grotere concentraties I-131 gevonden tot  $150 \text{ Bq}\cdot\text{kg}_{\text{ww}}^{-1}$ .

Hormann *et al.* beschrijven in hun studie een heel kort interval tussen monstername en analyse van circa één uur [53]. Gedurende achttien dagen werd zowel het influent als het effluent van een RWZI in Seehausen (Duitsland) bemonsterd. Deze studie heeft met name modellering als focus, waarbij de meetwaarden dienen als vergelijking voor de simulaties. De meetwaarden zijn alleen in een grafiek weergegeven waarbij de hoogst gemeten waarde voor I-131 ongeveer  $1,3 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$  in het influent bedraagt. Uit het artikel wordt niet duidelijk of op de beschreven RWZI een ziekenhuis of andere relevante instelling (onderzoeksinstituut of industrie) loost.

In de studie van Mosos *et al.* wordt uit de meetwaarden zichtbaar dat er een variatie is in de activiteitsconcentratie radionucliden gedurende de weekdagen [59]. In drie opeenvolgende weken is de activiteitsconcentratie van I-131 het laagste op maandagen, in de orde grootte van  $2 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ , en significant hoger op donderdagen en vrijdag, orde grootte  $10 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ . Ook uit de studie van Mulas *et al.* blijkt dat op maandagen de activiteitsconcentratie I-131 in rioolwater laag is [62]. Een dergelijke cyclische variatie werd ook beschreven in de studie van het FANC [49] en past bij de klinische praktijk van een afdeling nucleaire geneeskunde, waarbij in principe geen toedieningen

<sup>13</sup> Zie bijvoorbeeld ook het binnen deze pilotstudie ontwikkelde model, dat beschreven is in Bijlage C.

plaatsvinden op weekenddagen. Ook het biokinetische model van I-131 speelt een rol. De I-131-activiteitsconcentratie in het afvalwater<sup>14</sup> neemt 12 uur na toediening aan een patiënt sterk toe, met een piek tussen 24 en 36 uur na toediening, waarna de concentratie weer sterk afneemt [63].

#### 4.3.3

##### *Meetresultaten*

In Tabel 4-2 staan voor de bovenbeschreven en genoemde studies de meetresultaten van influent-rioolwater. Deze waarden van de meetresultaten zijn onderling niet vergelijkbaar. Dit komt door de grote variatie in type monsters en meetmethode. Het gaat dan met name om het wel of niet aangesloten zijn of lozen van ziekenhuizen op de onderzochte RWZI's. Dit wordt helaas niet altijd eenduidig beschreven. Ook is er - zoals eerder beschreven - variatie in de tijd tussen bemonstering en analyse, als het al gerapporteerd wordt, waardoor bijvoorbeeld vermoedelijk een onderrapportage van Tc-99m ontstaat.

<sup>14</sup> In desbetreffende studie is het effluent geanalyseerd. De activiteitsconcentratie in het influent is over het algemeen iets hoger dan in het effluent gemeten op dezelfde dag [62]. De verwachting is dan ook dat de uitkomsten vergelijkbaar zouden zijn als het in het influent is gemeten.



Tabel 4-1 Overzicht van relevante peer-reviewed studies naar radionucliden in influent-rioolwater.

<b>Auteur en jaar</b>	<b>Stad (land)</b>	<b>Onderzochte radionucliden</b>	<b>Type monsters</b>	<b>Frequentie monsternamen</b>	<b>Interval monsternamenanalyse</b>
Mosos <i>et al.</i> 2020 [59]	Bogota (Colombia)	I-131	Influent, vuil, zand, treated water, slib	Weekdagen van 3 opeenvolgende weken (n=15 monsters uit 24-uur-verzameling); daarna nog 2 weken 5 monsters op de 'hoogste' weekdag, daarna nog 2 weken monsters op 5 plekken in de RWZI.	Niet beschreven
Mulas <i>et al.</i> 2019 [52]	Barcelona (Spanje)	Ga-67, Tc-99m, In-111, I-123, I-131	Influent, sludge, effluent	5 24-uur-verzamelmonsters in 7 RWZI's; dinsdagen en woensdagen; n=10 influent, n=12 effluent; bij 1 RWZI nog 3 extra metingen van influent en effluent.	Niet beschreven
Martínez <i>et al.</i> 2018 [60]	Reus en Tarragona (Spanje)	I-131, Tc-99m, Ga-67	Afvalwater van 1 ziekenhuis, influent RWZI, slib	Afvalwater ziekenhuis: 2x per dag gedurende 3 dagen Influent: 24-uur verzamelmonsters (n=10).	Niet beschreven
Hormann <i>et al.</i> 2018 [53]	Seehausen (Duitsland)	I-131	Influent, effluent	1 influent en 1 effluent monster per dag gedurende 18 dagen uit 24-uur-verzamelmonster.	1 uur
Tsushima 2017 [54]	Regio's Tohoku en Kanto (Japan)	I-131, Cs-134, Cs-137	Influent, effluent, slib, as, uitlaatgas	Monster om de 3 uur uit 24-uur-verzameling. Bij 1 RWZI vanaf juli 2011 en later bij 4 RWZI's (tot juni 2013).	Niet beschreven
Cosenza <i>et al.</i> 2015 [55]	Sicilië (Italië)	Ga-67, Tc-99m, Mo-99, In-111, I-131, Cs-137	Influent, afvalwater, effluent, slib	Monsternamen iedere 15 dagen uit 1 RWZI gedurende een half jaar op 11 plaatsen in de RWZI (na screenende metingen bij 3 RWZI's).	Range van 0-4 dagen
Camacho <i>et al.</i> 2012 [56]	Noordoosten van Spanje	K-40, radium, uranium, totaal-alfa, totaal-bèta	Influent, afvalwater, effluent	Verzamelmonsters in de periode 2007-2010 bij 2 RWZI's, totaal n=56 monsters.	Meer dan 2 weken
Chang <i>et al.</i> 2011 [57]	Daejeon (Zuid-Korea)	Tc-99m, I-131	Influent, slib, effluent	Monsters gedurende maand september 2009 (met name in de laatste week); 9 meetmomenten totaal.	Zo snel mogelijk na monsternamen
Ipek <i>et al.</i> 2003 [58]	Elazig (Turkije)	I-129, Cs-137, Sr-90, totaal-alfa, totaal-bèta	Influent, effluent	Niet eenduidig beschreven; er zijn meetwaarden van 6 maanden.	Niet beschreven

Tabel 4-2 Overzicht van de meetresultaten van influent van relevante peer-reviewed studies naar radionucliden in rioolwater.

<b>Auteur en jaar</b>	<b>Meetresultaten influentmonsters</b>
Mosos <i>et al.</i> 2020 [59]	I-131: 1,2-29,1 Bq·kg <sup>-1</sup>
Mulas <i>et al.</i> 2019 [52]	I-131 gemeten in 63% van monsters (<0,2-4,4 Bq·l <sup>-1</sup> ) Tc-99m gemeten in 41% van monsters (<5-50 Bq·l <sup>-1</sup> )
Martínez <i>et al.</i> 2018 [60]	Ziekenhuis-afvalwater: Tc-99m max. 70 Bq·l <sup>-1</sup> en Ga-67 max. 16,9 Bq·l <sup>-1</sup> , geen I-131 (alleen poliklinisch gebruikt) RWZI: I-131 in 2 monsters met max. 0,39 Bq·l <sup>-1</sup> ; geen andere radionucliden
Hormann <i>et al.</i> 2018 [53]	I-131: max. ca. 1,3 Bq·l <sup>-1</sup> (uit grafiek)
Tsushima 2017 [54]	Geen I-131, wel cesia 0-37 Bq·l <sup>-1</sup>
Cosenza <i>et al.</i> 2015 [55]	I-131: gem. 0,65 Bq·kg <sub>ww</sub> <sup>-1</sup> met een max. van 5,01 Bq·kg <sub>ww</sub> <sup>-1</sup>
Camacho <i>et al.</i> 2012 [56]	Totaal-alfa ordegröte 50 m Bq·l <sup>-1</sup> Totaal-bèta ordegröte 500 Bq·l <sup>-1</sup>
Chang <i>et al.</i> 2011 [57]	Tc-99m ordegröte 0,5 Bq·l <sup>-1</sup> I-131 ordegröte 1 Bq·l <sup>-1</sup>
Ipek <i>et al.</i> 2003 [58]	Totaal alfa: 0,0772-0,2221 Bq·l <sup>-1</sup> Totaal-bèta: 0,1041-0,3161 Bq·l <sup>-1</sup> I-129: circa 0,02 Bq·l <sup>-1</sup> Cs-137: circa 0,01-0,06 Bq·l <sup>-1</sup> Sr-90: 0,05-0,09 Bq·l <sup>-1</sup>

## 5 Methode proefmetingen

Dit hoofdstuk beschrijft de gebruikte methode om influent-watermonsters uit het NRS-meetprogramma op radioactiviteit te meten. Voor het kunnen uitvoeren van de proefmetingen is de bestaande NRS infrastructuur uitgebreid met radioactiviteitsmetingen. In totaal zijn er vier series aan proefmetingen uitgevoerd. Voor deze pilotstudie is getracht om influentmonsters te kiezen met een zo hoog mogelijke *a priori* kans op meetbare activiteitsconcentraties. Dit is het geval bij een grote lozing, weinig verdunning en weinig radioactief verval (korte tijd tussen lozing en meting en/of lange halveringstijd).

Om tot een geschikte methode te komen, is eerst gekeken welke radionucliden naar verwachting kunnen worden gedetecteerd in influentmonsters (paragraaf 5.1). Deze informatie is gebruikt om binnen de kaders van de NRS-infrastructuur (paragraaf 5.2) geschikte RWZI's (paragraaf 5.3) en bemonsteringsdagen (paragraaf 5.4) te selecteren voor de vier meetseries. De keuze van de meettechnieken is toegelicht in paragraaf 5.5. De benodigde preparatie van de monsters is beschreven in paragraaf 5.6, alsmede de daarvoor gebruikte meettechnieken in paragraaf 5.7.

### Samenvatting

Antwoord op deelvraag v: *Welke al beschikbare of te nemen monsters uit het NRS-meetprogramma zijn geschikt voor een proefmeting van radioactiviteit in rioolwater? Waar (welke RWZI's) en wanneer moeten de monsters genomen worden?*

De NRS-infrastructuur is – met enkele aanpassingen – gebruikt voor het uitvoeren van deze pilotstudie. Er wordt geen gebruikgemaakt van de monsters die de NRS standaard neemt. Voor deze pilotstudie zijn vijf RWZI's geselecteerd. Deze RWZI's zijn interessant vanwege de aangesloten instellingen. In principe zouden de maandagen en dinsdagen de meest kansrijke bemonsteringsdagen zijn om radionucliden in het influent te kunnen meten.

Antwoord op deelvraag vi: *Welke radionucliden zijn naar verwachting nog aantoonbaar in een rioolwatermonster?*

De volgende medische isotopen zijn naar verwachting aantoonbaar in een influentmonster (drie dagen na lozing) wanneer deze zijn uitgescheiden door een patiënt: Sr-89, In-111, I-131, Sm-153, Er-169, Lu-177, Re-186 en Re-188.

### 5.1 Mogelijk te detecteren radionucliden

Om te schatten welke radionucliden naar verwachting in influentmonsters zijn te detecteren, is een model opgesteld. Een gedetailleerde beschrijving van dit model is te vinden in Bijlage C. In dit model wordt uitgegaan van één toediening van een radiofarmacon. Hoewel het model is opgesteld voor medische isotopen kan het, met

enkele aanpassingen, ook worden gebruikt voor andere radionucliden/lozingssituaties.

De activiteitsconcentratie van het radionuclide bij binnenkomst bij de RWZI,  $C_{\text{rwzi}}$ , is afhankelijk van de volgende factoren:

- de toegediende activiteit aan de patiënt;
- de fractie van deze activiteit die de patiënt uitscheidt;
- de eventuele aanwezigheid van een betijntank in het ziekenhuis;
- de verdunning met overig rioolwater;
- het radioactief verval in de periode tussen lozing en de bemonstering.

In de berekeningen is uitgegaan van de gemiddelde toedieningsactiviteit en uitgescheiden fractie van veelgebruikte radiofarmaca (meer informatie staat in de bijlage). Daarnaast is aangenomen dat er geen betijntank wordt gebruikt. Voor de verdunning is uitgegaan van het mediane debiet van de Nederlandse RWZI's ( $9,0 \cdot 10^3 \text{ m}^3 \cdot \text{dag}^{-1}$ ). De periode tussen lozing en bemonstering is geschat op zes uur.

De activiteitsconcentratie op het RN-laboratorium,  $C_{\text{lab}}$ , is lager dan  $C_{\text{rwzi}}$  vanwege radioactief verval in de periode tussen bemonstering en meting. De totale tijd tussen lozing en meting wordt geschat op drie dagen (zie paragraaf 5.2 en paragraaf 5.4).

Met dit model zijn de activiteitsconcentraties  $C_{\text{rwzi}}$  en  $C_{\text{lab}}$  geschat voor de 22 medische isotopen uit paragraaf 3.3. Deze activiteitsconcentraties zijn vergeleken met de typische minimale detecteerbare activiteit (MDA). Hieruit blijkt dat acht radionucliden – indien geloosd en bij één toediening – naar verwachting detecteerbaar zijn in de influentmonsters op het RN-laboratorium: Sr-89, In-111, I-131, Sm-153, Er-169, Lu-177, Re-186 en Re-188.

Bij verdere optimalisatie van de monsternamen-infrastructuur neemt idealiter de tijd tussen bemonstering en meting af. In het ideale geval ( $C_{\text{lab}} = C_{\text{rwzi}}$ ) zijn ook de volgende vier radionucliden naar verwachting detecteerbaar in het influentmonster: F-18, I-123, Y-90 en Ho-166.

Het radionuclide dat het vaakst wordt toegediend in Nederlandse ziekenhuizen, Tc-99m, is volgens de modelberekeningen niet detecteerbaar in de huidige influentmonsters uit de NRS-infrastructuur. Dit komt door de korte halveringstijd ( $T_{1/2} = 6$  uur) en de relatief hoge MDA ( $1 \cdot 10^2 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ ). Hierbij moet worden opgemerkt dat in de modelberekening is uitgegaan van één toediening. In de meeste ziekenhuizen worden dagelijks meerdere onderzoeken met Tc-99m uitgevoerd. Vanaf 5-10 toedieningen per dag in het brongebied van de RWZI is Tc-99m naar verwachting detecteerbaar in het influent op het moment van bemonstering ( $C_{\text{rwzi}}$ ). Om op het moment van meting ( $C_{\text{lab}}$ ) detecteerbaar te zijn, zijn enkele duizenden toedieningen per dag nodig. Dit laatste is niet realistisch.

## 5.2 Gebruik van de NRS-infrastructuur

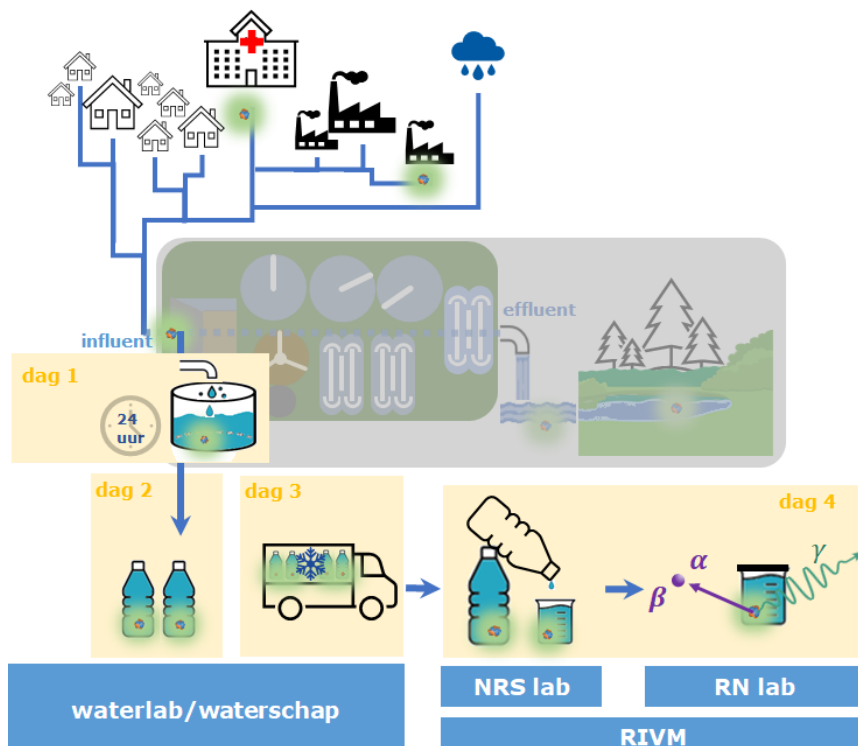
Tijdens de pilotstudie is zo veel mogelijk gebruikgemaakt van de bestaande NRS-infrastructuur zoals beschreven in paragraaf 2.3, met

enkele aanpassingen. De bemonstering en het vervoer van de monsters naar het RIVM zijn in opdracht van de waterschappen door waterlaboratoria uitgevoerd (de NRS-infrastructuur, zie Figuur 2-4). De monsters zijn daarna voorbereid door het NRS-laboratorium. Het RN-laboratorium deed vervolgens de metingen en analyse. In alle meetseries werden de samenwerking en communicatie tussen de verschillende partijen getest.

Voor deze pilotstudie is besloten om niet te werken met de reguliere NRS-monsters, maar om aparte monsters te nemen. Dit was voor de deelnemende laboratoria eenvoudiger. Vanaf de eerste meetserie is het waterlaboratorium daarom gevraagd om aparte monsters (500 ml) te nemen voor de radioactiviteitsmetingen, naast de reguliere NRS-monsters.

Daarnaast is vanaf meetserie 2 de mogelijkheid onderzocht om delen van de monstervoorbereiding eerder in het proces laten geschieden. Het betreft de aanzuring voor gammaspectrometrie (zie paragraaf 5.6.1). De aanzuring werd bij meetserie 1 door het NRS-laboratorium uitgevoerd tijdens de monstervoorbereiding (na de bemonstering). Vanaf meetserie 2 is de aanzuring door het waterlaboratorium bij de RWZI's uitgevoerd bij het overscheppen van de monsters in flesjes.

De aangepaste infrastructuur staat in Figuur 5-1.



*Figuur 5-1 Aangepaste NRS-infrastructuur die gebruikt is voor de pilotstudie, met typische tijdslijn vanaf de bemonstering tot aan het analyseren van het influent met de taken van de verantwoordelijke partijen.*

### 5.3 Selectie rioolwaterzuiveringsinstallaties

Voor onze proefmetingen is het gewenst om RWZI's te selecteren waarop veel activiteit wordt geloosd en waar de geloosde activiteit weinig wordt verdund. Er is daarom gezocht naar kleine RWZI's en RWZI's waarop relevante instellingen zijn aangesloten, zoals ziekenhuizen met een afdeling nucleaire geneeskunde of onderzoeksinstellingen en bedrijven met een vergunning voor het lozen van radioactieve stoffen op het riool. Wij hebben voor de eerste drie series proefmetingen drie RWZI's uitgekozen.

RWZI A is geselecteerd vanwege een daarop aangesloten ziekenhuis, waarbij werd voldaan aan de volgende drie criteria:

- gebruik van I-131 voor nucleaire geneeskundige behandelingen;
- geen gebruik van betijktank;
- relatieve hoge bijdrage van ziekenhuisafvalwater op de RWZI ten opzichte van de aangesloten huishoudens [64].

RWZI B is geselecteerd vanwege de daarop aangesloten lozer met vergunning uit de industrie. Dit bedrijf was de grootste lozer uit de industrie uit de in 2018 gepubliceerde survey (zie ook Figuur 3-2) [17]. In 2017 werd door dit bedrijf meer dan 140 Re<sub>ing</sub> op het openbare riool geloosd. Welke radionucliden geloosd zijn of worden, is onbekend.

RWZI C is geselecteerd vanwege een daarop aangesloten:

- onderzoeksinstelling, weliswaar met gebruik van een betijktank;
- ziekenhuis dat I-131 gebruikt zonder betijktank.

De geselecteerde onderzoeksinstelling doet veel onderzoek met radionucliden (het is onbekend welke radionucliden geloosd zijn of worden). De verwachting is dat bij deze RWZI geen activiteit gemeten zou worden, ook niet wanneer de betijktank door deze onderzoeksinstelling wordt geloosd.

Voor de laatste serie proefmetingen hebben wij gezocht naar RWZI's waarop ziekenhuizen zijn aangesloten die behandelingen met Lu-PSMA uitvoeren en geen gebruikmaken van betijktanks. RWZI D en RWZI E vielen binnen deze criteria. Op RWZI E lozen overigens ook andere ziekenhuizen.

Informatie over de geselecteerde RWZI's is samengevat in Tabel 5-1.

Tabel 5-1 Overzicht van de rioolwaterzuiveringsinstallaties (RWZI) waar proefmetingen zijn uitgevoerd. Met  $Q_{\text{influent}}$  het gemiddelde dagelijkse debiet van het influent bij de RWZI [6],  $H_{\text{hyd}}$  de hydraulische capaciteit van de RWZI,  $N_{\text{I-131}}$  het aantal therapeutische behandelingen met radionuclide I-131 [19] en  $N_{\text{Lu-177}}$  het aantal Lu-PSMA behandelingen van ziekenhuizen aangesloten op de RWZI. Bij alle RWZI's vond de bemonstering plaats voor het grofvuilfilter.

RWZI	relevante instelling(en)	$Q_{\text{influent}}$ [m <sup>3</sup> dag <sup>-1</sup> ]	$H_{\text{hyd}}$ [m <sup>3</sup> uur <sup>-1</sup> ]	$N_{\text{I-131}}$ [jaar <sup>-1</sup> ]	$N_{\text{Lu-PSMA}}$ [week <sup>-1</sup> ]
A	ziekenhuis	$1,5 \cdot 10^4$	$8,9 \cdot 10^3$	75-100	n.v.t.
B	bedrijf	$8,8 \cdot 10^3$	$2,4 \cdot 10^3$	n.v.t.	n.v.t.
C	onderzoeksinstelling, ziekenhuis	$6,3 \cdot 10^4$	$1,4 \cdot 10^4$	75-100	n.v.t.
D	ziekenhuis met Lu-PSMA	$4,7 \cdot 10^4$	$2,0 \cdot 10^3$	onbekend <sup>15</sup>	0-5 <sup>16</sup>
E	ziekenhuis met Lu-PSMA	$2,0 \cdot 10^5$	$3,6 \cdot 10^4$	50-75	onbekend <sup>17</sup>

#### 5.4 Selectie bemonsteringsdagen

Ideaal gezien worden voor deze pilotstudie bemonsteringsdagen gekozen waarop met behoorlijke zekerheid lozingen met radionucliden plaatsvinden naar de geselecteerde RWZI's. Voor deze pilotstudie is gekeken in hoeverre dit mogelijk was binnen de NRS-infrastructuur. Wij zijn hierbij afhankelijk van de beschikbaarheid van zowel het NRS- als het RN-laboratorium en de al van tevoren ingeplande bemonsteringsdagen van de waterlaboratoria. Met bemonsteringsdag wordt in dit geval bedoeld: de dag waarop het influent 24 uur lang wordt opgevangen (dag 1 in Figuur 5-1).

Uit paragraaf 2.3 blijkt dat de NRS-infrastructuur een minimale tijdsperiode heeft van twee werkdagen tussen bemonstering en meting. Meestal zullen dat drie werkdagen zijn en vier dagen is ook mogelijk. Als we de mogelijke tijdsperiode van vier dagen niet willen overschrijden en rekening houden met het weekend<sup>18</sup>, komen we op een beperkt aantal bemonsteringsdagen uit: namelijk maandag en dinsdag.

Hoewel de keuze van de bemonsteringsdag belangrijk is voor de beantwoording van de hoofdvraag van deze pilotstudie, is er verder, behalve een eenmalige afstemming van de bemonsteringsdag met het onderzoeksinstituut over de lozing van de betijntank (meetserie 3), geen rekening gehouden met de dagen waarop de grootste lozingen richting een RWZI worden verwacht. Er is voor de keuze van de bemonsteringsdagen van monsters voor RWZI's A, C, D en E, bijvoorbeeld geen rekening gehouden met de exacte datum waarop patiënten met I-131 en/of Lu-177 zijn behandeld. Er is bij de planning van de bemonsteringen wel rekening gehouden met op welke dagen ziekenhuizen patiënten *kunnen* behandelen met I-131 en/of Lu-177. Op basis van informatie die ook in paragraaf 3.3 staat, zou de kans het

<sup>15</sup> Informatie die niet verstrekt is door de instelling aan de Jaarverantwoording Zorg [19], terwijl deze afdeling wel I-131 therapie verrichtingen uitvoert.

<sup>16</sup> Deze informatie is opgevraagd bij het ziekenhuis.

<sup>17</sup> Deze informatie is niet ontvangen van desbetreffende ziekenhuis.

<sup>18</sup> Veel bedrijven en onderzoeksinstellingen zijn in het weekend gesloten. Bij de afdelingen nucleaire geneeskunde worden de patiënten op hoge uitzonderingen na alleen doordeweeks behandeld. Bovendien voeren de drie laboratoria geen werkzaamheden uit in het weekend.

grootste zijn om I-131 aan het begin van de week in het influent van een RWZI te meten.

In Tabel 5-2 staan de geplande bemonsterings(week)dagen van de vier proefmeetseries. Behalve bij meetserie 3, is de bemonstering gebruikt die op maandag of dinsdag gepland stond.

Tabel 5-2 De geplande weekdag om te bemonsteren bij de geselecteerde rioolwaterzuiveringsinstallaties (RWZI's) bij de vier proefmeetseries.

RWZI	Planning weekdag bemonstering			
	meetserie 1	meetserie 2	meetserie 3	meetserie 4
A	maandag	dinsdag	zondag	-
B	maandag	dinsdag	zondag	-
C	maandag	dinsdag	maandag	-
D	-	-	-	dinsdag
E	-	-	-	dinsdag

## 5.5 Keuze meettechnieken

Radionucliden kunnen alfa-, bèta- en/of gammastralers zijn. Er zijn verschillende technieken om deze verschillende deeltjes in een monster te detecteren. De keuze van de meettechnieken is beperkt vanwege de biologische agentia in het rioolwater. Voor de technieken gammaspectrometrie en vloeistofscintillatietelling (*liquid scintillation counting*, LSC) hoeft het RN-laboratorium de monsters niet verder te bewerken na ontvangst van het NRS-laboratorium en kan de container met monster gesloten blijven. Deze twee technieken zijn toereikend voor het doel van de pilotstudie.

De grootste kans op het aantreffen van radionucliden betreft medische isotopen. Dat zijn voor het grootste deel gammastralers (paragraaf 3.3), die met gammaspectrometrie kunnen worden geïdentificeerd en gekwantificeerd. Met LSC kunnen de alfa- en bètadeeltjes worden gedetecteerd. Deze techniek is niet nuclide-specifiek.

## 5.6 Monstervoorbereiding

Het NRS-laboratorium heeft uit elk genomen monster een monster voor gammaspectrometrie en een monster voor LSC voorbereid, zonder het monster biologisch inactief te maken. De monstervoorbereiding in het NRS-laboratorium vond plaats op de dag van ontvangst, dat wil zeggen wanneer deze in de ochtend worden ontvangen (dag 3) of wanneer de monsters later op de dag waren bezorgd op de ochtend erna (dag 4). Voor de monstervoorbereiding zijn vanuit het RN-laboratorium de benodigdheden voor de voorbereiding verstrekt. De monstervoorbereiding kost weinig tijd, waardoor de metingen op radioactiviteit in principe op dezelfde dag door het radionuclidenlaboratorium uitgevoerd kunnen worden.

### 5.6.1 Gammaspectrometrie

Voor de nuclide-specifieke gamma-analyse is 250 ml aangezuurd monster nodig. Het aanzuren tot pH < 2 is gedaan door toevoeging van salpeterzuur (HNO<sub>3</sub>). Het zuur zorgt ervoor dat de radionucliden niet aan de wand van de fles adsorberen. Aanzuren kan het beste zo snel mogelijk gebeuren [65]. Tijdens de eerste meetserie is de aanzuring



gedaan door het NRS-laboratorium. Om de kans te verkleinen dat de radionucliden aan de wand van de fles adsorberen (met name tijdens het vervoer van het monster vanaf het waterlaboratorium naar het RIVM), heeft het waterlaboratorium de monsters vanaf de tweede meetserie in vooraf aangezuurde flessen geschept. Daarna heeft het NRS-laboratorium nog de pH van de geleverde monsters gecontroleerd.

Het aangezuurde monster is overgegoten in een plexiglas teldeos van circa 330 ml, met daarin 7,5 g aan behangplaksel (*Perfax Methyl Normaal en zwaar behang, Henkel*). Vervolgens is de teldeos afgesloten en geschud tot de inhoud van het mengsel een homogene stijve massa is geworden [65]. Dit 'geleren' is gedaan om te voorkomen dat de radioactieve componenten tijdens de lange teltijd (1000 minuten) van de analyse [66] uitzakken.

#### 5.6.2 *Liquid scintillation counting (LSC)*

Voor de totaal alfa/bèta analyse wordt 8 ml gefilterd monster afgemeten. Deze wordt samen met 12 ml scintillatiecocktail (*Ultima Gold XR LLT, Perkin Elmer*) in een kunststof LSC-telflesje (*Perkin Elmer*) van 20 ml geschonken.

### 5.7 Meettechnieken

De meetklare monsters worden gemeten op verschillende radionucliden via gammaspectrometrie (nuclide-specifiek) en op totaal alfa/bèta-straling (niet nuclide-specifiek) via LSC. De minimaal detecteerbare activiteit (MDA) verschilt per meting. De metingen zijn gedaan aan de hand van een spectrum waarin (achtergrond)ruis zit. Aangezien deze ruis willekeurig is, is het spectrum bij iedere meting verschillend.

#### 5.7.1 *Nuclide-specifieke gamma-analyse*

De monsters worden gemeten op een N-type HPGe halfgeleiderdetector (*Mirion Technologies*), gekoppeld aan een *Mirion* pulssorteerder (model DSA-1000) met 8192 kanalen over een energiebereik van 30 keV tot 2 MeV in een meettijd van 1.000 minuten.

Het spectrum wordt geanalyseerd met behulp van de analyseprogramma's *Genie2000* [67] en *Apex-Gamma* [68] aan de hand van een standaard gebruikte nuclidenbibliotheek, aangevuld met Lu-177, Lu-177m en Tc-99m (zie Tabel 5-3). Pieken die wel gedetecteerd zijn in het spectrum maar niet door het programma toe te wijzen zijn aan één van de nucliden uit de bibliotheek, worden na een visuele inspectie handmatig aan een nuclide toegeschreven.

Bij de analyse is de gemeten activiteitsconcentratie van de gedetecteerde nucliden gecorrigeerd voor radioactief verval. De waarde uit de analyse geeft daarmee de activiteitconcentratie weer van het influentwater op de bemonsteringsdag.

*Tabel 5-3 Overzicht van de radionucliden die onderzocht zijn op aanwezigheid in de rioolwatermonsters via analyse van de gammaspectra.*

Be-7	Rb-83	Sn-113	I-133	W-181	Ra-223
Na-22	Sr-85	Cd-115	Xe-133	W-185	Ra-226
Na-24	Y-88	Cd-115m	Cs-134	Re-186	Th-227
K-40	Nb-94	Te-121	Cs-136	W-188	Ac-228
Cr-51	Nb-95	Te-123m	Cs-137	Os-191	Th-230
Mn-54	Tc-95m	Sb-124	Ce-139	Tl-202	Pa-231
Co-56	Zr-95	I-125	Ba-140	Hg-203	Pa-234m
Co-57	Mo-99	Sb-125	La-140	Pb-203	Th-234
Co-58	Tc-99m	I-129	Ce-141	Tl-208	U-234
Fe-59	Ru-103	Te-129	Ce-144	Pb-210	U-235
Co-60	Ru-106	Te-129m	Eu-152	Bi-212	Am-241
Zn-65	Ag-108m	I-131	Eu-154	Pb-212	
Ga-67	Cd-109	I-132	Eu-155	Bi-214	
Se-75	Ag-110m	Te-132	Lu-177	Pb-214	
Br-82	In-111	Ba-133	Lu-177m	Rn-219	

### 5.7.2 Totaal alfa/bèta-analyse

De monsters zijn gemeten met een *Perkin Elmer*-vloeistofscintillatieteller [69]. Hierbij is het softwareprogramma *QuantaSmart* [70] gebruikt. De meettijd was ingesteld op 120 minuten en een *Pulse Decay-Discriminator*(PDD)-setting van 150. Dat laatste is om de alfa- en bèta-pulsen in de meting van elkaar te onderscheiden.

Omdat het in dit geval onbekend is welke radionucliden in het monster aanwezig zijn, kunnen bij de bepaling van de totaal-alfa en totaal-bèta concentraties niet gecorrigeerd worden voor het radioactief verval tussen bemonstering en analyse. De waarde uit de analyse geeft daarom de activiteitconcentratie weer op het moment van de meting.

## 6 Resultaten

Dit hoofdstuk presenteert de metingresultaten. Daarbij is niet alleen onderzocht of er nog radioactieve nucliden konden worden aangetroffen, maar is ook de geschiktheid van de infrastructuur voor dergelijke metingen onderzocht.

Dit hoofdstuk begint met de bevindingen over de NRS-infrastructuur bij de uitgevoerde meetseries (paragraaf 6.1) en eindigt met de meetresultaten van de proefmetingen (paragraaf 6.2)

### Samenvatting

Antwoord op deelvraag vii: *Welke radionucliden zijn aantoonbaar in een proefmonster via gammaspectrometrie? Zijn alfa- en/of bèta-stralers meetbaar in een proefmonster met vloeistofscintillatie (liquid scintillation counting, LSC)?*

I-131 en Lu-177 afkomstig van medische toepassingen zijn nog aantoonbaar in het beschikbare influent via gammaspectrometrie, wanneer de watermonsters binnen vier dagen na bemonstering worden gemeten. Met LSC is in de geanalyseerde monsters alleen bèta-straling gedetecteerd.

### 6.1 Geschiktheid van de NRS-infrastructuur

De samenwerking en communicatie tussen de verschillende partijen is goed verlopen. Vooral de samenwerking en communicatie tussen het NRS- en RN-laboratorium was essentieel voor een correcte monstervoorbereiding en snelle analyse van de meetseries.

Bij de uitvoering van het onderzoek is op bepaalde punten afgeweken van de geplande methode, bijvoorbeeld door miscommunicatie of logistieke problemen. De afwijkingen zijn in de volgende paragraaf per meetserie besproken, met het eventuele effect op de meetresultaten.

Voor deze pilotstudie heeft het waterlaboratorium vanaf meetserie 2 de aanzuring van de monsters voor gammaspectrometrie uitgevoerd. Dit bleek goed mogelijk en betekende dat de aanzuring direct bij het scheppen van de monsters gebeurde, in plaats van na het transport naar het NRS-laboratorium in Bilthoven. Dit laatste is belangrijk, omdat aanzuring ter voorkoming van hechten van radionucliden aan de wand het liefst zo snel mogelijk moet gebeuren. Omdat de monsters biologische agentia bevatten, heeft het NRS-laboratorium de verdere monstervoorbereiding (zoals beschreven in paragraaf 5.6) uitgevoerd. Dit was mogelijk, omdat het ging om relatief eenvoudige handelingen voor een beperkt aantal monsters. Wanneer het meten van radioactiviteit in rioolwater op grote schaal zou worden uitgerold, zou het NRS-laboratorium in de huidige configuratie geen capaciteit hebben om de monstervoorbereidingen uit te voeren.

## 6.2 Meetresultaten

In de volgende paragrafen zijn de meetresultaten van de vier meetseries samengevat. De minimaal detecteerbare activiteit (MDA) varieert vanwege de achtergrondruis per meting voor de LSC-meting en daarnaast ook per radionuclide voor de gamma-metingen. Voor alfa- en bètastralers is de MDA van LSC respectievelijk typisch  $0,7 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$  en  $6 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ . Enkele voorbeelden van de MDA van radionucliden bij de gammaspectrometrie-metingen:

- Tc-99m:  $\sim 9 \cdot 10^1 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$
- In-111:  $\sim 0,3 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$
- I-131:  $\sim 0,8 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$
- Lu-177:  $\sim 6 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$
- Ra-226:  $\sim 5 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$

### 6.2.1 Meetserie 1

Bij RWZI A en C, waarbij ziekenhuizen zijn aangesloten, is I-131 gemeten in de monsters met gammaspectrometrie, zie Tabel 6-1. Daarnaast is bij RWZI A ook totaal-bèta gevonden. Het volumedebiet  $Q_{\text{influent}}$  is lager dan de hydraulische capaciteit (zie Tabel 5-1) op de dagen van bemonstering bij alle drie RWZI's. Eventuele overstorting is daarmee uitgesloten.

#### **Opmerkingen bij meetserie 1:**

De aanzuring van de monsters voor gammaspectrometrie is bij meetserie 1 gedaan op het NRS-laboratorium, enkele dagen na bemonstering. Het is onbekend of de tijd tussen bemonstering en aanzuring invloed heeft gehad op de meetresultaten (door adsorptie van radionucliden aan de wand van de fles). Verder wijkt de tijd tussen bemonstering en analyse,  $\Delta t$ , van RWZI A af van de andere twee RWZI's. Dit komt omdat de monsterflesjes van RWZI A waren zoekgeraakt. Daarom is voor RWZI A enkele dagen na de geplande bemonsteringsdag opnieuw een monster genomen.

*Tabel 6-1 Meetgegevens en -resultaten van meetserie 1, uitgevoerd op het influent bij drie rioolwaterzuiveringsinstallaties (RWZI's). Hierbij is  $\Delta t$  de tijdsperiode tussen de bemonsterings- en de analysedag,  $Q_{\text{influent}}$  is het gemeten debiet van het influent bij de RWZI op die dag (gegevens ontvangen van waterlaboratorium), totaal- $\alpha/\beta$  is de activiteitsconcentratie gemeten met liquid scintillation counting (LSC) ongecorrigeerd voor verval tussen bemonstering en analyse,  $\gamma_{\text{I-131}}$  is de activiteitsconcentratie van I-131 gecorrigeerd voor verval tussen bemonstering en analyse, gemeten met behulp van gammaspectroscopie, en MDA is de minimale detecteerbare activiteit.*

RWZI	Bemonsteringsdag	$\Delta t$ [dag]	$Q_{\text{influent}}$ [ $\text{m}^3\cdot\text{dag}^{-1}$ ]	totaal- $\alpha$ [ $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ ]	totaal- $\beta$ [ $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ ]	$\gamma_{\text{I-131}}$ [ $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ ]
A	donderdag	4	2E+04	<MDA	$16 \pm 3$	$15,9 \pm 0,8$
B	maandag	7	6E+03	<MDA	<MDA	< MDA
C	maandag	7	8E+04	<MDA	<MDA	$1,45 \pm 0,16$

### 6.2.2 Meetserie 2

Tabel 6-2 geeft de resultaten van de tweede meetserie weer. Net als bij meetserie 1 is I-131 gedetecteerd bij RWZI A en RWZI C. Bij deze twee RWZI's zijn ook totaal-bèta gevonden. Bij alle drie RWZI's heeft geen

overstorting plaatsgevonden (het volumedebiet is lager dan de hydraulische capaciteit).

**Opmerking bij meetserie 2:**

Door het waterlaboratorium is 250 ml aangezuurd watermonster geleverd voor de gammaspectrometrie-metingen. Bij de monstervoorbereiding is dit aangezuurde monster ook gebruikt voor de LSC-meting, waardoor er te weinig monster overbleef voor de gammaspectrometrie. Voor deze meetserie is daarom 240 ml in plaats van de standaard 250 ml gebruikt voor de gammaspectrometrie-metingen. De gammaspectrometrie-metingen zijn uitgevoerd met aangepaste instellingen om voor het kleinere volume te compenseren.

*Tabel 6-2 Meetgegevens en -resultaten van meetserie 2, uitgevoerd op het influent bij drie rioolwaterzuiveringsinstallaties (RWZI's). Hierbij is  $\Delta t$  de tijdsperiode tussen de bemonsterings- en de analysedag,  $Q_{\text{influent}}$  is het gemeten debiet van het influent bij de RWZI op die dag (gegevens ontvangen van waterlaboratorium), totaal- $\alpha/\beta$  is de activiteitsconcentratie gemeten met liquid scintillation counting (LSC) ongecorrigeerd voor verval tussen bemonstering en analyse,  $\gamma_{I-131}$  is de activiteitsconcentratie van I-131 gecorrigeerd voor verval tussen bemonstering en analyse, gemeten met behulp van gammaspectroscopie, en MDA is de minimale detecteerbare activiteit.*

RWZI	Bemonsteringsdag	$\Delta t$ [dag]	$Q_{\text{influent}}$ [ $\text{m}^3 \cdot \text{dag}^{-1}$ ]	totaal $\alpha$ [ $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ ]	totaal $\beta$ [ $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ ]	$\gamma_{I-131}$ [ $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ ]
A	dinsdag	3	2E+04	<MDA	29 ± 5	55 ± 4
B	dinsdag	3	7E+03	<MDA	<MDA	< MDA
C	dinsdag	3	5E+04	<MDA	42 ± 7	48 ± 4

### 6.2.3

**Meetserie 3**

In deze meetserie zijn er geen detecteerbare hoeveelheden radioactiviteit gevonden, zie Tabel 6-3. Dit heeft wellicht te maken met de lange tijdsperiode tussen bemonstering en analyse en de bemonsteringsdag op zondag voor RWZI A en B. Bij alle drie de RWZI's heeft geen overstorting plaatsgevonden (het volumedebiet is lager dan de hydraulische capaciteit).

**Opmerking bij meetserie 3:**

De gammaspectrometrie-metingen bij meetserie 3 zijn vanwege logistieke problemen bij het radionuclidenlaboratorium een week later dan gepland uitgevoerd ( $\Delta t = 9$  of 10 dagen). Dit had invloed op het resultaat. De activiteit kan dusdanig vervallen zijn dat deze niet meer tijdens de meting detecteerbaar was. De LSC-metingen van meetserie 3 konden wel op de geplande dag worden uitgevoerd ( $\Delta t = 3$  of 4 dagen).

Tabel 6-3 Meetgegevens en -resultaten van meetserie 3, uitgevoerd op het influent bij drie rioolwaterzuiveringsinstallaties (RWZI's). Hierbij is  $\Delta t$  de tijdsperiode tussen de bemonsterings- en de analysedag (zie opmerking hierboven),  $Q_{\text{influent}}$  is het gemeten debiet van het influent bij de RWZI op die dag (gegevens ontvangen van waterlaboratorium), totaal- $\alpha/\beta$  is de activiteitsconcentratie gemeten met liquid scintillation counting (LSC), ongecorrigeerd voor verval tussen bemonstering en analyse,  $\gamma_{I-131}$  is de activiteitsconcentratie van I-131 gecorrigeerd voor verval tussen bemonstering en analyse, gemeten met behulp van gammaspectroscopie en MDA is de minimale detecteerbare activiteit.

RWZI	Bemonsteringsdag	$\Delta t$ [dag]	$Q_{\text{influent}}$ [ $\text{m}^3 \cdot \text{dag}^{-1}$ ]	totaal $\alpha$ [ $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ ]	totaal $\beta$ [ $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ ]	$\gamma_{I-131}$ [ $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ ]
A	zondag	10 / 4	2E+04	<MDA	<MDA	<MDA
B	zondag	10 / 4	7E+03	<MDA	<MDA	<MDA
C	maandag	9 / 3	5E+04	<MDA	<MDA	<MDA

#### 6.2.4

##### Meetserie 4

In het influent van beide RWZI's is I-131 gedetecteerd. Bij RWZI D is ook Lu-177 gedetecteerd (zie Tabel 6-4). Voor beide monsters die in deze meetserie zijn gemeten, is geen totaal-alfa of totaal-bèta gevonden. Bij deze meetserie heeft geen overstorting plaatsgevonden (het volumedebiet is lager dan de hydraulische capaciteit bij beide RWZI's).

##### Opmerking bij meetserie 4:

Bij deze meetserie was sprake van miscommunicatie over de bemonsteringsdag. De 'bemonsteringsdag' kan namelijk op twee manieren worden geïnterpreteerd: (1) de dag van bemonstering waar het influent 24 uur lang opgevangen wordt (interpretatie RIVM); of (2) de dag dat het opgevangen influent overgeschept wordt in flesjes (interpretatie waterschap). De monsters zijn daarom een dag eerder bemonsterd dan gepland.

Tabel 6-4 Meetgegevens en -resultaten van de laatste proefmeetserie (meetserie 4), uitgevoerd op het influent bij twee rioolwaterzuiveringsinstallaties (RWZI's). Hierbij is  $\Delta t$  de tijdsperiode tussen de bemonsterings- en de analysedag,  $Q_{\text{influent}}$  is het gemeten debiet van het influent bij de RWZI op die dag,  $\gamma_{\text{Lu-177}}$  en  $\gamma_{I-131}$  is respectievelijk de activiteitsconcentratie van Lu-177 en I-131 op bemonsteringsdag gemeten met gammaspectroscopie, en MDA is de minimale detecteerbare activiteit.

RWZI	Bemonsteringsdag	$\Delta t$ [dag]	$Q_{\text{influent}}$ [ $\text{m}^3 \cdot \text{dag}^{-1}$ ]	$\gamma_{\text{Lu-177}}$ [ $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ ]	$\gamma_{I-131}$ [ $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ ]
D	maandag	2	4E+04	5,1 ± 0,7	0,25 ± 0,07
E	maandag	2	2E+05	<MDA	1,06 ± 0,14

## 7 Discussie

### 7.1 Gedetecteerde radionucliden

In de geanalyseerde influentmonsters zijn twee radionucliden geïdentificeerd: I-131 en Lu-177. De medische isotopen I-131 en Lu-177 zijn ook door Rijkswaterstaat gevonden in oppervlaktewater en zwevend stof [37]. I-131 is daarnaast gevonden in meerdere wetenschappelijke studies naar radioactiviteit in rioolwater (zie hoofdstuk 4).

Voor deze pilotstudie zijn modelberekeningen uitgevoerd, waaruit blijkt dat de veelgebruikte medische isotopen Tc-99m en F-18 alleen gedetecteerd kunnen worden in influentmonsters als de tijd tussen bemonstering en meting sterk wordt verkort. Dat laatste geldt ook voor I-123.

Uit de berekeningen blijkt dat zes andere medische isotopen ook mogelijk detecteerbaar zijn in het influent: Sr-89, In-111, Sm-153, Er-169, Re-186 en Re-188. Deze zijn nu niet gedetecteerd. Dit kan komen omdat ze niet zijn geloosd op de betreffende RWZI op de bemonsteringsdag, of omdat de activiteitsconcentratie door verdunning of radioactief verval te veel is afgenomen. De modelberekeningen zijn gebaseerd op een RWZI met mediaan debiet ( $9 \cdot 10^3 \text{ m}^3 \cdot \text{dag}^{-1}$ ) en een periode van drie dagen tussen lozing en meting, terwijl de meeste monsters genomen waren bij RWZI's met een hoger debiet (meer verdunning) en de tijd tussen bemonstering en meting ook vaak langer was dan drie dagen.

Naast gamma- is ook totaal- $\beta$ -activiteit gevonden in de geanalyseerde influentmonsters. Aangezien I-131 en Lu-177 ook  $\beta$ -stralers zijn, is dat in de lijn der verwachting. De gevonden activiteitswaarden uit de LSC-metingen wijken af van de waarden uit de gammaspectrometrie-metingen. Hiervoor zijn er verschillende redenen. Een reden is dat de gemeten activiteitsconcentratie met LSC de waarde weergeeft op het moment van de meting, anders dan de activiteitsconcentratie bij de gammaspectrometrie-analyse. Deze laatste waarde representeert namelijk de activiteitsconcentratie op de bemonsteringsdag. Een andere reden is dat er ook andere  $\beta$ -stralers in de monsters kunnen zitten dan bijvoorbeeld I-131 en/of Lu-177. De LSC-waarde geeft de activiteitsconcentratie aan van alle  $\beta$ -stralers samen, terwijl de gammaspectrometrie de waarde geeft van een specifiek radionuclide.

### 7.2 Omvang van de lozingen

Uit de gemeten activiteitsconcentratie in de monsters en het debiet van de RWZI kan worden bepaald wat de omvang van een lozing in het brongebied van de RWZI in kwestie was. De grootste berekende lozing van I-131 was 2,4 GBq (meetserie 2, RWZI C). Lu-177 is in één monster gedetecteerd (meetserie 4, RWZI D). De berekende omvang van deze lozing was 0,2 GBq.

De afschaffing van de verplichte betij tanks bij afdelingen nucleaire geneeskunde rond 1993 was gebaseerd op de consensus dat de uitgescheiden hoeveelheid radioactiviteit door patiënten behandeld met radiofarmaca verwaarloosbaar is door verdunning in het milieu (vanwege het gebruik van kortlevende radionucliden Tc-99m en I-131) [15]. Uit de meetresultaten blijkt echter dat de geloosde activiteit van I-131 en Lu-177 hoger is dan wat vroeger was toegestaan (0,37 MBq in vier weken tijd, zie paragraaf 3.1.2).

Recentere studies [59] [71] bepleitten het belang van het gebruik van betij tanks vanwege de gemeten I-131 activiteitsconcentratie in het rioolwater. Volgens een publicatie uit 2004 zijn I-131-lozingen uit ziekenhuizen verreweg de belangrijkste bron van blootstelling aan radioactieve straling bij rioolwerkers [72]. Daarnaast stelt het *International Atomic Energy Agency* (IAEA) in een rapport uit 2013 dat er niet alleen naar activiteitslozingen van individuele instellingen gekeken moest worden, maar ook rekening gehouden moest worden met het gegeven dat verschillende instellingen kunnen lozen op dezelfde RWZI [45].

### 7.3 Aanbevelingen voor mogelijke toekomstige onderzoeken

Op basis van de bevindingen in de pilotstudie naar radionucliden in rioolwater is hieronder een aantal aanbevelingen voor toekomstig onderzoek geformuleerd. Hoewel de pilotstudie zich richtte op influent-rioolwatermonsters (door de mogelijkheden van de NRS), zijn aanbevelingen breder geformuleerd dan alleen betreffende (influent) rioolwater. Dit omdat het influent-rioolwater feitelijk een afgeleide is van enerzijds de oorspronkelijke lozingen (maar dan verdund), en anderzijds het oppervlaktewater en milieu (maar dan juist geconcentreerd). Daarom wordt hieronder ook wel gesproken over afvalwater in plaats van rioolwater.

Een belangrijke stap voor toekomstig onderzoek naar radionucliden in afvalwater is het vaststellen van het doel van dat toekomstig onderzoek en de vraag die beantwoord moet worden.

#### **Aanbeveling**

Doel en vraag van toekomstig onderzoek over radionucliden in afvalwater bepalen.

Het doel van toekomstig onderzoek zal namelijk in grote mate bepalen *waar* in het systeem van afvalwaterverwerking (bijvoorbeeld RWZI's of lozingspunten van instellingen) *welk type* monsters (e.g. influent-rioolwater, effluent rioolwater, zuiveringsslib) genomen moeten worden, alsook de *frequentie* van monsternamen (e.g. incidenteel, jaarlijks, meerdere keren per jaar) en analysemethode (onder andere type metingen en tijd tussen bemonstering en analyse). Als de focus bijvoorbeeld zou komen te liggen op de gevolgen voor de bevolking en het milieu, dan ligt het niet voor de hand om influent-rioolwater te bemonsteren, omdat juist het effluent datgene is dat in het milieu terecht komt. Daarnaast is de relatie tussen de hoeveelheid radionucliden in influent en in effluent rioolwater momenteel niet bekend. Voorts kan het voor sommige onderzoeken nuttig zijn om het



zwevend stof te analyseren, en niet het totaalwater zelf (water met daarin zwevend stof), zoals ook is gedaan in de meetprogramma's van Rijkswaterstaat (paragraaf 3.4.2).

### **Aanbeveling**

De keuze voor bemonsteringspunten, typen monsters, moment en frequentie van monsternamen, en analysemethode afstemmen op het onderzoeksdoel.

Algemeen kan wel worden gesteld dat de geschiktheid van de NRS-infrastructuur voor vervolgonderzoeken beperkt is vanwege de lange tijd tussen bemonstering en meting op het RN-laboratorium.

#### **7.3.1** *Gevolgen van lozingen voor mens en milieu*

Een vervolgonderzoek kan zich richten op het in kaart brengen van de gevolgen van lozingen op het rioolwater. Hierbij kunnen twee soorten gevolgen worden onderscheiden:

- gevolgen voor de bevolking en/of het milieu;
- gevolgen voor medewerkers op een RWZI of bij werkzaamheden elders in het rioleringsstelsel.

In het eerste geval is de activiteitsconcentratie in het effluent relevant, omdat dit is wat op het oppervlaktewater wordt geloosd. Het effluent is in deze pilotstudie niet onderzocht. Het oppervlaktewater wordt wel regelmatig bemonsterd binnen het monitoringsprogramma van Rijkswaterstaat.

Voor een onderzoek naar de gevolgen voor medewerkers zal het nodig zijn om op verschillende stappen in het zuiveringsproces metingen te verrichten. Te denken valt hier bijvoorbeeld aan influent, effluent, slib, en verwijderd (grof)vuil. Diverse studies laten zien dat het slib meer radioactiviteit bevat dan water [55] [57] [59] [60] [61]. Dit suggereert dat radionucliden zich mogelijk beter hechten aan vaste stof. De ophoping van radioactieve stoffen in het zuiveringsproces kan leiden tot een onbedoelde extra blootstelling aan straling bij werknemers in riolen en RWZI's. I-131 geloosd door ziekenhuizen is momenteel verreweg de belangrijkste bron van blootstelling aan ioniserende straling bij rioolwerkers [72]. De geschatte doses van deze werknemers liggen overigens wel onder de dosislimiet van 1 mSv·jaar<sup>-1</sup>. Wat de bijdrage van Lu-177 is of gaat zijn, is op dit moment uit de literatuur niet bekend. Met meer metingen van rioolwater (inclusief slib en (grof)vuil) en modelberekeningen kan een dosisschatting gedaan worden.

#### **7.3.2** *Radiologische achtergrondwaarde in Nederlandse riool*

Uit de meetresultaten van deze pilotstudie kan niet worden bepaald wat de achtergrondwaarde is, dat wil zeggen de 'normale' activiteitsconcentratie van het rioolwater in Nederland. Zo zijn kortlevende radionucliden ( $t_{1/2} < 1$  dag) met de in deze pilotstudie gebruikte methode niet detecteerbaar. Daarnaast zijn monsters genomen bij slechts 5 van de in totaal 315 RWZI's in Nederland.

Om de achtergrondwaarde wel te kunnen bepalen, moeten metingen worden gedaan bij een groter aantal RWZI's. Het gaat hierbij niet enkel

om de RWZI's waarop een instelling is aangesloten met vergunning voor lozen op het riool. Ook op de andere RWZI's kan worden geloosd (vrijgestelde lozingen). Daarnaast moeten metingen worden gedaan op verschillende weekdays, omdat de lozingen van ziekenhuizen naar het riool variëren gedurende de week (zie paragraaf 4.3.2).

Vervolgonderzoeken zouden zich bijvoorbeeld kunnen richten op:

- Het in kaart brengen van de variatie in de tijd bij één of enkele RWZI's.
- Het onderzoeken of metingen bij een beperkt aantal RWZI's een representatief beeld kunnen geven van de situatie in Nederland.

Bij de opzet van dergelijke vervolgonderzoeken moet rekening worden gehouden met de beperkte capaciteit van het RN-laboratorium.

### **Aanbeveling**

Meer metingen doen van rioolwater of afvalwater, verspreid over Nederland.

#### 7.3.3

##### *Lozingen uit specifieke sectoren*

Het bepalen van een achtergrondwaarde biedt de mogelijkheid om de lozingen van radioactieve stoffen op het openbare riool in kaart te brengen. De gemeten waarden kunnen worden gekoppeld aan de gerapporteerde lozingen. Uit het RIVM briefrapport van 2019 [17] kwam naar voren dat ondernemers meestal minder activiteit lozen dan de vergunde hoeveelheid en wordt het geloosde ook niet altijd in het jaarverslag opgenomen. Daarnaast zijn lozingen minder dan 10  $Re_{ing}$  vrijgesteld van vergunningsplicht, waardoor informatie over deze lozingen ontbreekt. Er is dus momenteel geen zicht op de hoeveelheid radioactieve stoffen die daadwerkelijk in het riool belanden.

Als er een globaal beeld is van aanwezigheid van radionucliden in rioolwater door onderzoek van influent-rioolwater, kan op indicatie stroomopwaarts het afvalwater dicht bij een mogelijk lozingspunt worden onderzocht. Dit geeft minder (onbekende) verdunning van het monster en meer informatie over de origine van het afvalwater. Bemonstering bij een RWZI geeft deze informatie niet.

Het toekomstperspectief in Nederland is dat het gebruik van radiofarmaca gaat toenemen, zowel in het aantal toedieningen als in het aantal gebruikte medische isotopen. Te denken valt daarbij aan radiofarmaca, gebaseerd op medische isotopen als Lu-177, Ac-225, Tb-161 en Sc-44 [73] [74] [75], waarbij ook rekening moet worden gehouden met eventuele aanwezige langlevende bijproducten, zoals Lu-177m. Naast een toename in gebruik binnen een ziekenhuis kan ook het aantal medische instellingen dat nucleair geneeskundige behandelingen aanbiedt groeien. Hierdoor kan de totale hoeveelheid radioactiviteit die jaarlijks wordt geloosd op een RWZI stijgen, terwijl elke individuele instelling minder dan 100  $Re_{ing}$  loost.

Door het toenemende gebruik van medische isotopen en de opkomst van nieuwe medische isotopen, kan een evaluatie van de lozingssituatie van de medische sector in Nederland zinvol zijn. Deze kan meer inzicht geven in de hoeveelheid medische isotopen die in ons milieu

terechtkomt en op de impact van deze stoffen op medewerkers bij bijvoorbeeld een RWZI [76].

#### 7.3.4

##### *Radionucliden in zuiveringslib*

Uit de gevonden literatuur blijkt dat zuiveringslib hogere concentraties radionucliden kan bevatten dan influent of effluent rioolwater [55] [57] [60] [61]. Bij het huidige onderzoek viel slib buiten de scope. Bovendien werd tot een paar jaar geleden alle zuiveringslib in Nederland centraal verzameld en verbrand. Uit gesprekken met medewerkers van RWZI's is echter gebleken dat inmiddels meer toepassingen van slib ontstaan, waaronder gebruik als biobrandstof in de eigen RWZI en het terugwinnen van grondstoffen uit slib. Op dit moment is er nauwelijks tot geen informatie beschikbaar over radionucliden in zuiveringslib in Nederland en daarmee ook niet over de gevolgen voor de blootstelling van de bevolking of werknemers.

#### **Aanbeveling**

Metingen uitvoeren van radionucliden in zuiveringslib.



## 8 Conclusie

Deze pilotstudie is geïnitieerd met als primaire doelstelling de detectie van radionucliden in het Nederlandse rioolwater te onderzoeken via de infrastructuur, opgezet voor de Nationale Rioolwatersurveillance. In totaal zijn vier series aan metingen uitgevoerd. Per serie zijn influentmonsters van twee of drie RWZI's op radioactiviteit gemeten. In totaal zijn elf monsters geanalyseerd met LSC en gammaspectrometrie.

In een aantal van deze monsters zijn de medische isotopen I-131 en Lu-177 zijn aangetroffen, met activiteitsconcentraties tot enkele tientallen Bq per liter. Dit komt overeen met geloosde hoeveelheden tot enkele GBq. Andere radionucliden zijn niet geïdentificeerd in deze monsters. Met name de veelgebruikte medische isotopen F-18 en Tc-99m zijn niet aantoonbaar in influentmonsters genomen in de NRS-infrastructuur. Hiervoor is de periode tussen bemonstering bij de RWZI en meting in het RN-laboratorium te lang.

In dit onderzoek is ook een aantal aanbevelingen gedaan over mogelijk toekomstig onderzoek.



## Literatuuroverzicht

1. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu. *Rioolonderzoek*. Beschikbaar via <https://www.rivm.nl/rioolwateronderzoek>. (Geraadpleegd 21 november 2023).
2. Centraal Bureau voor de Statistiek. *Zuivering van stedelijk afvalwater; procesgegevens afvalwaterbehandeling*. Beschikbaar via <https://opendata.cbs.nl/statline/#/CBS/nl/dataset/83399NED/table?fromstatweb>. (Geraadpleegd 27 september 2023).
3. Stichting RIONED, *Riolering in beeld; Benchmark rioleringszorg 2013*. 2013.
4. Unie van Waterschappen. *Wat doen de waterschappen?* Beschikbaar via <https://www.waterschappen.nl/wat-doen-de-waterschappen/>. (Geraadpleegd 27 september 2023).
5. Centraal Bureau voor de Statistiek. *Inwoners per rioolwaterzuiveringsinstallatie, 1-1-2022*. Beschikbaar via <https://www.cbs.nl/nl-nl/maatwerk/2022/42/inwoners-per-rioolwaterzuiveringsinstallatie-1-1-2022>. (Geraadpleegd 27 september 2023).
6. Unie van Waterschappen. *WAVES: Waterschap Analyse- en Verbeterssysteem*. Beschikbaar via <https://live-waves.databank.nl/dashboard/dashboard/gezuiverd-water>. (Geraadpleegd 27 september 2023).
7. Kenniscentrum InfoMil. *Het technische proces van een RWZI*. Beschikbaar via <https://www.infomil.nl/onderwerpen/lucht-water/handboek-water/activiteiten/lozen-biologisch/behandeling-stedelijk-afvalwater/rwzi-techniek/>. (Geraadpleegd 21 november 2023).
8. Unie van Waterschappen. *Slibverwerking*. Beschikbaar via <https://unievanwaterschappen.nl/waterkwaliteit/slibverwerking/>. (Geraadpleegd 27 september 2023).
9. Stichting Toegepast Onderzoek Waterbeheer (STOWA), *Energie in de waterketen*, STOWA rapportnummer 2010-35, 2010.
10. Unie van Waterschappen, *Nationale afvalwatermonitor: Een snel duurzaam en toekomstgericht systeem voor het opsporen van virus uitbraken via afvalwater; intensivering naar dagelijkse monitoring*, 2020.
11. Nederlandse Normen (NEN), *Water - Monsterneming - Deel1: Afvalwater*, NEN 6600-1, 2019.
12. *Kernenergiewet (Kew)*. Beschikbaar via <https://wetten.overheid.nl/BWBR0002402/2022-02-16>. (Geraadpleegd 27 september 2023).
13. *Besluit basisveiligheidsnormen stralingsbescherming (Bbs)*. Beschikbaar via <https://wetten.overheid.nl/BWBR0040179/2021-07-01>. (Geraadpleegd 27 september 2023).
14. Autoriteit Nucleaire Veiligheid en Stralingsbescherming (ANVS). *ANVS-verordening basisveiligheidsnormen stralingsbescherming*. Beschikbaar via <https://wetten.overheid.nl/BWBR0040581/2023-07-01>. (Geraadpleegd 27 september 2023).

15. H. Eleveld, et al., *Emissies en doses door bronnen van ioniserende straling in Nederland*. RIVM rapport 861020003/2004. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM), 2004.
16. Autoriteit Nucleaire Veiligheid en Stralingsbescherming (ANVS). *Database Gepubliceerde Vergunningen*. Beschikbaar via <https://puc.overheid.nl/anvs/>. (Geraadpleegd 27 september 2023).
17. P.N. Brandhoff en K.H. Cats, *Monitoring van reguliere lozingen van radioactiviteit bij niet-nucleaire installaties*. RIVM-briefrapport 2019-0176. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM), 2019.
18. Nederlandse Vereniging voor Nucleaire Geneeskunde (NVNG). *Afdelingen Nucleaire Geneeskunde*. Beschikbaar via <https://www.nvng.nl/praktijk/afdelingen-nucleaire-geneeskunde>. (Geraadpleegd 27 september 2023).
19. Centraal Informatiepunt Beroepen Gezondheidszorg (CIBG). *Verantwoordingsgegevens per verslagjaar (datasets)*. Beschikbaar via <https://www.jaarverantwoordingzorg.nl/gegevens-bekijken/verantwoordingsgegevens-per-verslagjaar-datasets>. (Geraadpleegd 27 september 2023).
20. H. Eleveld, et al., *Emissies en doses door bronnen van ioniserende straling in Nederland*. RIVM rapport 610100001/2002. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM), 2002.
21. Coördinatiecommissie Uitvoering Wet Verontreiniging Oppervlaktewateren (CUWVO) werkgroep VI, *Afvalwaterproblematiek van ziekenhuizen*. Rijkswaterstaat, Rijksinstituut voor Integraal Zoutwaterbeheer en Afvalwaterbehandeling,, 1986.
22. De Federatie Medisch Specialist. *Richtlijnen: Werken met therapeutische doses radionucliden*. Beschikbaar via [https://richtlijndatabase.nl/richtlijn/therapeutische\\_doses\\_radionucliden/startpagina\\_-\\_therapeutische\\_dosis\\_radionucliden.html](https://richtlijndatabase.nl/richtlijn/therapeutische_doses_radionucliden/startpagina_-_therapeutische_dosis_radionucliden.html). (Geraadpleegd 27 september 2023).
23. L. Boudewijns, M. van der Linden, en D. Siegersma, *De tijdelijke opslag van radioactief afval in ziekenhuizen*. RIVM rapport 2020-0034. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM), 2020. <http://hdl.handle.net/10029/624393>.
24. Nederlandse Zorgautoriteit (NZa), *Verantwoording wijzigingen dbc-release RZ24a, v20230420*, 2023.
25. L. Roobol en I. de Waard, *Marktontwikkeling en leveringszekerheid voor medische radionucliden : Aanvulling op RIVM rapport 2019-0101*. RIVM rapport 2019-0183. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM), 2019. <http://hdl.handle.net/10029/623249>.
26. J.P. Esser en J. van Dalen, *Procedure guidelines nuclear medicine: Dutch society of nuclear medicine 2016* Kloosterhof Neer BV, 2016.



27. D. Siegersma, T. van Dillen, I.R. de Waard, en L.H.A. Boudewijns, *Potentiële stralingsbelasting na het overlijden van patiënten behandeld met radioactieve stoffen*. RIVM briefrapport 2019-0165. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM), 2019.
28. ICRP, *Compendium of Dose Coefficients based on ICRP Publication 60*. ICRP Publication 119. Ann. ICRP, 2012. **41**(Suppl).
29. ICRP, *Nuclear Decay Data for Dosimetric Calculations*. ICRP Publication 107. Ann. ICRP, 2008. **38**(3).
30. K.L. Chatalic, et al., *Towards Personalized Treatment of Prostate Cancer: PSMA I&T, a Promising Prostate-Specific Membrane Antigen-Targeted Theranostic Agent*. *Theranostics*, 2016. **6**(6): p. 849-61.
31. S.A. Mirshahvalad, S. Farzanefar, en M. Abbasi, *Therapeutic Outcomes of (177)Lu-PSMA Targeted Therapy in Patients with Metastatic Castration-Resistant Prostate Cancer: A Single-Center Study*. *Asia Ocean J Nucl Med Biol*, 2023. **11**(1): p. 23-29.
32. W. Thaiss, et al., *Personalized [177Lu]Lutetium-PSMA Therapy for Patients with Pre-Treated Castration-Resistant Prostate Cancer: A Single Institution Experience from a Comprehensive Cancer Centre*. *Cancers (Basel)*, 2023. **15**(12).
33. C.A. Wieczorek Villas Boas, et al., *In vitro and in vivo response of PSMA-617 radiolabeled with CA and NCA lutetium-177*. *Applied Radiation and Isotopes*, 2022. **180**: p. 110064.
34. C. Engeler, *Nationaal meetplan voor metingen in water bij nucleaire ongevallen*. Rijkswaterstaat, 2020.
35. Commissie Integraal Waterbeheer, *Meetplannen voor nucleaire ongevallen en routine metingen*, 2004.
36. Rijkswaterstaat. *Monitoring: Chemie*. Beschikbaar via <https://waterinfo-extra.rws.nl/monitoring/chemie>. (Geraadpleegd 27 september 2023).
37. Rijkswaterstaat. *Dataviewer waterinfo extra*. Beschikbaar via <https://waterinfo.rws.nl/#/nav/expert>. (Geraadpleegd 27 september 2023).
38. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu. *Monitoring van radioactiviteit in drinkwater*. Beschikbaar via <https://www.rivm.nl/straling-en-radioactiviteit/industrie-en-monitoring/milieu-en-voedselmonitoring/monitoring-van-radioactiviteit-in-drinkwater>. (Geraadpleegd 27 september 2023).
39. C.P. Tanzi, *Monitoring of radioactivity in the Netherlands; Surface water and seawater – results 2020 and 2021*. RIVM briefrapport 2023-0072. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM), 2023.
40. Rijkswaterstaat. *Aqualarm Publieke Website*. Beschikbaar via <https://www.aqualarm.nl/apwp/#/locations>. (Geraadpleegd 27 september 2023).
41. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM). *Lage waarden radon in Nederlands grondwater en drinkwater*. Beschikbaar via <https://www.rivm.nl/nieuws/lage-waarden-radon-in-nederlands-grondwater-en-drinkwater>. (Geraadpleegd 21 november 2023).

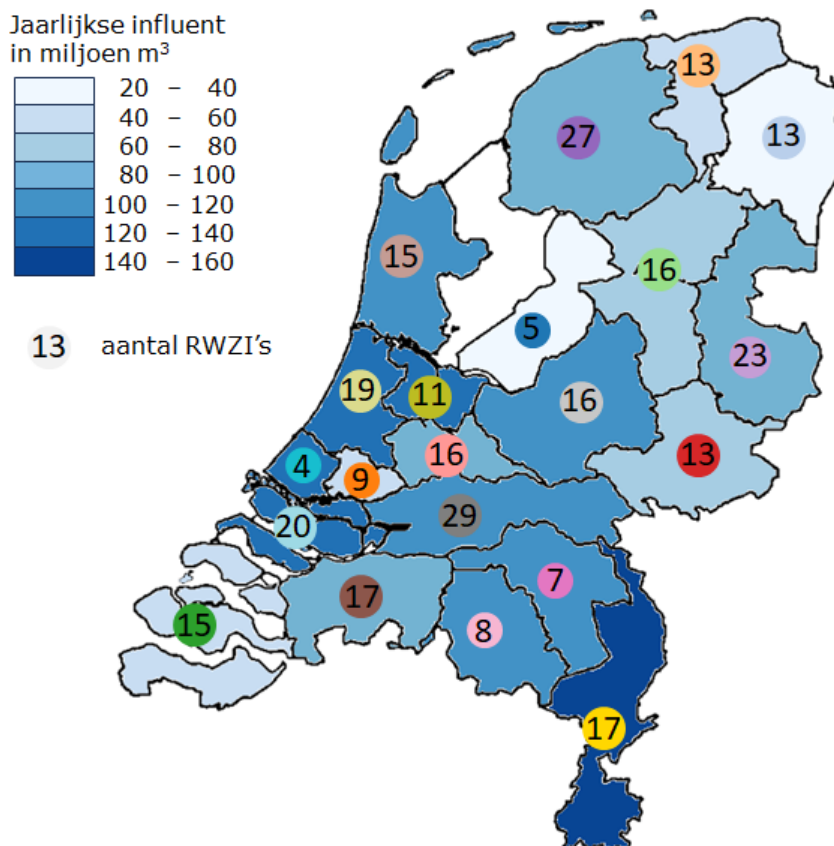
42. P.J.M. Kwakman en J.F.M. Versteegh, *Radon-222 in ground water and finished drinking water in the Dutch provinces Overijssel and Limburg : Measuring campaign 2015*. RIVM rapport 2016-0048. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM), 2016.
43. ICRP, *Release of patients after therapy with unsealed radionuclides*, 2004.
44. ICRP, *Radiological Protection in Therapy with Radiopharmaceuticals*, 2019.
45. IAEA, *Management of Discharge of Low Level Liquid Radioactive Waste Generated in Medical, Educational, Research and Industrial Facilities*, IAEA TECDOC No. 1714, 2013.
46. IAEA, *Clearance of materials resulting from the use of radionuclides in medicine, industry and research*, 1998.
47. OSPAR commission, *Annual report and assessment of discharges of radionuclides from the non-nuclear sectors in 2019*, 2021.
48. OSPAR commission, *Liquid discharges from nuclear installations in 2019*, 2021.
49. J. Claes en L. Sombré, *Report of the campaign on direct measurements (immersed gamma-ray spectrometer probes) conducted at water treatment plants draining waste water from nuclear medical sector*. 2015-01-26-JC/LS-7-3-3-EN. FANC, 2015.
50. R. Avila, I.d.I. Cruz, S. Bergman, en S. Hasselblad, *Radiological consequences of radionuclide releases to sewage systems from hospitals in Sweden*. SSI--2007-10, 0282-4434. Swedish Radiation Safety Authority, 2007.  
[http://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig\\_q=RN:38093207](http://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:38093207).
51. Environment Agency, *Radionuclide discharges to sewer - A field investigation*, 2007.
52. D. Mulas, et al., *Medically-derived radionuclides levels in seven heterogeneous urban wastewater treatment plants: The role of operating conditions and catchment area*. Science of The Total Environment, 2019. **663**: p. 818-829.
53. V. Hormann en H.W. Fischer, *A simple compartment model for the dynamical behavior of medically derived I-131 in a municipal wastewater treatment plant*. Environ. Sci. Technol., 2018. **52**: p. 9235-9242.
54. I. Tsushima, *Behavior of radioactive materials and safety stock of contaminated sludge*. J Environ Sci Health, 2017. **52**: p. 158-165.
55. A. Cosenza, S. Rizzo, A. Sansone Santamaria, en G. Viviani, *Radionuclides in wastewater treatment plants: monitoring of Sicilian plants*. Water Sci Technol, 2015. **71**(2): p. 252-8.
56. A. Camacho, et al., *Behavior of natural radionuclides in wastewater treatment plants*. J Environ Radioact, 2012. **109**: p. 76-83.
57. B.U. Chang, et al., *Medically used radionuclides (<sup>131</sup>I, <sup>99m</sup>Tc) in the urban sewage system: the case of the Daejeon metropolitan city, Korea*. Radiation Protection Dosimetry, 2011. **146**(1-3): p. 318-321.
58. U. Ipek, et al., *Radioactivity in Municipal Wastewater and Its Behavior in Biological Treatment*. Bull Environ Contam Toxicol, 2004. **72**: p. 319-325.

59. F. Mosos, A.M. Velásquez, E.T. Mora, en C.D. Tello, *Determination of <sup>131</sup>I activity concentration and rate in main inflows and outflows of Salitre wastewater treatment plant (WWTP), Bogota*. Journal of Environmental Radioactivity, 2020. **225**: p. 106425.
60. J. Martínez, et al., *Presence of artificial radionuclides in samples from potable water and wastewater treatment plants*. Journal of Environmental Radioactivity, 2018. **192**: p. 187-193.
61. A. Nakamura, N. Hayabuchi, T. Osaki, en S. Osaki, *output of radiopharmaceutical nuclides of known injected doses from a municipal sewage treatment system*. Health Physics, 2005. **88**(2): p. 163-168.
62. D. Mulas. *Levels and behaviour of radionuclides in water treatment plants: the case of the Barcelona metropolitan area urban water cycle*. PhD thesis. Universitat Politècnica de Catalunya, 2019.
63. D.R. McGowan, et al., *Iodine-131 monitoring in sewage plant outflow*. J Radiol Prot, 2014. **34**(1): p. 1-14.
64. Stichting Toegepast Onderzoek Waterbeheer (STOWA), *Bijdrage van ziekenhuisafvalwater aan de emissie van medicijnresten naar oppervlaktewater*, STOWA rapportnummer 2020-14, 2020.
65. P.J.M. Kwakman, *Contra-expertise op bepalingen van radioactiviteit in afvalwater en ventilatielucht van de kernenergiecentrale Borssele - Periode 2018*. RIVM-briefrapport 2019-0161. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM), 2019.
66. *Voorschrift monstervoorbereiding en monsterbehandeling van vloeibare afvalstoffen. Brief van RIVM/LSO aan de nucleaire installaties d.d. 18 september 1990*, 1364/90 VLH Sm/eh,
67. Mirion Technologies, *Genie2000 - Spectroscopy Software Suite*, 2016.
68. Mirion Technologies, *Apex-Gamma - Lab Productivity Suite*, 2017.
69. Perkin Elmer, *TRI-CARB 2910 TR*, 2011.
70. Perkin Elmer, *QuantaSmart*, versie 5.2, 2004.
71. E. Krawczyk, F. Piñero-García, en M.A. Ferro-García, *Discharges of nuclear medicine radioisotopes in Spanish hospitals*. J Environ Radioact, 2013. **116**: p. 93-8.
72. C.E. McDonnell, *Radiological assessments for Small Users*. NRPB-W63. National Radiation Protection Board, Chilton, UK, 2004.
73. A. Morgenstern, C. Apostolidis, en F. Bruchertseifer, *Supply and Clinical Application of Actinium-225 and Bismuth-213*. Seminars in Nuclear Medicine, 2020. **50**(2): p. 119-123.
74. K. Herrmann, et al., *Radiotheranostics: a roadmap for future development*. Lancet Oncol, 2020. **21**(3): p. e146-e156.
75. C. Müller, K.A. Domnanich, C.A. Umbricht, en N.P. van der Meulen, *Scandium and terbium radionuclides for radiotheranostics: current state of development towards clinical application*. Br J Radiol, 2018. **91**(1091): p. 20180074.
76. M. van der Linden en D. Siegersma, *Criteria voor lozingen van natuurlijke radioactiviteit in water en lucht*. RIVM rapport 2023-0361. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM), 2023. <http://hdl.handle.net/10029/626917>.

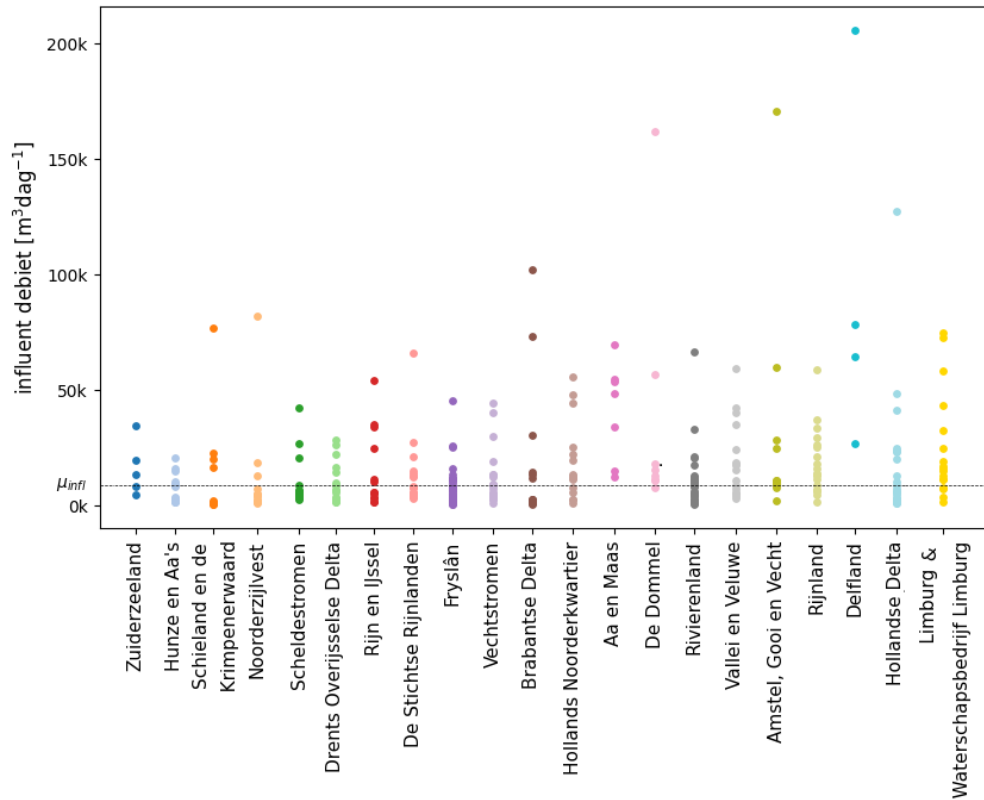
77. G. van Gessel-Dabekaussen, *Het industriële landschap van Nederland*. Centraal Bureau van de Statistiek, 2018.
78. Centraal Bureau voor de Statistiek. *Inwonertal per provincie, 1 september 2022*. Beschikbaar via <https://www.cbs.nl/nl-nl/maatwerk/2023/07/inwonertal-per-provincie-1-september-2022>. (Geraadpleegd 21 november 2023).
79. IAEA, *Derivation of Activity Concentration Values for Exclusion, Exemption and Clearance*, 2005.
80. S. Thierfeldt, R. Barthel, en S. Wörlen, *Comparative Study of EC and IAEA Guidance on Exemption and Clearance Levels*, Radiation Protection 157, 2010.
81. European Commission, *Practical Use of the Concepts of Clearance and Exemption – Part II: Application of the concepts of exemption and clearance to natural radiation sources*, Radiation protection 122, 2001.
82. M. Shastry, et al., *Distribution pattern of 68Ga-DOTATATE in disease-free patients*. Nucl Med Commun, 2010. **31**(12): p. 1025-32.

## Bijlage A Beschrijving van de waterschaps-RWZI's

In totaal zuiveren de 313 waterschaps-RWZI's zo'n  $1,9 \cdot 10^9$  m<sup>3</sup> rioolwater, influent genoemd, per jaar [2] [6]. De capaciteit om het aangevoerde rioolwater te zuiveren, verschilt per RWZI. Daarnaast fluctueert ook het volume van het influent dagelijks door variërende hoeveelheden geproduceerd afvalwater en gevallen neerslag. In Figuur A-1 zijn de 21 waterschappen weergegeven met het aantal RWZI's onder hun beheer en het volume-influent dat elk waterschap per jaar zuivert. Industrie zit merendeels in Noord-Brabant, Groot-Rijnmond en Limburg [77]. Dit verklaart mogelijk de relatief grote hoeveelheid afvalwater die Limburg verwerkt, ondanks het relatief lage inwonersaantal in deze provincie [78]. De gemiddelde hoeveelheid influent die een RWZI per dag aangevoerd krijgt, het volumedebiet  $Q_{\text{influent}}$ , staat in Figuur A-2. De mediaan  $\mu_{\text{infl}}$  van het volumedebiet over alle RWZI's is  $9,0 \cdot 10^3$  m<sup>3</sup>·dag<sup>-1</sup>[6].



Figuur A-1 De 21 waterschappen met het aantal rioolwaterzuiveringsinstallaties (RWZI's) in hun beheer en de hoeveelheid influent die ze jaarlijks zuiveren [6]. De kleur van de cirkel komt overeen met de kleur van de data punten in Figuur A-2, behorend bij het waterschap.



Figuur A-2 Gemiddelde hoeveelheid afvalwater (influent) die per dag naar een rioolwaterzuiveringsinstallatie (RWZI) is aangevoerd. Elk punt is een RWZI die hoort bij het beschreven waterschap op de horizontale as. De horizontale stippellijn geeft de mediaan  $\mu_{infl}$  van dit dagelijkse influent over alle RWZI's weer. Deze meest recent beschikbare data komen uit 2021, waar destijds 314 RWZI's onder het beheer van de 21 waterschappen vielen [6]. Op basis van de kleur van de datapunten is het mogelijk om de bijbehorende regio van de waterschap in Figuur A-1 te vinden.

## Bijlage B Radionucliden in metingen van Rijkswaterstaat

Tabel B-1 en Tabel B-2 geven een overzicht van de radionucliden die in respectievelijk het water en zwevende stof van het oppervlaktewater zijn gedetecteerd op een of meerdere meetlocaties van Rijkswaterstaat [37]. De lichtblauw gekleurden in deze twee tabellen zijn de radionucliden die in detecteerbare hoeveelheden zijn aangetroffen in de monsters in het jaar 2021. De minimale detecteerbare activiteit (MDA) varieert per nuclide voor het water (0,1 - 2000 mBq·l<sup>-1</sup>). De MDA voor de nucliden in het zwevende stof is 1,0 Bq·kg<sup>-1</sup>.

*Tabel B-1 De standaard radionucliden waarop water van het oppervlaktewater periodiek wordt gemeten als onderdeel van het programma Monitoring Waterstaatkundige Toestand des Lands (MWTL) [37]. De blauwe gekleurden zijn de radionucliden die in één of meerdere monsters zijn gedetecteerd in 2021.*

H-3	Co-58	Tc-99	In-111	Cs-137	Po-210
Be-7	Co-60	Tc-99m	Sb-122	Ce-144	Ra-226
Na-22	Zn-65	Ru-103	Sb-125	Lu-177	Ra-228
K-40	Sr-90	Ru-106	I-131	Tl-201	Am-241
Mn-54	Mo-99	Ag-110m	Cs-134	Hg-203	

*Tabel B-2 De standaard radionucliden waarop het zwevende stof van het oppervlaktewater periodiek worden gemeten als onderdeel van het programma Monitoring Waterstaatkundige Toestand des Lands (MWTL) [37]. De blauwe gekleurden zijn de radionucliden die in één of meerdere monsters zijn gedetecteerd in 2021.*

Be-7	Co-60	Ag-110m	Cs-137	Pb-210
K-40	Zn-65	In-111	Lu-177	Bi-214
Mn-54	Ru-103	I-131	Tl-201	Am-241
Co-58	Ru-106	Cs-134	Tl-208	

## Bijlage C Modelling activiteitsconcentratie

Om meer inzicht te krijgen in activiteitsconcentraties van radionucliden in influent bij een RWZI zijn modelmatige berekeningen gedaan. Het berekende resultaat geeft een orde-grootte schatting van de verwachte activiteitsconcentratie in het influent bij een bepaalde lozingshoeveelheid.

Op basis van onder andere de gebruikte activiteit van een specifiek radionuclide voor een toediening of handeling, is het mogelijk om een orde-grootte schatting te maken van de activiteitsconcentratie van dit radionuclide in een influentmonster. Of dit te detecteren is met een bepaalde meetmethode hangt af van de minimaal detecteerbare activiteit (MDA) van de methode en het aantal toedieningen per dag bij een instelling.

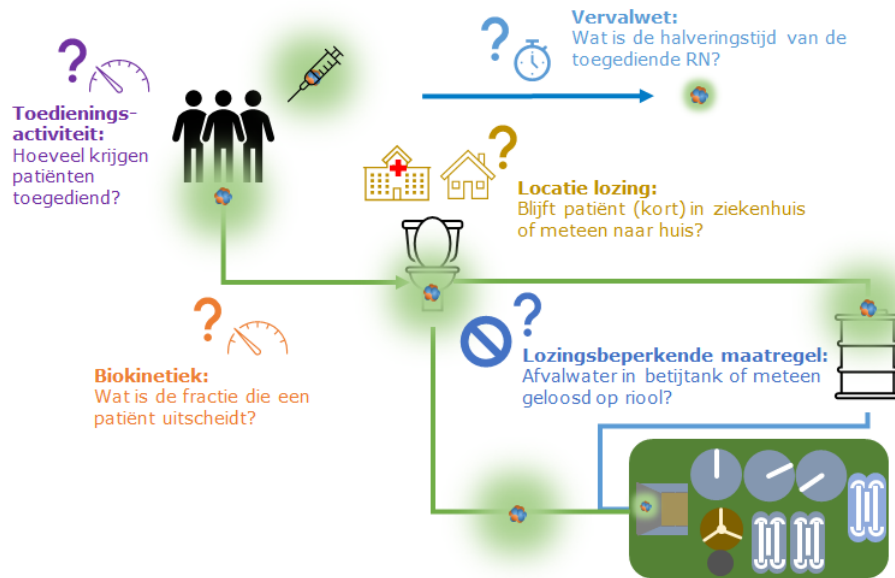
De hier beschreven berekeningen betreffen medische radionucliden (paragraaf 3.3), aangezien de grootste groep vergunninghouders medische instellingen zijn (paragraaf 3.1.1). Daarnaast is veel informatie over declareerbare behandelingen openbaar. Met enkele aanpassingen is het model ook te gebruiken voor lozingen uit bijvoorbeeld de industrie.

Paragraaf C.1 beschrijft het traject dat een radionuclide doorloopt vanaf toediening aan een patiënt tot de meting in het influent bij het radionuclidenlaboratorium. Op basis van dit traject is het model voor het berekenen van de activiteitsconcentratie ontwikkeld (paragraaf C.2). In paragraaf C.3 worden de invoerparameters voor het model gegeven, die in dit onderzoek zijn gebruikt.

### **C.1 Traject nucleaire-geneeskundige radionucliden**

Paragraaf 3.2 beschrijft de route die medische isotopen doorlopen na toediening aan een patiënt tot lozingspunt. Figuur C-1 vervolgt het traject van het radionuclide vanaf de bemonstering tot en met de analyse. In de figuur is aangegeven waarmee rekening gehouden moet worden bij het maken van een schatting van de activiteitsconcentratie in het influent bij een RWZI. Deze punten kunnen worden onderverdeeld in de eigenschappen van het toegediende radionuclide (halveringstijd en biokinetiek) en de protocollen van het ziekenhuis waar de toediening plaatsvindt (toedieningsactiviteit, locatie lozing en lozingsbeperkende maatregel).

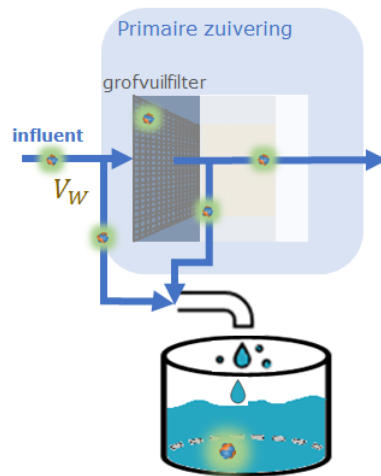




*Figuur C-1 De route die het radionuclide doorloopt vanaf het moment dat een patiënt deze krijgt toegediend tot aan de rioolwaterzuiveringsinstallatie, met de belangrijkste punten waarmee rekening gehouden moet worden bij de ontwikkeling van het model om activiteitsconcentratie te berekenen.*

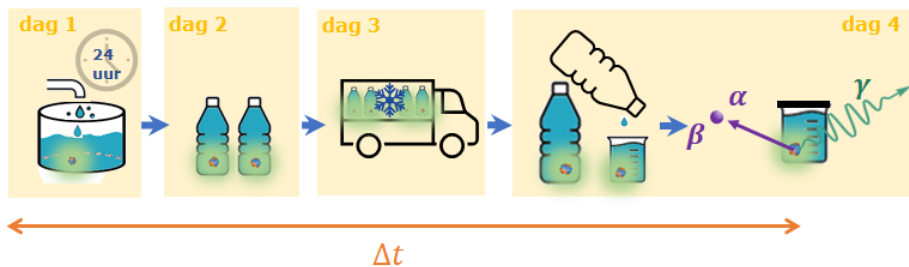
Aanvullend op de verschillende factoren die in Figuur C-1 worden genoemd, is het soort (vrijverval)rioleringsysteem waarop het ziekenhuis is aangesloten belangrijk voor de berekening van de activiteitsconcentratie. Bij een gemengd rioleringsysteem kan bij overbelasting door hevige regenval overstort plaatsvinden, waarbij een gedeelte van het ongezuiverde water direct op het oppervlaktewater wordt geloosd. Bij een gescheiden rioleringsysteem kan dit niet plaatsvinden. Daarnaast kunnen radionucliden aan de binnenkant van rioleringspijpen hechten, waardoor niet alle geloosde radionucliden de RWZI bereiken.

Bij aankomst bij de RWZI wordt een deel van de radionucliden samen met het influent bemonsterd, zie Figuur C-2. Hierbij is verondersteld dat de radionucliden homogeen verdeeld zijn in het influent. De mate waarin de radionucliden zijn verdund, is gerelateerd aan de hoeveelheid influent ( $V_w$ ) die binnenkomt. Daarnaast is de locatie van de bemonsteringskast bij de RWZI ook relevant. Wanneer deze na het grofvuilfilter is geplaatst, kunnen de radionucliden, naast dat ze aan het vuil vast kunnen kleven, ook deels in het filter achterblijven.



Figuur C-2 Bemonstering van influent met radionucliden. De radionucliden zijn verdund in het influent (volume  $V_W$ ) dat de RWZI per dag binnenstroomt.

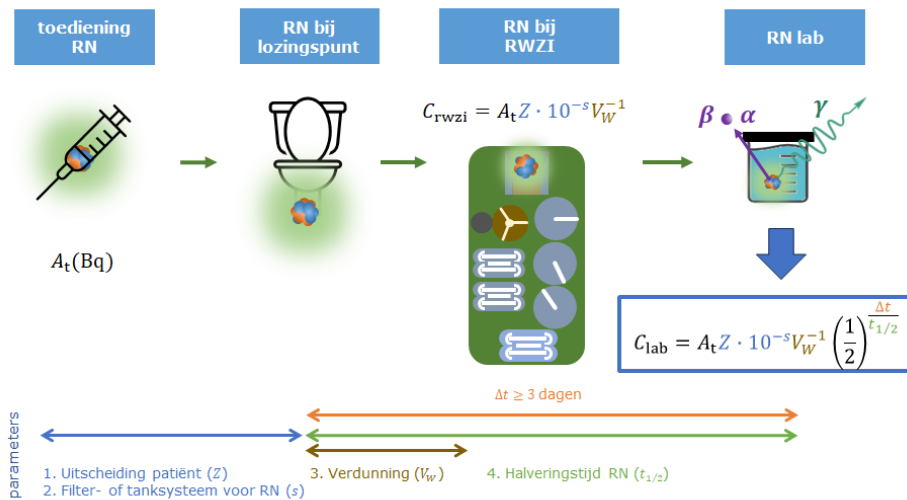
Tussen de bemonstering van het influent en de analyse in het RN-laboratorium zit een tijdsperiode  $\Delta t$ , zie Figuur C-3. De activiteitsconcentratie in het influent neemt af door radioactief verval. Het is daarom van belang dat de tijdsperiode  $\Delta t$  zo kort mogelijk is. Verval vindt ook plaats in de tijdsperiode tussen het moment van lozing en bemonstering. Deze tijdsperiode is in de orde van uren.



Figuur C-3 De route van bemonstering van het influent tot de meting van radioactiviteit met de tijdlijn.  $\Delta t$  is de tijdsperiode tussen het begin van bemonstering en het moment van de meting op radioactiviteit.

## C.2 Het model

Op basis van de route beschreven in de vorige paragraaf is een model ontwikkeld om de activiteitsconcentratie in een RWZI-influentmonster te kunnen schatten. De activiteitsconcentratie in het influent is voor verschillende tijdstippen berekend, namelijk bij aankomst bij de RWZI,  $C_{RWZI,t}$  en op het moment van de radioactiviteitsmetingen bij het radionuclidenlaboratorium,  $C_{lab}$ . Figuur C-4 geeft dit schematisch weer.



Figuur C-4 Schematische weergave van het lozingstraject van een radionuclide (RN) vanaf de toediening tot aan analyse van de monsters bij het radionuclidenlaboratorium. De verschillende correctiefactoren en parameters zijn gebruikt om de activiteitsconcentraties van het influent te schatten bij aankomst bij de rioolwaterzuiveringsinstallatie  $C_{rwzi}$  en tijdens de analyse bij het radionuclidenlaboratorium  $C_{lab}$  bij een toegediende activiteit  $A_t$ .

De toegediende activiteit  $A_t$  wordt deels uitgescheiden door de patiënt (uitscheidingsfractie  $Z$ ) en direct of via een betijktank geloosd op het openbaar riool. Een betijktank wordt beschreven met een effectiviteitsparameter  $s$ , die een waarde heeft tussen 0 (geen betijktank) of 4 (hoge effectiviteit) [14]. Voor de eenvoud is er in de modelberekening aangenomen dat de locatie waar de patiënt buiten het ziekenhuis naar het toilet gaat op dezelfde RWZI is aangesloten als die van het ziekenhuis. De geloosde activiteit  $A_l$  is gelijk aan:

$$A_l = A_t Z \cdot 10^{-s}.$$

Bij aankomst bij de RWZI zou een deel van de geloosde radionucliden niet meer in het rioolwater aanwezig kunnen zijn door hechting aan de rioleringspijpen tijdens het transport en voor gemengde rioolwatersystemen ook sporadisch door overstort bij veel regenval. Voor deze pilotstudie hebben we deze twee mogelijke factoren buiten beschouwing gelaten. De geloosde activiteit komt een RWZI binnen in een bepaalde hoeveelheid rioolwater. Het dagelijkse volumedebiet  $Q_{inluent}$  [ $m^3 \text{ dag}^{-1}$ ] van een RWZI verschilt per dag en per RWZI. In de modelberekening wordt ervan uitgegaan dat de geloosde activiteit is verdund met een bepaalde hoeveelheid rioolwater en dit influentvolume  $V_w$  [ $m^3$ ] is gerelateerd aan  $Q_{inluent}$  volgens:

$$V_w = Q_{inluent} t,$$

met  $t$  de bemonsteringstijd. Tussen de lozing en de bemonstering neemt de activiteit van een radionuclide af door radioactief verval. De activiteitsconcentratie van een radionuclide in influent op het moment van bemonstering,  $C_{rwzi}$ , is dan:

$$C_{\text{rwzi}} = A_l V_W^{-1} \cdot \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{\Delta t_1}{t_{1/2}}} = A_t Z \cdot 10^{-s} (Q_{\text{influent}} t)^{-1} \cdot \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{\Delta t_1}{t_{1/2}}}.$$

met  $\Delta t_1$  de tijdperiode tussen lozing en bemonstering bij de RWZI, en  $t_{1/2}$  de halveringstijd van het radionuclide.

De activiteitsconcentratie bij de analyse op het RN-laboratorium,  $C_{\text{lab}}$ , is:

$$C_{\text{lab}} = C_{\text{rwzi}} \cdot \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{\Delta t}{t_{1/2}}},$$

met  $\Delta t$  de tijd tussen bemonstering en analyse op het RN-laboratorium.

De waarden van een aantal van de parameters in het model zijn onbekend en daarom geschat. Daarnaast is een aantal factoren niet in het model meegenomen. Gezien deze onzekerheden zijn de activiteitsconcentraties op orde-grootte afgerond, middels:

$$C' = 10^{\text{ROUND}(\log_{10}(C))}.$$

Op die manier wordt de waarde van de activiteitconcentratie bijvoorbeeld gelijk aan 1 gesteld wanneer de berekende waarde tussen de 0,316 en 3,162 ligt. Onze methode voor orde-grootte afronding komt ongeveer overeen met de logaritmische afronding, zoals beschreven in *International Atomic Energy Agency (IAEA) en Radiation Protection* rapporten [79] [80] [81]. Bij deze logaritmische afronding wordt de berekende activiteitconcentratiewaarde ingesteld op  $10^{x+1}$  wanneer de berekende waarde tussen  $3 \cdot 10^x$  en  $3 \cdot 10^{x+1}$  ligt.

### C.3 Invoerwaarden van parameters

In de modelberekening is aangenomen dat er geen betijktank aanwezig is op de locatie waar medische isotopen naar het riool worden geloosd. Parameter  $s$  is daarmee gelijk aan 0. Drie parameters uit de gebruikte formules zijn gerelateerd aan de toegepaste radionucliden ( $A_t$ ,  $Z$  en  $t_{1/2}$ ). De andere twee zijn het influentvolume ( $V_W$ ) en de tijdsperioden tussen respectievelijk lozing en bemonstering en bemonstering en analyse op het RN-laboratorium ( $\Delta t_1$  en  $\Delta t$ ).

#### C.3.1 Parameters radionucliden

De toedieningsactiviteit(en)  $A_t$  van medische isotopen en hun halveringstijd  $t_{1/2}$  staan in Tabel C-1 en Tabel C-2. De uitscheidingsfractie  $Z$  is gerelateerd aan de biokinetische model van het aan de patiënt toegediende radiofarmacon. Wanneer en hoeveel (in percentage) de patiënt na toediening uitscheidt, wordt beschreven via dat model. De biokinetiek van de verschillende radiofarmaca is te vinden in de Richtlijnen-database van de Federatie Medische Specialisten [22]<sup>19</sup>. Voor de uitscheidingsfractie van een radionuclide is gekeken naar het percentage dat de patiënt in 24 uur uitscheidt. De 24-uurs-bemonstering begint om middernacht en de patiënt wordt meestal tussen acht uur in de ochtend en vijf uur in de middag behandeld. Met het oog op eenvoud gaan we ervan uit dat de patiënt de helft van de 24

<sup>19</sup> Voor Ga-68 is de biokinetische model beschreven onder andere door Shastry *et al.* [82].

uur uitgescheiden activiteit op de dag van behandeling uitscheidt en de andere helft de volgende dag, ongeacht het radionuclide. De uitscheidingsfractie  $Z$  is dan het gevonden percentage in de richtlijndatabase gedeeld door twee. Deze afscheidingsfractie is geschat met grote onzekerheid. Verschillende radionucliden worden voor verschillende toepassingen gebruikt, waarbij het kinetische model van elkaar kan afwijken. In Tabel C-1 zijn de waarden van deze drie parameters voor de medische isotopen te vinden.

*Tabel C-1 Overzicht van de radionucliden (RN) dat gebruikt is in de declareerbare zorg bij de afdeling nucleaire geneeskunde voor diagnostiek ( $RN^{diag}$ ) en therapie ( $RN^{therapie}$ ) met de halveringstijd  $t_{1/2}$  [28] de hoeveelheid activiteit die is gebruikt voor de toediening  $A_t$  [26][ 27], en de uitscheidingsfractie  $Z$  [22].*

<b>RN<sup>diag</sup></b>	<b><math>t_{1/2}</math> [d]</b>	<b><math>A_t</math> [Bq]</b>	<b><math>Z</math> [-]</b>
C-14	$2,1 \cdot 10^6$	$2,0 \cdot 10^5$	0,365
F-18	$7,6 \cdot 10^{-2}$	$3,3 \cdot 10^8$	0,1
Ga-68	$4,7 \cdot 10^{-2}$	$1,5 \cdot 10^8$	0,06
Se-75	$1,2 \cdot 10^2$	$3,7 \cdot 10^5$	0,05
Kr-81m	$1,5 \cdot 10^{-4}$	$2,2 \cdot 10^8$	0
Tc-99m	$2,5 \cdot 10^{-1}$	$3,8 \cdot 10^8$	0,5
In-111	$2,8 \cdot 10^0$	$1,1 \cdot 10^8$	0,325
I-123	$5,5 \cdot 10^{-1}$	$1,9 \cdot 10^8$	0,2
I-125	$6,0 \cdot 10^1$	$3,5 \cdot 10^6$	0,32
I-131	$8,0 \cdot 10^0$	$1,0 \cdot 10^7$	0,5
Tl-201	$3,0 \cdot 10^0$	$7,4 \cdot 10^7$	0,01

<b>RN<sup>therapie</sup></b>	<b><math>t_{1/2}</math> [d]</b>	<b><math>A_t</math> [Bq]</b>	<b><math>Z</math> [-]</b>
Sr-89	$5,1 \cdot 10^1$	$1,5 \cdot 10^8$	0,05
Zr-89	$3,3 \cdot 10^0$	$3,7 \cdot 10^7$	0,05
Y-90	$2,7 \cdot 10^0$	$2,1 \cdot 10^9$	0,002
I-131	$8,0 \cdot 10^0$	$5,7 \cdot 10^9$	0,25
Sm-153	$1,9 \cdot 10^0$	$4,0 \cdot 10^9$	0,175
Ho-166	$1,1 \cdot 10^0$	$1,2 \cdot 10^{10}$	0,0005
Er-169	$9,3 \cdot 10^0$	$1,9 \cdot 10^8$	0,1
Lu-177	$6,7 \cdot 10^0$	$6,7 \cdot 10^9$	0,25
Re-186	$3,8 \cdot 10^0$	$7,5 \cdot 10^8$	0,25
Re-188	$7,1 \cdot 10^{-1}$	$7,5 \cdot 10^8$	0,15
Ra-223	$1,1 \cdot 10^1$	$5,0 \cdot 10^6$	0,025
Th-227	$1,9 \cdot 10^1$	$7,0 \cdot 10^6$	0,018

Naast de in Tabel C-1 genoemde radionucliden is ook een schatting van de activiteitsconcentratie gemaakt van het metastabiele radionuclide Lu-177m. Deze heeft een halveringstijd van 160 dagen. Voor deze schatting is aangenomen dat de toegediende activiteit Lu-177m 0,05% is van de toegediende activiteit Lu-177.

### C.3.2 Influentvolume ( $V_w$ )

In Figuur A-2 is het gemiddelde dagelijkse volumedebiet  $Q_{inflow}$  van elke RWZI geplot. Het gemiddelde debiet varieert sterk van RWZI tot RWZI. De orde-grootte schatting berust op de mediale waarde van het

volumedebiet  $\mu_{infl}$ , berekend over alle RWZI's. Deze heeft een waarde van  $9,0 \cdot 10^3 \text{ m}^3 \cdot \text{dag}^{-1}$  en is equivalent aan  $9,0 \cdot 10^6 \text{ l} \cdot \text{dag}^{-1}$ , dat wil zeggen  $V_W = \mu_{infl} t = 9,0 \cdot 10^3 \text{ m}^3$  bij  $t = 1 \text{ dag}$ .

### C.3.3 Tijdsperioden $\Delta t_1$ en $\Delta t$

De tijd tussen lozing en bemonstering is niet exact bekend, maar wel korter (enkele uren) dan de tijd tussen bemonstering en meting (enkele dagen). Voor de tijd tussen lozing en bemonstering is uitgegaan van  $\Delta t_1 = 6 \text{ uur}$ . Verder wordt aangenomen dat de totale tijd tussen lozing en meting op het RN-lab ongeveer 3 dagen is, dus  $\Delta t_1 + \Delta t = 3 \text{ dagen}$ . Dit betekent dat de tijd tussen bemonstering en meting gelijk is aan  $\Delta t = 2,75 \text{ dagen}$ .

## C.4 Schatting activiteitsconcentratie in influent

In Tabel C-2 zijn de geschatte activiteitsconcentratie in het influent, bij één toediening, samengevat voor de medische isotopen bij zowel een mediaan RWZI, als bij het RN-laboratorium.

Om een radionuclide te kunnen detecteren, moet de activiteitsconcentratie  $C_{lab}$ -meting boven de minimale detecteerbare activiteit (MDA) liggen. Het RN-laboratorium heeft niet voor alle radionucliden de MDA vastgelegd in de nuclide-bibliotheek die zij bij de analyse gebruiken. Van de bekende radionucliden valt de MDA vooral tussen de  $0,4 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$  en  $2 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$  en zou bij orde-grootte-afroning komen op  $1 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ . De orde-grootte MDA van Tc-99m is  $1 \cdot 10^2 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ , van In-111 is  $1 \cdot 10^{-1} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$  en van Lu-177 is  $1 \cdot 10^1 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$  (zie paragraaf 6.2). Voor de orde-grootte-schattingen is gebruikgemaakt van een MDA van  $1 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ , behalve voor Se-75 (MDA  $< 1 \cdot 10^{-1} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ ), Tc-99m, I-111 en Lu-177.

In Tabel C-2 zijn de groen gekleurde vakjes de verwachte nog te detecteren radionucliden in het influent (bij  $\Delta t = 2,75 \text{ dag}$ ). Slechts acht radionucliden (Sr-89, In-111, I-131, Sm-153, Er-169, Lu-177, Re-186 en Re-188) zouden volgens deze schattingen detecteerbaar zijn in onze proefmetingen. Wanneer het influent direct bij binnenkomst van de RWZI ( $\Delta t \rightarrow 0$ ) gemeten zou worden, dan zouden ook F-18, I-123, Y-90 en Ho-166 te meten zijn.

Tabel C-2 Overzicht van de orde-grootte-schattingen van de activiteitsconcentraties van het influent bij aankomst bij een rioolwaterzuiveringsinstallatie (RWZI)  $C_{RWZI}$  en bij de analyse in het radionuclidenlaboratorium  $C_{lab}$  voor radionucliden die gebruikt zijn bij diagnostische ( $RN^{diag}$ ) en therapeutische ( $RN^{therapie}$ ) behandelingen, op basis van een toediening. De groen gekleurde zouden detecteerbaar zijn in het influent bij een minimale detecteerbare activiteit (MDA) van  $1 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ .

$RN^{diag}$	$C_{RWZI}$ [ $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ ]	$C_{lab}$ [ $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ ]
C-14	$1,0\cdot 10^{-2}$	$1,0\cdot 10^{-2}$
F-18	$1,0\cdot 10^0$	$1,0\cdot 10^{-11}$
Ga-67	$1,0\cdot 10^{-2}$	$1,0\cdot 10^{-19}$
Se-75	$1,0\cdot 10^{-3}$	$1,0\cdot 10^{-3}$
Kr-81m	$0,0\cdot 10^0$	$0,0\cdot 10^0$
Tc-99m	$1,0\cdot 10^1$	$1,0\cdot 10^{-2}$
In-111	$1,0\cdot 10^1$	$1,0\cdot 10^0$
I-123	$1,0\cdot 10^0$	$1,0\cdot 10^{-1}$
I-125	$1,0\cdot 10^{-1}$	$1,0\cdot 10^{-1}$
I-131	$1,0\cdot 10^0$	$1,0\cdot 10^0$
Tl-201	$1,0\cdot 10^{-1}$	$1,0\cdot 10^{-1}$

$RN^{therapie}$	$C_{RWZI}$ [ $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ ]	$C_{lab}$ [ $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ ]
Sr-89	$1,0\cdot 10^0$	$1,0\cdot 10^0$
Zr-89	$1,0\cdot 10^{-1}$	$1,0\cdot 10^{-1}$
Y-90	$1,0\cdot 10^0$	$1,0\cdot 10^{-1}$
I-131	$1,0\cdot 10^2$	$1,0\cdot 10^2$
Sm-153	$1,0\cdot 10^2$	$1,0\cdot 10^1$
Ho-166	$1,0\cdot 10^0$	$1,0\cdot 10^{-1}$
Er-169	$1,0\cdot 10^0$	$1,0\cdot 10^0$
Lu-177	$1,0\cdot 10^2$	$1,0\cdot 10^2$
Lu-177m	$1,0\cdot 10^{-1}$	$1,0\cdot 10^{-1}$
Re-186	$1,0\cdot 10^1$	$1,0\cdot 10^1$
Re-188	$1,0\cdot 10^1$	$1,0\cdot 10^0$
Ra-223	$1,0\cdot 10^{-2}$	$1,0\cdot 10^{-2}$
Th-227	$1,0\cdot 10^{-2}$	$1,0\cdot 10^{-2}$

De meeste radionucliden worden niet veelvoudig per dag toegediend in een ziekenhuis. Tc-99m wordt in Nederland het vaakst toegediend. Bij 5-10 toedieningen van Tc-99m per dag bij een ziekenhuis, zou de activiteitsconcentratie bij de RWZI ( $C_{RWZI}$ ) boven de MDA uitkomen. Om Tc-99m te kunnen detecteren bij het radionuclidenlaboratorium zouden er enkele duizenden toedieningen per dag nodig zijn. Dit komt door de korte halveringstijd van Tc-99m in combinatie met het relatief lange tijdsinterval tussen bemonstering en analyse, en de relatief hoge MDA.

Y. Szeto | C. Rosenbaum

Dit is een uitgave van:

**Rijksinstituut voor Volksgezondheid  
en Milieu**

Postbus 1 | 3720 BA Bilthoven

Nederland

[www.rivm.nl](http://www.rivm.nl)

maart 2024

De zorg voor morgen  
begint vandaag