

PRILOG ISTRAŽIVANJU RADIOKTIVNOSTI U
BIOTOPU TERMALNIH VODA HRVATSKOG
ZAGORJA

I. MATONIČKIN, Z. PAVLETIĆ i V. POPOVIĆ

(Iz Instituta za biologiju Sveučilišta, Instituta za botaniku Sveučilišta i
Instituta za medicinska istraživanja i medicinu rada JAZU).

Uvod

U današnjem vijeku atomskih istraživanja nisu mimoiđene ni površinske vode. U posljednje vrijeme sve se više posvećuje pažnja radioaktivnosti u vodama koje su od presudnog značenja za život na zemlji. Tako se najprije istražuje radioaktivnost voda u vezi s umjetnim zagađivanjem kao posljedicom nuklearnih pokusa ili raznim radioaktivnim otpacima iz nuklearnih postrojenja i laboratorija koji upotrebljavaju radioaktivne tvari. Ta kontrola radioaktivnosti voda provedena je u svim naprednim zemljama pa i kod nas. Rezultate tih mjerenja upravo je objavila Uprava za civilnu zaštitu uz sudjelovanje Instituta za medicinu rada SR Srbije, Instituta za medicinska istraživanja i medicinu rada u Zagrebu, Instituta za higijenu i socijalnu medicinu Medicinskog fakulteta u Sarajevu i Zavoda za zdravstvenu i tehničku zaštitu u Ljubljani (1963).

Isto tako, danas se posebna pažnja obraća i radioaktivnosti u vodenim organizmima, pa se i u tom pogledu vrše vrlo opsežna istraživanja u raznim zemljama. Međutim, u tom pogledu u našoj zemlji gotovo i nije bilo nikakvih istraživanja, iako su vođeni organizmi najviše ovisni o radioaktivnosti okolne vode.

Ta činjenica nas je ponukala da pridemo istraživanjima vodenih biotopa i s tog stanovišta. Za početak smo izabrali biotop termalnih voda Hrvatskog zagorja iz više razloga. Osim gore spomenute činjenice, smatrali smo da biotop termalnih voda predstavlja općenito područje koje je bogato prirodnom radioaktivnošću o čemu ima i podataka u literaturi (Miholić 1952). Nadalje se radioaktivnost termalnih voda često povezuje s njihovom ljekovitošću.

Da bi mogli pristupiti tom zadatku, neki od autora boravili su određeno vrijeme u jednom od najvećih centara za ispitivanje radioaktivnosti

vode i vodenih organizama u Evropi, u Bayerische biologische Versuchsanstalt u Münchenu. Tu su svladali svu potrebnu metodologiju i dobili uvid nad današnjim stanjem istraživanja u tom području hidrobiologije. U tome radu stupili su u suradnju i s Institutom za medicinska istraživanja i medicinu rada u Zagrebu, koji ima na raspolaganju svu potrebnu aparaturu za mjerenje radioaktivnosti.

Ovdje iznosimo rezultate koje smo dobili na osnovu naših dvogodišnjih istraživanja u termalnim vodama Hrvatskog zagorja. Namjera nam je, da ova istraživanja i dalje razradimo na osnovi dobivenih rezultata, te da ih kasnije proširimo i na ostale površinske vode, a prvenstveno na naše vode u kršu na kojima su dugi niz godina proučavane biocenoze i ekološki faktori koji ih uvjetuju.

Radioaktivnost u površinskim vodama i njen značaj za organizme

Radioaktivnost u površinskim vodama može biti različita porijekla. S jedne strane postoji tzv. prirodna radioaktivnost, što znači da su vode same po sebi radioaktivne, tj. bez utjecaja čovjeka. Prirodna radioaktivnost u površinskim vodama nastaje od tvari koje se nalaze u vodi. Takvu radioaktivnost gotovo nikada ne izazivlje molekula vode, nego samo otopljene, neotopljene i koloidne tvari u vodi. To su u prvom redu razne soli, prije svega kalija, a zatim urana, torija i aktinija, kao i elementa koji nastaju njihovim raspadanjem. Najčešći su ^{39}K i ^{40}K , koji se ne daju tako lako izdvojiti, pa kalijeve soli otopljene u vodi u jednakoj mjeri sadrže i jedan i drugi kalijev radioizotop. U nekim se vodama kao radionuklidi mogu javiti i drugi radioaktivni izotopi. Njihova koncentracija nije u svim vodama jednaka, nego zavisi najviše od podloge preko koje voda teče, kao i o podzemnim slojevima kroz koje prolazi do površine, bilo kao vadozna ili juvenilna.

S druge strane, radioaktivnost voda može potjecati od radioaktivnih tvari koje zalaze u vodu kao produkti raspadanja radioaktivnih izotopa u atomskim reaktorima i drugim atomskim postrojenjima, laboratorijima, nuklearnim eksplozijama i sl. Takav tip radioaktivnosti voda označujemo kao umjetnu radioaktivnost. Umjetnu radioaktivnost u vodama stvara najviše ^{226}Ra , ali i čitav niz drugih radioaktivnih izotopa (oko 300).

Prirodna radioaktivnost u vodama nije ni u kojem slučaju štetna za organizme, pa ni za čovjeka. Ona iznosi u prosjeku svega nekoliko pC na litru vode ($1 \text{ pC} = 10^{-2} \text{ C}$, dok je $1 \text{ C} = 3,7 \times 10^{10}$ raspadnih jedinica na sekundu). To je znatno niže nego što je npr. propisana tolerancija za radioaktivne pitke vode. Prema propisima međunarodne organizacije (International commission on radiological protection-ICRP), koja je odredila maksimalno dozvoljene koncentracije radioaktivnosti u vodama koje su za upotrebu čovjeka, za sveukupnu aktivnost maksimum iznosi 10 pC/l . Iz ovoga se vidi da je prirodni aktivitet znatno ispod dozvoljene tolerancije. Kao što ćemo međutim vidjeti, u istraživanim termalnim vodama vrijednosti se kreću nešto iznad dozvoljenog maksimuma.

Mnogo veću opasnost predstavlja umjetna radioaktivnost, za koju je u otpadnim vodama što sadrže radioaktivne supstance određena od strane ICRP tolerancija od 100 pC. Međutim, pri određivanju maksimuma radioaktivnosti vode treba uzeti u obzir ne samo ukupnu aktivnost nego i aktivnost pojedinih radioizotopa. Naime, nekada cjelokupna aktivnost može imati znatno veću vrijednost od dozvoljene a da to ne mora biti razlogom za uznemirenje, jer se ta aktivnost može odnositi na pojedini radioaktivni element, koji ima znatno veću dozvoljenu toleranciju radioaktivnosti.

Same vrijednosti radioaktivnosti vode nisu dovoljne da bi se ukazalo na stupanj radioaktivnosti u vodama. Naime, pri tome treba imati na umu vrlo važnu činjenicu koja se obično zanemaruje, a može imati vrlo opasnih posljedica. Radi se o sposobnosti biljnih i životinjskih organizama da odlažu radioaktivne tvari u pojedinim svojim organima. To se naročito događa u onim organizmima koji su najviše u kontaktu s vodom i u njoj otopljenim tvarima. To su prvenstveno sitni planktonski organizmi iz kojih radioaktivne tvari preko hranidbenog lanca dospiju i u druge vodene organizme.

Danas se sigurno zna da radioaktivne tvari iz vode ulaze u razne organizme i da se skupljaju u određenim organima. Za ova otkrića su najviše zaslužni američki istraživači Forster i Dawis (1956, 1959.) sa svojim suradnicima, koji su istraživali utjecaj radioaktivnosti u rijeci Columbia (USA) oko mjesta gdje je smješten reaktor u Hardwordu. Oni su ustanovili da je u raznim vodenim organizmima radioaktivitet znatno viši nego li je bio u okolnoj vodi. Najveću vrijednost su pokazivale planktonske biljke i životinje. Pri tome se najviše nagomilavao radioaktivni fosfor koji se mogao utvrditi u znatnim količinama u različitim algama koje su pokazivale 100.000—1000 puta veću radioaktivnost nego li je bila u okolnoj vodi. Isto tako ličinke kukaca koje žive u vodi i životinje koje se njima hrane pokazivale su veliko povećanje radioaktivnog fosfora. Od životinja to su bile mlade lastavice, divlje guske, patke i naročito ribe kod kojih koncentracija radioaktivnih tvari nije bila u svim dijelovima tijela jednaka.

Uzevši gornje u obzir, moramo si postaviti pitanje na koji način dolazi do odlaganja radioaktivnih tvari u vodenim organizmima. To možemo najbolje objasniti navodima R u f a (1962) koji smatra da organizmi uzimaju u sebe tvari neselektivno, bez obzira da li u njima ima radioaktivnih ili stabilnih elemenata. Radioaktivne tvari se onda prema tome koncentriraju u organima gdje je dotični element potreban. Prema Rufu, to se vrši adsorpcijom i difuzijom kroz staničnu opnu u različitim jednostaničnim organizmima, a kod drugih procesima tvarne izmjene.

Mora se napomenuti da se radioaktivne tvari ipak ne nalaze stalno nagomilane u organizmima ili njihovim organima, nego se oni procesima tvarne izmjene mogu ponovno izlučivati, kao što je to eksperimentalno pokazao K a u d e w i t z (1958) s radioaktivnim fosforom.

Radioaktivnost u termalnim vodama

Kao i u svim drugim površinskim vodama, radioaktivnost u termama ovisi o tvarima koje su neotopljene, otopljene ili koloidalne u vodi. Ipak, najviše radioaktivnosti daju otopljene soli radioaktivnih izotopa. Te soli zalaze u termalnu vodu najviše iz podloge, pa će prema tome o supstratu podloge ovisiti kvalitet i kvantitet radioaktivnosti. Termalne vode obično su nešto više radioaktivne od običnih površinskih voda, jer ugrijana voda lakše otapa podlogu i obično ima duži put od običnih izvorišnih voda prije nego dođe na površinu. Stoga, pored običnih radionuklida koje susrećemo u prirodnim površinskim vodama, nalazimo u znatnim količinama i nekih drugih radionuklida.

U nekim termama nastaju u znatnim količinama produkti raspadanja urana, a najviše plina radona, koji ima kratko vrijeme trajanja (poluvrijeme raspadanja iznosi 3,825 dana). Zbog toga na radioaktivnost ovih voda u znatnoj mjeri utječe i brzina protočne vode kroz slojeve zemlje, pa je za kišnih godina radioaktivnost vrela nešto veća nego u sušnim godinama. To je također razlog da radioaktivnost pojedinih termalnih voda može oscilirati u dosta širokim granicama. Urana ima u kristaliničnom kamenju. Tako npr. graniti sadrže oko 0,0004% a bazalt oko 0,0001% urana. Sedimentno kamenje je obično siromašno na uranu, iako neki karbonski i kredni bituminozni škriljevci i vapnenci mogu sadržavati i do 0,0036% urana (Miholić i Trauner 1952). Zbog toga vode koje izviru iz granita pokazuju veću radioaktivnost od onih koje izviru iz bazalta, a najveću imaju one koje izviru iz stijena s najvećim sadržajem urana.

Kod nas su radioaktivnost u termalnim vodama istraživali samo kemičari, i to pretežno pok. prof. Miholić koji je u tom pogledu istražio gotovo sve važnije terme u Hrvatskoj. Radioaktivitet je mjerjen kemijskim metodama, a izražen je u tzv. Macheovim jedinicama, koje se mogu preračunati u kirije (C) odnosno u nanokirije ($1 \text{ nC} = 3,7 \cdot 10$ raspadnih jedinica na sekundu). Ove su se metode obično odnosile na određivanje količine radona u vodama. Kako je taj plin dosta lako topiv, njegova koncentracija ovisi o temperaturi vode i atmosferskom tlaku. Stoga je radioaktivitet voda nekog izvorišta obrnuto proporcionalan njenoj temperaturi.

Iz dobivenih podataka prof. Miholića može se vidjeti da u mnogim termalnim vrelima naše republike postoji znatan radioaktivitet. Najveće vrijednosti pokazuju Istarske toplice koje izviru iz bituminoznog vapnenca relativno bogatog na uranu. One pokazuju prema Miho'liću 47,33 Macheovih jedinica ili radioaktivitet od 16,84 nC/l. Isto tako, prema tim podacima jedno vrelo u Stubičkim toplicama koje izvire iz krednih slojeva mjeri 26,26 Macheovih jedinica ili 9,560 nC/l.

Radi preglednosti dajemo sumarno sve podatke za radioaktivnost termalnih voda u Hrvatskoj, kako ih je izmjerio prof. Miholić.

Termalna voda	Radioaktivnost	
	u Macheovim jedinicama	u nC/l
Glavice kod Obrovca	0,248	0,088
Harina Zlaka	11,24	4,09
Istarske toplice	47,33	16,84
Krapinske toplice	0,563	0,205
Mokošica kod Dubrovnika	6,581	2,369
Split	0,719	0,256
Stubičke toplice I.	3,16	1,15
Stubičke toplice II.	26,26	9,560
Sutinske toplice	1,296	0,472
Sveta Helena	1,967	0,716
Šemnica	3,792	1,097
Sveta Jana	3,549	1,292
Tuheljske toplice	1,23	0,448
Velika	0,699	0,254
Zelina	6,79	2,49

Područje istraživanja i metodika rada

Naša istraživanja vršili smo u užem području Hrvatskog zagorja, gdje se na više mjesta javljaju termalna vrela. Ove termalne vode javljaju se uz tektonski rasjed pravca ZSZ-ISI. Tu su Tuheljske, Krapinske, Sutinske toplice i Šemnica. Osim njih posjetili smo i Varaždinske toplice koje se nalaze na jednoj drugoj rasjednoj liniji, koja počinje u Sloveniji (Dobrna) i završava preko sjevernog podnožja Ivančice s ovom termalnom vodom. Nadalje smo posjetili i Stubičke toplice koje također leže na jednoj rasjelinu koja ide u pravcu jugoistočnog podnožja Samoborske gore i nastavlja se na sjeverno podnožje Medvednice. Na toj liniji pored Stubičkih toplica leže još Toplica kod Svete Jane, Bistra, Jezerčica i Šimunovec, koje su manjeg značenja, a osim toga su i izvan

Treba napomenuti da sve ove toplice nisu u jednakom stanju. Većina ih je kaptirano pa se iskorištavaju u ljekovite svrhe i nemaju prvobitan prirodni oblik. U najviše slučajeva voda se izravno dovodi u bazene i spomenutog područja istraživanja, pa ih nismo uzeli u obzir.

kupke, a iskorištena voda odvodi se kao otpadna u prihvatne vode (Vorfluter) koje su obično manji potočići. Takve su npr. Krapinske, Varaždinske i Sutinske toplice. Najprirodnije uvjete imaju Tuheljske toplice i Šemnica. Iako u Tuheljskim toplicama postoji nekoliko bazena pristupačnih publici, ipak je ostao jedan dio koji je poput nekog manjeg rezervata ograđen, pa se na tome mjestu bujno razvila prirodna biocenoza terme. Na tome mjestu naišli smo na najpovoljnije uvjete za naša istraživanja. Donedavno je i Šemnica bila dobrim dijelom u prirodnom stanju, pa smo još prošle godine mogli uzimati probe na djelomično prirodnim staništima. Međutim, već se ove godine vrše opsežni zahvati radi kaptiranja i iskorištavanja termalne vode u ljekovite svrhe, pa više ni tamo ne postoje prirodni uvjeti. Stubičke toplice su također velikim

dijelom iskorištene za bazene i kupališne svrhe, ali se ipak mjestimično može naći pokoje manje vrelo u prirodnom stanju.

Iz svega proizlazi da u najviše slučajeva nismo mogli vršiti istraživanja pod prirodnim uvjetima, što se onda ogleda i u nejednolikoj obradi materijala, jer svuda nismo imali na raspolaganju u znatnim količinama biljaka i životinja iz termalnih voda. Naš je zadatak bio da prije svega izmjerimo radioaktivnost same vode, a nakon toga da utvrdimo radioaktivnost u organizmima koji tamo žive. Prema tome zadatku uskladili smo i metodiku našeg rada.

Za mjerenje radioaktivnosti vode uzimali smo probe u zatvorenim polivinilskim posudama u količini od 1—5 litara. Obično se mjerila ukupna beta-aktivnost zbog pomanjkanja potrebne aparature za mjerenje drugih aktivnosti. Aktivnost se mjerila iz preparata, koji su dobiveni isparavanjem 1 litre vode, pa se poslije toga isparni ostatak stavljao u posebne aluminijske ili limene tanjuriče (planšete). U Institutu za medicinska istraživanja i medicinu rada izračeni su preparati i izvršeno je mjerenje radioaktivnosti. Osim vodenih proba, na svakom staništu su mjereni i najvažniji ekološki faktori kao što su temperatura vode, količina CO₂, količina O₂, alkalinitet i pH.

Za pripremanje preparata organizama za mjerenje radioaktivnosti uzimale su se probe pojedinih skupina organizama nađenih na staništima odakle su uzimane vodene probe. Tako su posebno uzimane cijanoficeje, haraceje, ostale alge, više vodene biljke, a od životinja puževi, kornjaši, ličinke kukaca i dr.

Biljni materijal se u laboratoriju izvagao kao mokra tvar, posebno kao suha tvar i na kraju se u muflonovoj peći žario, pa su se onda pravili preparati od žarenog pepela, suhe i mokre tvari. Najčešće se mogla mjeriti ukupna beta-aktivnost žarenog pepela, i to u pC/g (pikokiri). Isto tako su sve druge aktivnosti preračunate u pC.

Osim toga, uzimani su uzorci mulja koji se sušio i žario, pa su se pravili preparati od žarenog ostatka. Njihova aktivnost se također mjerila u pC.

Radioaktivnost u vodi i organizmima u termalnim vodama Hrvatskog zagorja

Područje termalnih vrela Hrvatskog zagorja posjetili smo u više navrata, a mjerenja su vršena jednom koncem jeseni 1962, a drugi put zimi 1964. Prvi put uzimali smo samo probe vode i svih nađenih organizama. Pri tome se radioaktivnost mjerila samo za vodu i po gramu mokre tvari. Na osnovi tih mjerenja dobili smo podatke koji pokazuju nešto veću aktivnost u organizmima negoli u vode (tabela 1).

Povećanje je jako znatno kod životinjskog materijala, gdje su razlike ponekad vrlo velike, kao npr. u Krapinskim toplicama. S druge strane, biljke su uglavnom pokazivale po gramu mokre tvari približno jednake ili samo malo veće aktivnosti, a na dva mjesta su imale čak i manju

aktivnost nego što je bila ona u okolnoj vodi (Tuheljske i Varaždinske toplice). Međutim, treba napomenuti za Varaždinske toplice da biljni materijal nije bio tako obilat i čist, jer potječe s jednog staništa gdje termalna voda teče iz jedne cijevi a vegetacija algi se razvija na mjestima prskanja vode.

Što se tiče usporedbe s ostalim ekološkim faktorima, na tim staništima se može zapaziti postojanje izvjesnog odnosa između temperature i alkaliniteta s jedne strane i radioaktivnosti vode s druge strane. Najviši aktivitet izmjeren je u vodi Varaždinskih toplica (32,6 pC), koje su ujedno pokazivale i najvišu temperaturu. To je vjerojatno u vezi s jačim otapanjem jako pregrijane vode. Inače ovakav paralelizam nismo mogli utvrditi u drugim toplicama. Isto tako vode najvišeg alkaliniteta (Varaždinske toplice 7,7 i Šemnica 6,3) pokazuju i najveću radioaktivnost (32,6 odnosno 33,25 pC/l). Pri nižem alkalinitetu u drugim termama i radioaktivnost vode je niža. To se također može dovesti u vezu s većom količinom otopljenih soli, naročito bikarbonata, koje su izražene alkalinitetom. Što se tiče količine kisika, ona jako varira, i to mnogo više nego li aktivnost, pa se stoga za vrijeme kad su vršena ova mjerenja ne bi mogle izvesti nikakve analogije i pravilnosti.

Količina CO₂ uvijek je neznatna, pa ona vjerojatno nema nikakva utjecaja na radioaktivnost.

Ako usporedimo dobivene vrijednosti s dozvoljenim tolerancijama za površinske vode koje je odredila ICRP (10 pC/l), vidimo da su ove vode u tom pogledu, za vrijeme ovih mjerenja, bile različita karaktera. Dok neke pokazuju vrijednosti ispod dozvoljene tolerancije (Stubičke i Krapinske toplice), druge imaju nešto malo veću aktivnost (Tuheljske i Sutinske toplice), a treće su one s relativno višim radioaktivitetom (Varaždinske toplice i Šemnica).

Usporedimo li aktivnost izmjerenu u organizmima po gramu mokre tvari, tada jedino Stubičke toplice pokazuju vrijednosti ispod dozvoljene tolerancije, dok u svim ostalim termama organizmi imaju nešto veće ili čak znatno veće aktivnosti. Nekada su te razlike veće, kao npr. u Krapinskim toplicama gdje je u vodi izmjeren aktivitet od 9,67 pC/l, a u životinjskom materijalu (puževi) čak 49,795 pC/g mokre tvari, iako su biljke iz istog staništa pokazivale aktivnost od samo 10,880 pC/g mokre tvari. To bi nam ukazivalo da se radioaktivne tvari u termalnim vodama znatno više gomilaju u životinjama nego u biljkama. Ovo se može tumačiti time što se kod vodenih biljaka znatno manje skupljaju rezervne tvari, a naročito ne one u kojima ima radioaktivnih izotopa, kao što je, čini se, slučaj kod životinja.

U zimskom periodu smo posjetili ponovno iste termalne vode kao i u jesen, osim onih gdje ranije nismo mogli naći organizme. Pri ponovnom uzimanju podataka, pored mjerenja ukupne beta-aktivnosti voda i mjerenja glavnih ekoloških faktora, veću pažnju smo posvetili mjerenju radioaktivnosti žarenog pepela pojedinih skupina organizama, a manje smo vršili direktna mjerenja ukupne beta-aktivnosti kod organizama. Osim toga tada su uzimane i probe mulja. Dobiveni podaci prikazani su na tabeli 2.

TABELA 1.

Ukupna β -aktivnost u vodi i organizmima u termalnim vodama Hrvatskog zagorja u jesen 1962.

Mjesto uzimanja uzoraka	Radioaktivnost		Ostali ekološki faktori			
	vode u pC/l	organizama u pC/g mokre tvari	Temperatura u °C	Alkalinitet u mval	CO ₂ u mg/l	O ₂ u ccm/l
Stubičke toplice	5,27	7,785 (biljke)	28,5	5,8	1,8	5,5
Tuheljske toplice	20,44	21,825 (životinje) 15,525 (biljke)	31	5,6	0,6	2,1
Krapinske toplice	9,67	10,880 (biljke) 49,795 (životinje)	37,1	5	0,2	4,2
Šemnica	33,25	46,35 (biljke)	27,6	6,3	0,5	5,8
Sutinske toplice	17,12	Vrelo kaptirano	38	5	0,5	2,2
Varaždinske toplice	32,6	20,745 (biljke)	48,7	7,7	1,5	1,8

TABELA 2.

Ukupna β -aktivnost u vodi i organizmima u termalnim vodama Hrvatskog zagorja zimi 1964.

Mjesto uzimanja uzoraka	Radioaktivnost					Ostali ekološki faktori					
	vode pC/l	žarenog pepela organizama u pC/g	suhe tvari organizama u pC/g	mulj užare- nog ostatka u pC/g	mokre tvari organizama u pC/g	Temperatura		Alka- linitet u mval	CO ₂ u mg/l	O ₂ u ccm/l	pH
						vode u °C	uzdu- ha u °C				
Tuheljske toplice	14	268 (alge) 706 (alge koje plivaju 538 (harc) 226 (više biljke)	162 (više biljke)	84	22,5 (više biljke)	29,5	3	6	0,1	3,8	7
Krapinske toplice	10–15	138 (biljke i životinje)		264		26	7,3	5,2	0,1	4,6	7
Šemnica	10–14	252 (alge)	142 (alge)	76	10,3	26,5	2,5	5,8	0,3	0,34	7
Varaždinske toplice	16–20	516 (alge)				47,2	3,6	8,1	0,6	2,85	7

Potpune podatke dobili smo za aktivnost vode i žarenog pepela biljaka. Biljke su uzete zbog toga što one dolaze u vrlo velikim količinama i predstavljaju glavne organizme na svim istraženim biotopima. Aktivnost po gramu suhe i vlažne tvari mjerila se samo mjestimično.

Radioaktivnost vode u ovom se periodu kretala uglavnom nešto iznad dozvoljene tolerancije za pitke vode, tj. nešto iznad 10 pC/l. Ipak, kao i u jesen, neke su vode pokazivale veću beta-aktivnost. I ovoga puta najveću aktivnost imale su vode u Varaždinskim toplicama, gdje je izmjereno 16—20 pC/l beta-aktivnosti. U jesenjem periodu nešto veću aktivnost pokazivale su vode iz Tuheljskih toplica i Šemnice u odnosu na vode drugih terma. Ovoga su puta i ove vode bile nešto jače radioaktivne, ali razlike nisu bile tako izrazite jer se ponekad i u drugim termama, kao što su Krapinske toplice, mogla iz nekih proba izmjeriti približno jednaka radioaktivnost. To pokazuje da su tačne pretpostavke ranijih istraživača radioaktiviteta u termama, da se on sezonski može mijenjati. Isto tako treba imati na umu da su te aktivnosti vrlo slabog intenziteta, pa samo neznatne promjene u sastavu radioaktivnih soli mogu poremetiti odnose koji postoje u radioaktivnostima između pojedinih voda.

Beta-aktivnost po gramu mokre tvari mjerena je samo kod biljaka u Tuheljskim toplicama i Šemnici. Dok više biljke Tuheljskih toplica pokazuju približno istu aktivnost kao i sav biljni materijal iz jesenjeg perioda, dotle alge iz Šemnice po gramu mokre tvari imaju niže vrijednosti nego u jesen. Više biljke po gramu mokre tvari iz Tuheljskih toplica imale su i nešto višu aktivnost, dok su alge iz Šemnice pokazivale istu aktivnost kao i voda. Iz istih staništa, i na istom materijalu mjerena je aktivnost po gramu suhe tvari. Ona je znatno veća od one u vodi i po gramu mokre tvari. Isti materijal iz oba staništa pokazuje međutim približno jednaku aktivnost, s time što više biljke iz Tuheljskih toplica imaju samo neznatno povećanje. Još su veće razlike u odnosu na aktivnost vode, ako se izmjere po gramu žarenog pepela. Zanimljiva je usporedba s jedne strane u raznim termama a s druge strane raznih organizama iste terme. Obično jače radioaktivne vode imaju utjecaja na veću radioaktivnost u organizmima (Varaždinske toplice). To povećanje je približno proporcionalno beta-radioaktivnosti vode.

U Tuheljskim toplicama, gdje se može sakupiti raznovrstan biljni materijal, mogu se zapaziti zanimljive razlike kod različitih skupina biljaka. Posebno su mjerene alge dna, zatim alge koje plivaju, pa onda hare i više biljke. Zanimljivo je da pedonske alge i više biljke koje imaju također takav karakter, imaju približno iste aktivnosti u odnosu s drugim tipovima biljaka, gdje su aktivnosti najniže. Gotovo dvostruko veću aktivnost imaju hare ili parožine. Ove zelene alge, iako su svojim donjim dijelovima pričvršćene za muljevito dno, sa svojim gornjim dijelovima na ovim staništima izlaze djelomično i iznad vodene površine. Još veću beta-aktivnost, koja je gotovo trostruka od one pedonskih biljaka, pokazuju alge koje plivaju na površini. To je zanimljiva konstatacija koja nam ukazuje da ove vodene biljke primaju radioaktivne tvari najviše iz

okolne vode, a ne iz dna. Na to ukazuje i beta-radioaktivnost mulja koja je također mjerena po gramu žarenog ostatka. Obično taj mulj ima znatno niže vrijednosti koje su po tri, četiri, pa čak i gotovo deset puta manje od beta-radioaktivnosti po gramu žarenog pepela biljaka.

Ako se usporedi aktivnost u vodama i organizmima s ostalim ekološkim faktorima, i u ovo doba može se konstatirati da visoka temperatura i viši alkalinitet vode prati i veća radioaktivnost, što se naročito može lijepo vidjeti i u Varaždinskim toplicama. Što se tiče količine O_2 nije se ni u ovo doba mogla utvrditi neka analogija s beta-radioaktivnošću. Količina slobodnog CO_2 je i u ovo doba bila vrlo neznatna.

Osvrt na postignute rezultate

Iz ovih istraživanja mogli smo svakako ustanoviti da postoje određeni odnosi između radioaktivnosti termalnih voda i organizama koji u njima žive. Iako smatramo da je radioaktivnost u istraživanim termalnim vodama u prvom redu prirodna, ipak moramo napomenuti da bi tek analiza pojedinih radionuklida mogla dati tačan odgovor o odnosu prirodne i umjetne radioaktivnosti u ovome biotopu. Taj zadatak smo si postavili u drugoj fazi naših istraživanja. Bez obzira na porijeklo radioaktivnosti, ipak je moguće ustanoviti da je radioaktivnost u organizmima ovisna o radioaktivnosti voda. S jedne strane razlike u radioaktivnosti voda različitih terma očituju se i u drugačijoj radioaktivnosti pojedinih skupina organizama.

Što se tiče samih organizama očito je da se radioaktivne supstance znatno više skupljaju u životinjama nego u biljkama.

Isto tako se moglo ustanoviti da radioaktivne tvari nisu jednoliko raspoređene u termalnim vodama. Najviše ima otopljenih tvari u samoj vodi, dok se u mulju mogu utvrditi u manjim količinama. Kao indikatori u tom slučaju poslužile su nam različite skupine biljaka koje žive u tim termama. Biljke koje su ovisne o dnu iz kojeg uzimaju hranidbene soli obično pokazuju manju aktivnost od onih koje su ovisne o solima otopljenim u samoj vodi. Tako više biljke koje su ukorijenjene i pedonske alge pokazuju znatno manje aktivnosti od onih alga (najčešće cijanoficeje) koje poput vodenih cvjetova plivaju ili pak harâ koje su čitavim svojim talusom uronjene u vodu od dna do površine.

Nadalje, iz ovih naših prvih ispitivanja radioaktivnosti u termalnim vodama Hrvatskog zagorja može se ustanoviti prilično jasan paralelizam koji postoji u vodi i vodenim organizmima te nekih fizičko-kemijskih ekoloških faktora kao što su temperatura i alkalinitet termalne vode. Povišenu beta-radioaktivnost obično prati povećana temperatura i alkalinitet. To je i razumljivo, ako uzmemo ova tri naoko različita faktora, kao faktore koji su međusobno ovisni i čine jedinstvo. Naime, voda s većom temperaturom jače otapa soli na podlozi kroz koju protiče a to onda povećava i koncentraciju otopljenih soli u termalnim vodama, pa tako i bikarbonata koji uz stabilne elemente mogu sadržavati i radionuklide.

Isto tako se moglo zapaziti da tvari koje nemaju direktne povezanosti s podlogom, kao što je CO_2 i O_2 ne pokazuju da imaju utjecaja na radioaktivitet vode i organizama.

Svi ti rezultati ukazuju da će u daljnjim istraživanjima biti potrebno izvršiti analize u pogledu nagomilavanja radioaktivnih tvari u pojedinim vrstama organizama. Stoga će biti potrebno da se izvrše mjerenja za pojedine vrste koje se javljaju u većim količinama, a zatim da se utvrdi, ako bude moguće, gdje se pojedine radioaktivne tvari jače nagomilavaju. To se naročito tiče životinjskih organizama, kod kojih će biti potrebno izvršiti analizu i za pojedine organe. Isto tako i kod biljaka će trebati ispitati da li se radioaktivne tvari nagomilavaju više u asimilatoričkim organima, odnosno dijelovima biljke ili pak na drugim mjestima.

ZAKLJUČAK

U ovoj raspravi izneseni su podaci o istraživanjima radioaktivnosti voda i organizama u termama Hrvatskog zagorja. U tom pogledu obrađene su Tuheljske, Stubičke, Krapinske, Sutinske, Varaždinske toplice i Šemnica. Na osnovi materijala i podataka uzetih u jesenskom i zimskom periodu izmjerena je cjelokupna beta-aktivnost voda i nekih skupina organizama. Radioaktivnost je mjerena u pC na gram mokre i suhe tvari i užarenog pepela, dok se radioaktivnost vodi mjerila u pC na litru vode.

Prije obradbe rezultata prikazani su i dosadašnji rezultati istraživanja u termalnim vodama Hrvatskog zagorja.

Ustanovljeno je da je radioaktivnost voda različita u pojedinim termalnim vodama i da promjene radioaktivnosti prate i promjene u temperaturi i alkalinitetu vode.

Izmjerena beta-aktivnost se kreće u svim vodama iznad 10 pC/l, što je određeno kao maksimum tolerancije za pitke vode po ICRP.

Organizmi općenito pokazuju veću beta-aktivnost od one u vodi, bilo da se mjeri po gramu suhe ili mokre tvari ili žarenog pepela. Najmanje razlike prema radioaktivnosti voda pokazuju biljke, dok je kod životinja ta radioaktivnost nekoliko puta veća.

Upoređujući radioaktivnost različitih tipova biljaka mogle su se ustanoviti znatne razlike u istim termalnim vodama. Najveću radioaktivnost pokazale su alge koje plivaju i hare koje su također ovisne o okolnoj vodi, i često vire svojim talusima iznad površine, dok su pedonske alge i vodene biljke koje se ukorjenjuju imale znatno manju beta-aktivnost. To se dovelo u vezu s otopljenim solima u vodama koje vjerojatno utječu na povećanje radioaktivnosti biljaka koje su u većem kontaktu s vodom. Slaba radioaktivnost koja je izmjerena u užarenom ostatku mulja ukazuje tek na manje količine radioaktivnih tvari u pridnenom području.

Isto tako je ustanovljeno da tvari koje nemaju izravnog dodira s podlogom, kao što su O_2 i CO_2 , najvjerojatnije nemaju nikakvog utjecaja na radioaktivnost u organizmima i vodama.

L I T E R A T U R A — L I T E R A T Ū R

- Državni sekretarijat za poslove narodne obrane. — Uprava za civilnu zaštitu (1963): Radioaktivnost životne sredine u Jugoslaviji. Podaci za 1961. godinu.
- Državni sekretarijat za poslove narodne obrane. — Uprava za civilnu zaštitu (1963): Radiokativnost životne sredine u Jugoslaviji. Podaci za 1962.
- Forster, R. F., Rostenbach R. E.* (1954): Distribution of radioisotopes in Columbia River. — *J. Amer. Water Works Assoc.* 46 : 633—640.
- Forster, R. F. Davis J. J.* (1956): The accumulation of radioactive substances in aquatic forms. — *Schr. — R. GWF, Wasser-Abwasser* 203—207.
- Forster, R. F.,* (1959): The Need for Biological Monitoring Radioactive Waste Streams — *Sewage and Industrial Wastes* 31, 12.
- Franz, A.,* (1960): Die Radioaktivität österreichischer Gewässer. *Wasser und Abwasser*, 1960 : 3—11.
- Franz, A.,* (1963): Radioaktivität der Oberflächengewässer. — *Schriftenreihe des österreichischen Wasserwirtschaftverbandes* 44:96—102.
- Kaudewitz, F.,* (1958): Versuche mit radioaktivem Phosphor an einzelnen Zellen verschiedener Protozoenarten. *Archiv für Protistenkunde* 102 : 321—448.
- Liebmann, H.,* (1962): *Handbuch der Frischwasser- und Abwasserbiologie* I. München.
- Miholić, S.,* (1940): Kemijska analiza termalnih vrela u Hrvatskom zagorju. — *Rad JAZU* 167 : 195—215.
- Miholić, S.,* (1945): Kemijska analiza termalnog vrela u Stubičkim toplicama. — *Rad JAZU* 278 : 195—211.
- Miholić, S. i Trauner L.,* (1952): Mineralne vode u Hrvatskoj. — *Godišnjak Balneološko-klimatološkog instituta NR Hrvatske*; 59—133.
- Matoničkin, I. i Pavletić Z.,* Radioaktivnost u prirodnim i otpadnim vodama i njen biološki značaj. *Civilna zaštita* (u štampi).
- Matoničkin, I. i Pavletić Z.,* (1963): Nagomilavanje radioaktivnih tvari u vodenim organizmima. *Priroda* 6.
- Näher, W.,* (1963): Untersuchungen über die Radioaktivität in Wasser und Plankton des Starnberger Sees mit besonderer Berücksichtigung der Wassergüte. — *Arch. Hydrobiol.* 59 : 401—466.
- Ruf, M.,* (1957): Beitrag über das Verhalten radioaktiver Substanzen in Oberflächengewässern. I. Mitteilungen über Kontrolluntersuchungen am Forschungsreaktor München. *Das Gas- u. Wasserfach* (Wasser-Abwasser) 98 : 1249—1251.
- Ruf, M.,* (1959): Radioaktive Substanzen im Abwasser und Vorfluter und deren Berücksichtigung bei der Bewertung der Wasserqualität, *Münch. Beitr. z. Abw. — Fisch- u. Flussbiol.* 6 : 157—170.
- Ruf, M.,* (1960): Das Verhalten radioaktiver Substanzen im Abwasser und Vorfluter unter Berücksichtigung eigener Erfahrungen. — *Münch. Beitr. z. Abw. — Fisch- u. Flussbiol.* 7 : 192—207.
- Ruf, M.,* (1962): Untersuchungen über das Verhalten radioaktiver Substanzen in Oberflächengewässern und Abwasser. *Das Gas- u. Wasserfach* 103 : 713—721.

ZUSAMMENFASSUNG

BEITRAG ZUR KENNTNIS DER RADIOAKTIVITÄT IM THERMALWASSER VON HRVATSKO ZAGORJE (KROATIEN)

I. Matoničkin, Z. Pavletić und V. Popović

In dieser Arbeit wird ein Überblick über die Radioaktivitäts-Untersuchungen des Wassers und der Organismen im Thermalwasser von Hrvatsko zagorje in Nord-Kroatien gegeben. Aus diesem Gebiet wurden Tuheljske toplice, Stubičke toplice, Sutinske toplice, Varaždinske toplice und Šemnica berücksichtigt. Die Beta Aktivität des Wassers und einiger Organismengruppen wurde im Herbst und Winter gemessen, und zwar in pC pro Gramm bei feuchter und trockener Supstanz und in pC/l bei Wasser.

Es wurde festgestellt, dass die Radioaktivität des Wassers in den einzelnen Thermalwässern verschieden ist und dass diese Unterschiede von Veränderungen der Temperatur und Alkalinität des Wassers begleitet sind. Die Beta-Aktivität beträgt in allen Gewässern über 10 pC/l.

Die Organismen zeigen im allgemeinen eine grössere Beta-Aktivität als des Wassers (entweder pro Gram feuchter, trockener oder Glühaschesupstanz gemessen). Dagegen unterscheiden sich die Pflanzen weniger von den Tieren, bei welchen die Radioaktivität oftmals größer ist.

Die Radioaktivität unterscheidet sich bei verschiedenen Pflanzentypen in demselben Thermalwasser bedeutend. Schwimmende Algen, welche von ungebenden Wasser abhängig sind und oft mit ihren Thallus über die Wasseroberfläche ragen, haben eine grössere Radioaktivität als Algen und andere Wasserpflanzen, die im Pedon verwurzelt sind. Das steht wahrscheinlich im Zusammenhang mit den im Wasser gelösten Salzen, welche eine Erhöhung der Radioaktivität der Pflanzen bewirken, da diese im engerem Kontakt mit dem Wasser stehen.

Außerdem wurde festgestellt, dass die Substanzen, welche keinen direkten Kontakt mit der Unterlage haben, wahrscheinlich auch keinen Einfluss auf die Radioaktivität in den Organismen und im Wasser haben.