資 料

フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ による被曝線量の推定篠原邦彦*¹, 大和愛司*¹

(1982年10月20日受理)

Estimation of Dose to Man from Fallout $^{239+240}\text{Pu}$ Kunihiko SHINOHARA*¹ and Aiji YAMATO*¹

The world population has been exposed to fallout plutonium from nuclear tests. About 320 kCi of $^{239+240}\text{Pu}$ was deposited on the earth for the period from 1945 to 1973.

In this work, the organ burden and the dose to man have been estimated by using the measured airborne $^{239+240}\text{Pu}$ concentration from 1954 to 1980 in Tokyo and Ibaraki. The model for the respiratory system developed by the ICRP Task Group on Lung Dynamics and the "source-target method" were used to calculate the burden and the dose.

The burden in the organs of the reference man exposed to airborne $^{239+240}\text{Pu}$ was estimated to be 0.028 pCi in lung, 0.16 pCi in lymph node, 0.51 pCi in liver, 0.58 pCi in bone and 0.00049 pCi in testes, respectively at the end of 1980 based on the assumption that the Activity Median Aerodynamic Diameter (AMAD) was $0.4\ \mu\text{m}$ and the solubility class was Y. On the same assumption, the cumulative dose from 1954 to 1980 was 18 mrem to lung, 760 mrem to lymph node, 8.5 mrem to liver, 2.7 mrem to red marrow, 38 mrem to endosteal surface and 0.39 mrem to testes, respectively, and the effective dose was 5.6 mrem.

The burden and the dose for other cases of the AMAD and the solubility class have also been estimated.

KEY WORDS : fallout, $^{239+240}\text{Pu}$, burden, dose, airborne, the ICRP Task Group on Lung Dynamics, reference man, the Activity Median Aerodynamic Diameter (AMAD), solubility class, effective dose

I 序

1945年以来, 大気圏内核実験の結果として, 多量のプルトニウムが地球上に沈積し, 1973年までには約320 kCiに達したと推定されている¹⁾。これらのプルトニウムは, 呼吸あるいは食物を通じて人体内に取り込まれ,

内部被曝線量を付与しているものと考えられる。

わが国におけるフォールアウトの研究は, 1954年以降精力的に行われており, このうちプルトニウムに関する研究は近年盛んになってきている。

フォールアウト・プルトニウムの測定値をもとに, 人体内各器官中のプルトニウム負荷量および被曝線量*²を推定評価することは, すでに Health and Safety Laboratory (現在, Environmental Measurement Laboratory) の BENNETT によって行われている²⁾。また, 器官中プルトニウム濃度の実測値から, ニューヨークの一般公衆の被曝線量評価に適用できるモデルを作成した報告もある³⁾。しかしながら, わが国のフォールアウト・データを用いた被曝線量の評価については行われていな

*¹ 動力炉・核燃料開発事業団安全管理部環境安全課; 茨城県那珂郡東海村 (〒319-11)

Environmental Protection Section, Health and Safety Division, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation; Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken.

*² 本稿で言う“線量”とは, 特に断わらない限り“線量当量”を意味する。

Table 1 Airborne Pu-239+240 concentration and inhalation rate.

Year	Airborne concentration (pCi/m ³)	Inhalation rate (pCi/day)
1954	3.0×10^{-5}	6.9×10^{-4}
55	8.0×10^{-5}	1.8×10^{-3}
56	9.0×10^{-5}	2.1×10^{-3}
57	9.5×10^{-5}	2.2×10^{-3}
58	1.2×10^{-4}	2.8×10^{-3}
59	2.0×10^{-4}	4.6×10^{-3}
60	8.0×10^{-5}	1.8×10^{-3}
61	7.2×10^{-5}	1.7×10^{-3}
62	2.2×10^{-4}	5.1×10^{-3}
63	4.0×10^{-4}	9.2×10^{-3}
64	3.8×10^{-4}	8.7×10^{-3}
65	2.3×10^{-4}	5.3×10^{-3}
66	1.4×10^{-4}	3.2×10^{-3}
67	4.0×10^{-5}	9.2×10^{-4}
68	4.6×10^{-5}	1.1×10^{-3}
69	2.3×10^{-5}	5.3×10^{-4}
70	1.2×10^{-5}	2.8×10^{-4}
71	2.5×10^{-5}	5.8×10^{-4}
72	1.0×10^{-5}	2.3×10^{-4}
73	6.0×10^{-6}	1.4×10^{-4}
74	1.0×10^{-5}	2.3×10^{-4}
75	9.5×10^{-6}	2.2×10^{-4}
76	5.0×10^{-6}	1.2×10^{-4}
77	1.5×10^{-5}	3.5×10^{-4}
78	2.0×10^{-5}	4.6×10^{-4}
79	7.0×10^{-6}	1.6×10^{-4}
80	3.4×10^{-6}	7.8×10^{-5}

い。

本稿では、わが国における大気中プルトニウム濃度の測定値をもとに、ICRPの肺動力学に関するタスク・グループが開発した肺モデル（以下、ICRP TGLMと略称）^{4,5)} および“source-target”法による線量評価法を用いて、人体内の各器官中プルトニウム負荷量および被曝線量を推定評価した。

II 計 算 条 件

1. 大気中プルトニウム濃度

人体内の各器官中プルトニウム負荷量および被曝線量を推定するために用いた大気中プルトニウム (²³⁹⁺²⁴⁰Pu)

濃度を **Table 1** に示す。本表で、1954 年から 1974 年までの値は、三宅らが東京で測定した ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 降下量から算出したものであり⁶⁾、1975 年から 1980 年までの値は、動力炉・核燃料開発事業団（以下、動燃と略称）が茨城県東海村周辺 9 カ所において、ダスト・サンブラーにより捕集した大気中浮遊塵を分析・測定したものである⁷⁾。両者の値は、重複する 1975 年から 1977 年までの間で良く一致したため、評価上同一地点での濃度と見なして、混合して用いても問題はないものと判断した。なお、 α スペクトロメトリーでは、²³⁹Pu と ²⁴⁰Pu を弁別して測定することが困難であるため、本稿で言うプルトニウムとはすべて ²³⁹⁺²⁴⁰Pu を意味する。

2. プルトニウムの代謝データ

プルトニウムの代謝データとしては、**Table 2** に示す値を使用した。これらは ICRP Publication 23⁸⁾ および 30⁹⁾ より引用した。器官名およびその質量については、ICRP と異なる部分があるが、これは後述する計算コードの出力に従ったためである。

本稿では、小腸からのプルトニウムの吸収率を ICRP に従って、移行クラス W の化合物について 10^{-4} 、Y の化合物について 10^{-5} としたため、経口摂取の寄与は吸入摂取と比較して少ないものと判断し、吸入摂取のみを考慮した。吸入率は、呼吸率を 23 m³/day と仮定し⁸⁾、各年の 1 年間は **Table 1** に示す吸入率が継続するものとした。

評価上、重要な因子である空気力学的放射能中央径 (Activity Median Aerodynamic Diameter, 以下、AMAD と略称) および移行クラスについては、環境中でのプルトニウムの挙動が、その物理的・化学的性状の他、気象あるいは土地利用状況に依存するといったように複雑であるため⁹⁾、本稿では AMAD について 0.4 μ m と 1.0 μ m を、また移行クラスについては W と Y を仮定した。BENNETT²⁾ および FISENNE³⁾ は、AMAD として 0.4 μ m を用いているが、これは SHLEIEN らのフォールアウト粒子の AMAD 測定結果¹⁰⁾をもとにしている。また、彼らはフォールアウト・プルトニウムは二酸化物 (PuO₂) であるとし、クラス Y を仮定している。

3. 計算コード

ICRP TGLM により人体内各器官中の負荷量および被曝線量を評価することのできる計算コードとしては、動燃の ACRO¹¹⁾、Battelle 研究所の REDIQ¹²⁾、Oak Ridge 研究所の TIMED¹³⁾、INREM II¹⁴⁾ および ICRP¹⁵⁾ が公開されている。なお、ICRP は WATSON らが、ICRP Publication 30 のために作成したコード・システムである。本稿の推定評価のためには、連続摂取が評価

Table 2 Metabolic data for Reference Man to estimate Pu-239+240 burden and dose to man.

Respiratory volume	23 m ³ /day			
Deposition fraction	AMAD (μm)	D_{NP}	D_{TB}	D_{P}
	0.4	0.12	0.08	0.39
	1.0	0.30	0.08	0.25
GI-tract to blood absorption fraction (f_1)	Solubility class	f_1		
	W	10^{-4}		
	Y	10^{-5}		
Source organ, blood to organ translocation fraction (f_2') and biological half-life (T_b)	Organ	f_2'	T_b (day)	
	Lung	—	— *	
	Lymph node	—	— *	
	S-content	—	— **	
	SI-content	—	— **	
	ULI-content	—	— **	
	LLI-content	—	— **	
	Liver	0.45	1.46×10^4	
	Bone			
	cortical	0.225	3.65×10^4	
	cancellous	0.225	3.65×10^4	
	Testes	3.5×10^{-4}	infinite	
Target organ and mass	Organ	Mass (g)		
	Lung	1,000		
	Lymph node	15		
	S-wall	150		
	SI-wall	640		
	ULI-wall	210		
	LLI-wall	160		
	Liver	1,800		
	Bone			
	red marrow	1,500		
	endosteal	125		
	Testes	35		

* Use the constants for the ICRP Task Group Lung Model.

** Use the constants for the ICRP GI-tract Model.

でき、吸入率を **Table 1** のように変化させて取扱うことができる計算コードを選択する必要があった。検討の結果、単体でこの要求に合致する計算コードはなかったため、負荷量については ACRO、また被曝線量について

は INREM II をそれぞれ使用することとした。本稿での被曝線量評価値と ICRP Publication 30 の方法による評価値の整合性を見るため、1 μCi 吸入後の 50 年間預託線量を ICRP コードおよび INREM II コードによ

Table 3 Comparison of dose (rem/ μ Ci-inhaled) computed by INREM II and ICRP codes.

INREM II			ICRP		
Lung	W	6.1×10^1	Lung*	W	6.0×10^1
	Y	5.9×10^2		Y	1.2×10^3
Lymph node	W	3.3×10^2	Liver	W	2.0×10^3
	Y	4.1×10^4		Y	7.8×10^2
Liver	W	2.0×10^3	Red marrow	W	7.4×10^2
	Y	7.7×10^2		Y	2.8×10^2
Red marrow	W	7.5×10^2	Bone surf.	W	9.3×10^3
	Y	2.9×10^2		Y	3.5×10^3
Endosteal surf.	W	1.0×10^4	Testes	W	1.2×10^2
	Y	4.0×10^3		Y	4.4×10^1
Testes	W	1.2×10^2			
	Y	4.5×10^1			

* Composite organ of tracheo-bronchial, pulmonary and lymph node.

Fig. 1 Airborne Pu-239+240 concentration and estimated burden in Reference Man's organ based on the assumption that the AMAD is 0.4 μ m and the solubility class is W.

Fig. 2 Airborne Pu-239+240 concentration and estimated burden in Reference Man's organ based on the assumption that the AMAD is 0.4 μ m and the solubility class is Y.

り計算したところ、Table 3 に示すように良く一致した。なお、INREM II の骨内膜表面(endosteal surface)は、ICRP の骨表面 (bone surface) に相当する。また、ICRP は肺として、気管-気管支、肺胞およびリンパ節の複合器官を定義しているのに対して、INREM II では、肺は肺胞のみとし、リンパ節は別の器官として取

扱っている。

III 計算結果

1. 体内各器官中の $^{239+240}\text{Pu}$ 負荷量

Table 1 に示す吸入率で摂取し続けた場合、1980 年末における reference man⁸⁾ の体内各器官中 $^{239+240}\text{Pu}$ 負

Table 4 Estimated Pu-239+240 burden in Reference Man's organ in 1980.

Organ	Class	AMAD (μm)	Burden (pCi)
Lung (Pulmonary)	W	0.4	1.1×10^{-3}
		1.0	7.7×10^{-4}
	Y	0.4	2.8×10^{-2}
		1.0	2.0×10^{-2}
Lymph node	W	0.4	3.0×10^{-4}
		1.0	2.0×10^{-4}
	Y	0.4	1.6×10^{-1}
		1.0	1.0×10^{-1}
Liver	W	0.4	8.7×10^{-1}
		1.0	8.1×10^{-1}
	Y	0.4	5.1×10^{-1}
		1.0	3.5×10^{-1}
Bone cortical	W	0.4	5.0×10^{-1}
		1.0	4.7×10^{-1}
	Y	0.4	2.9×10^{-1}
		1.0	2.0×10^{-1}
cancellous	W	0.4	5.0×10^{-1}
		1.0	4.7×10^{-1}
	Y	0.4	2.9×10^{-1}
		1.0	2.0×10^{-1}
Testes	W	0.4	9.0×10^{-4}
		1.0	8.4×10^{-4}
	Y	0.4	4.9×10^{-4}
		1.0	3.4×10^{-4}

荷量の計算結果は、Table 4 に示すようになった。各年における負荷量は、AMAD を $0.4 \mu\text{m}$ と仮定した場合、Fig. 1, 2 に示すように変化することがわかった。移行クラスをWと仮定した場合 (Fig. 1) の肺およびリンパ節の負荷量が、大気中 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の変化に対応して変化しているのに対して、クラスYを仮定した場合 (Fig. 2) は異なった変化パターンを示している。肺負荷量は、大気中 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度が最大となる 1963~1964 年に最大値を示し、この時の負荷量は 0.13 pCi (クラス W) および 0.99 pCi (クラス Y) である。また骨および肝臓については、1980年においてほぼ平衡に達していることがわかる。

BENNETT の計算では、1972 年のニューヨーク市民の体内負荷量として、肺 0.19 pCi 、リンパ節 0.48 pCi 、骨 0.95 pCi および肝臓 0.89 pCi を与えている²⁾。これに

Table 5 Estimated cumulative dose from 1954 to 1980.

Organ	Class	AMAD (μm)	Dose (mrem)
Lung	W	0.4	1.9
		1.0	1.2
	Y	0.4	18
		1.0	12
Lymph node	W	0.4	10
		1.0	6.5
	Y	0.4	760
		1.0	490
Liver	W	0.4	19
		1.0	18
	Y	0.4	8.5
		1.0	5.9
Red bone marrow	W	0.4	6.4
		1.0	6.0
	Y	0.4	2.7
		1.0	1.9
Endosteal surf.	W	0.4	89
		1.0	83
	Y	0.4	38
		1.0	27
Testes	W	0.4	0.92
		1.0	0.86
	Y	0.4	0.39
		1.0	0.27

対応する Fig. 2 の 1972 年を見ると、肺 0.093 pCi 、リンパ節 0.29 pCi 、骨 0.53 pCi および肝臓 0.48 pCi となり、BENNETT の約 2 分の 1 となっている。この理由は、BENNETT の使用した大気中 ^{239}Pu 濃度^{*3)}が、本稿で使用した濃度と比較して約 2 倍高いためである。フォールアウト放射性核種の沈着量の地域差は、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs について気象条件等によりかなり大きいことが確認されており^{16,17)}、 $^{239+240}\text{Pu}$ についても同様に地域差が存在するものと考えられる。

2. 被曝線量

1954 年から 1980 年までの間の reference man に対する被曝線量 (集積線量) の計算結果は、Table 5 に示すようになった。各年における集積線量は、AMAD を

*3 BENNETT は、 $^{239+240}\text{Pu}$ を全量が ^{239}Pu であるとして計算している。線量評価上も、 ^{239}Pu と ^{240}Pu は同等と見なしてよい⁵⁾。

Fig. 3 Estimated cumulative dose to Reference Man's organ based on the assumption that the AMAD is $0.4\ \mu\text{m}$ and the solubility class is W.

Fig. 4 Estimated cumulative dose to Reference Man's organ based on the assumption that the AMAD is $0.4\ \mu\text{m}$ and the solubility class is Y.

$0.4\ \mu\text{m}$ と仮定した場合、**Fig. 3, 4** に示すようにに変化することがわかった。移行クラスを W と仮定した場合 (**Fig. 3**) の肺およびリンパ節の被曝線量は、1970 年以降はほぼ平衡に達しているのに対して、他の器官については増加を続けている。また、クラス Y を仮定した場合 (**Fig. 4**) は、肺の被曝線量が1970 年以降はほぼ平衡に達している以外は、増加を続けている。

BENNETT の計算では、1972 年において肺 15 mrem、リンパ節 500 mrem、骨7 mrem および肝臓 4.1 mrem を与えている。これに対応する **Fig. 4** の 1972 年を見ると、肺 15 mrem、リンパ節 550 mrem、骨内膜表面 18 mrem、赤色骨髓 1.3 mrem および肝臓 4.1 mrem となる。この結果からは、両者の結果が良く一致しているように見えるが、BENNETT が α 線の線質係数を 10 としているのに対して、本稿では 20 としているため、吸収線量に換算して比較すると、負荷量と同様に BENNETT の計算結果が約 2 倍大きくなる。この理由については、負荷量の場合と同様であると考えられる。

Table 5 の計算結果をもとに、ICRP Publication 26¹⁸⁾ に与えられている荷重係数を用いて、実効線量を求めると、**Table 6** のようになった。

IV ま と め

わが国における 1954 年から 1980 年までの間の大気中 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度および ICRP TGLM により、人体内各

Table 6 Estimated effective cumulative dose from 1954 to 1980.

Solubility Class	AMAD (μm)	Effective Dose (mrem)
W	0.4	5.4
	1.0	4.7
Y	0.4	5.6
	1.0	3.8

器官中の $^{239+240}\text{Pu}$ 負荷量および被曝線量を推定評価した。この結果、1980 年における負荷量および被曝線量は、それぞれ **Table 4, 5** のようになると推定された。また、実効線量は **Table 6** に示すように、本稿で仮定した AMAD および移行クラスでは、約 5 mrem となることがわかった。なお、大気中 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度が 1981 年以降 $1 \times 10^{-6}\ \text{pCi/m}^3$ を維持すると仮定すると、1954 年から 2000 年までの実効線量は、約 9 mrem となる。

本稿で与えた結果は、すべて ICRP TGLM に基づく推定値であるため、その可否については一般人への本モデルの適用の可否も含め、詳細な検討が必要であると考ええる。

参 考 文 献

1) UNSCEAR; Sources and Effects of Ionizing

- Radiation (1977).
- 2) B.G. BENNETT; Fallout Pu-239 Dose to Man, HASL-278, p. I. 41 (1974).
- 3) I.M. FISENNE; A Model of the Distribution of Fallout Plutonium-239, 240 in New York City Residents Based on Measured Tissue Concentration (1979), University Microfilms International.
- 4) ICRP Publication 19; Metabolism of Compounds of Plutonium and Other Actinides (1972), Pergamon Press, Oxford.
- 5) ICRP Publication 30; Limits for Intakes of Radionuclides by Workers (1979), Pergamon Press, Oxford.
- 6) Y. MIYAKE, Y. Sugimura, K. SARUHASHI, Y. KATSURAGI and K. HIROSE; Plutonium and Americium in the Environment, “海洋と大気の地球化学 (第2集)”, p.871 (1979), 気象研究所, 東京.
- 7) A. YAMATO; Fallout Pu-239, Pu-240 and Sr-90 in Surface-air in Ibaraki-prefecture, Japan, *Radioisotopes*, 30, 104 (1981).
- 8) ICRP Publication 23; Report of the Task Group on Reference Man (1975), Pergamon Press, Oxford.
- 9) EPA; Proposed Guidance on Dose Limits for Persons Exposed to Transuranium Elements in the General Environment, EPA 520/4-77-016 (1977).
- 10) B. SHLEIEN, N.A. GACTA and A.G. FRIEND; Determination of the Particle Size Characteristics of Old and Fresh Fallout by Graded Filtration, *Health Phys.*, 12, 633 (1966).
- 11) K. SHINOHARA, Y. KISHIMOTO and Y. KITA-HARA; ACRO—A Computer Program for Calculating Organ Doses from Acute or Chronic Inhalation and Ingestion of Radionuclides, PNCT 843-80-11 (1980).
- 12) D.L. STRENGE, E.G. WATSON and W.E. KENNEDY; REDIQ—A Computer Program for Estimating Health Effects from Inhalation and Ingestion of Radionuclide, BNWL-2110 (1976).
- 13) S.B. WATSON, W.S. SNYDER and M.R. FORD; TIMED: A Computer Program for Calculating Cumulated Activity of a Radionuclide in the Organs of the Human Body at a Given Time, t , after Deposition, ORNL/CSD/TM-17 (1976).
- 14) G.G. KILLOUGH, D.E. DUNNING, Jr. and J.C. PLEASANT; INREM II: A Computer Implementation of Recent Models for Estimating the Dose Equivalent to Organs of Man from Inhaled and Ingested Radionuclide, NUREG/CR-0114, ORNL/NUREG/TM-84 (1978).
- 15) S.B. WATSON and M.R. FORD; A User's Manual to the ICRP Code—A Series of Computer Program to Perform Dosimetric Calculations for the ICRP Committee 2 Report, ORNL/TM-6980 (1980).
- 16) 葛城幸雄; 日本における Cs-137 および Sr-90 降下について (I), “海洋と大気の地球化学 (第2集)”, p.496 (1979), 気象研究所, 東京.
- 17) 葛城幸雄; 人工放射性物質, “海洋と大気の地球化学 (第2集)”, p.510 (1979), 気象研究所, 東京.
- 18) ICRP Publication 26; Recommendations of the International Commission on Radiological Protection (1977), Pergamon Press, Oxford.