



**COMITATO NAZIONALE PER LA RICERCA E PER LO SVILUPPO
DELL'ENERGIA NUCLEARE E DELLE ENERGIE ALTERNATIVE**

La contaminazione da plutonio nella dieta e nella popolazione italiana

**G. Cave-Bondi, G. F. Clemente, L. Mancini, S. Merli,
M. Rogo, G. Santori, M. Sgarbazzini, Q. Tardella**





COMITATO NAZIONALE PER LA RICERCA E PER LO SVILUPPO
DELL'ENERGIA NUCLEARE E DELLE ENERGIE ALTERNATIVE

La contaminazione da plutonio nella dieta e nella popolazione italiana

G. Cave-Bondi, G. F. Clemente, L. Mancini, S. Merli,
M. Rogo, G. Santori, M. Sgarbazzini, Q. Tardella

Testo pervenuto nel giugno 1983

I N D I C E

1.	<u>INTRODUZIONE</u>	Pag.	1
2.	<u>CARATTERISTICHE DEL PLUTONIO</u>	"	3
2.1.	Cenni storici	"	3
2.2.	Caratteristiche chimico-fisiche	"	5
2.3.	Usi del Plutonio e sua produzione	"	12
2.4.	Quantità di Plutonio nell'ambiente	"	14
3.	<u>TOSSICOLOGIA DEL PLUTONIO</u>	"	17
3.1.	Metabolismo del Plutonio	"	17
3.2.	Effetti biologici del Plutonio	"	20
4.	<u>METODI DI ANALISI DEL PLUTONIO</u>	"	25
4.1.	Considerazioni generali	"	25
4.2.	Parte sperimentale	"	30
	a) apparecchiature e reattivi	"	33
	b) procedimento adottato	"	36

5.	<u>LIVELLI DI PLUTONIO IN ITALIA</u>	Pag.	51
5.1.	Livelli di Plutonio nei terreni e nei sedi- menti	"	51
5.2.	Livelli di Plutonio nella dieta e nei singo- li alimenti	"	52
5.3.	Livelli di Plutonio nei tessuti autoptici ..	"	60
6.	<u>CONCLUSIONI</u>	"	67
7.	<u>BIBLIOGRAFIA</u>	"	71

Introduzione

I livelli attuali di Plutonio nell'ambiente e nella popolazione debbono essere adeguatamente conosciuti in modo da poter valutare sia i fenomeni che regolano il suo trasferimento dall'ambiente all'uomo che le conseguenze che il rilascio di questo radionuclide (sia accidentale, che programmato durante lo svolgimento dei programmi di sviluppo pacifico dell'energia nucleare) può provocare.

Il Plutonio disperso nell'ambiente provoca una contaminazione che si trasferisce, in parte,

all'uomo, sia per inalazione che per ingestione. Da tali considerazioni di ordine tossicologico ha preso spunto questo lavoro che si prefigge due ampi o biettivi :

- il primo è quello di determinare il contenuto di Plutonio sia nei singoli alimenti che compongono la dieta che nella dieta completa in modo da valu tare il contributo che essi danno alla formazione del carico corporeo da Plutonio;

- il secondo è quello di accumulare dati relativi alle concentrazioni attuali di Plutonio negli or gani della normale popolazione, in funzione di al cuni parametri quali: l'area geografica di appar tenenza, il sesso, l'età, la professione ecc., da ti che sono indispensabili per poter determinare un modello di deposizione nei vari tessuti umani e valutare quindi l'attendibilità delle dosi allo

organo stimate, in caso di contaminazione interna,
dai dati di escrezione.

2. CARATTERISTICHE DEL PLUTONIO

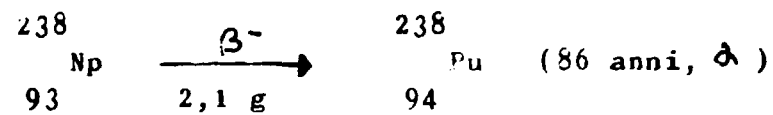
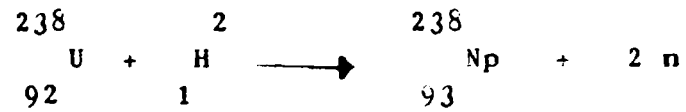
2.1. Cenni storici

Il Plutonio è stato scoperto da un gruppo di ricercatori, coordinato dal Professor GLENN T. SEABORG, dell'Università di California a Berkeley.

Seaborg aveva chiesto ad uno studente A.C. WAHL, di studiare le proprietà chimiche dell'elemento 93 (Nettunio). Durante questa attività di ricerca lo studente assistito dallo stesso Seaborg ed in particolare da J.W. Kennedy, professore del dipartimento di chimica dell'Università di California, produsse per la prima volta il Plutonio bombardando dell'ossido di Uranio (U_3O_8) con deuteroni da 16 MeV nel ciclotrone da 155 centimetri di Ber-

keley nella notte tra il 23 e il 24 febbraio
1941 (27).

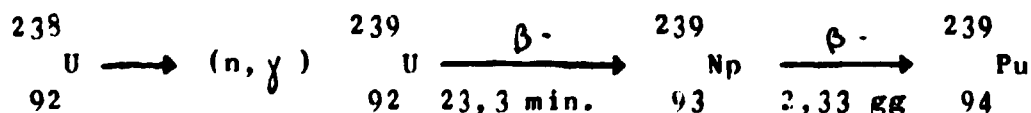
In particolare l'isotopo del Plutonio i-
dentificato aveva numero di massa 238 e la reazione
con cui era stato preparato era la seguente :



La scoperta fu comunicata alla rivista
"Physical Review", in una lettera all'Editor il
quale la custodì segretamente pubblicandola dopo
la guerra, nel 1946 (28).

2.2. Caratteristiche chimico-fisiche

Del Plutonio, elemento chimico di numero atomico 94, sono conosciuti 15 isotopi di peso atomico compreso tra 232 e 246 (tabella 1). Di questi il 239 ($T_{1/2}$ 24.390 anni) è l'isotopo più importante e quello più diffuso nell'ambiente. Esso viene normalmente prodotto partendo dal ^{238}U nei vari tipi di reattori nucleari, funzionanti in ogni parte del mondo, attraverso la seguente reazione :



Dal ^{239}Pu si possono poi formare altri isotopi a numero di massa maggiore per successive reazioni di cattura neutronica del tipo :

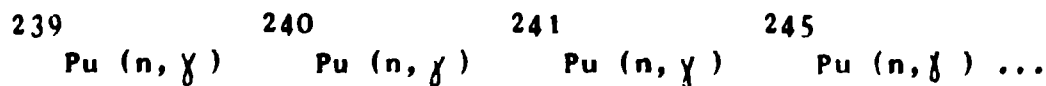
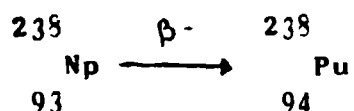
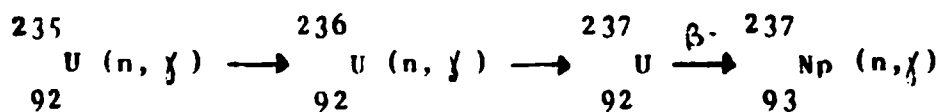


TABELLA 1
ISOTOPI DEL PLUTONIO

ISOTOPO	TEMPO DI DIMEZZAMENTO	ATTIVITA' SPECIFICA	RADIAZIONI PRINCIPALI (MeV)
^{232}Pu	36 min	2,22 $\mu\text{g}/\text{Ci}$	6,59 α
^{233}Pu	20 min	4,48 μg "	6,31 "
^{234}Pu	9,0 ore	11,19 μg "	6,20/6,15 "
^{235}Pu	26 min	1,1 μg "	5,86 "
^{236}Pu	2,85 anni	1,88 μg "	5,77/572 "
^{237}Pu	45,6 giorni	24,5 μg "	5,66 "
^{238}Pu	86,4 anni	57,45 μg "	5,50/5,46 "
^{239}Pu	24.390 anni	16,28 gr "	5,16/5,11 "
^{240}Pu	6.580 anni	4,41 gr "	5,17/5,12 "
^{241}Pu	13,2 anni	-	4,90/4,85 β^-
^{242}Pu	$3,79 \times 10^5$ anni	256,2 gr "	4,90/4,86 α
^{243}Pu	4,98 ore	-	0,58 max β^-
^{244}Pu	$7,6 \times 10^7$ anni	51,81 kg "	4,58 α
^{245}Pu	10,1 ora	-	β^-
^{246}Pu	10,85 ore	-	0,33 max 0,15 max β^-

Altro isotopo importante è l'isotopo ^{238}U ($T_{1/2}^{56,4}$ anni) che è normalmente prodotto attraverso la reazione :



Nominando genericamente il Plutonio si intende normalmente parlare del Plutonio 239 al quale si riferiscono quasi tutti i dati sperimentali relativi sia al comportamento ambientale che alle caratteristiche tossicologiche.

Il Plutonio, classificato nella serie degli Attinidi, può essere considerato un elemento artificiale, essendo la sua presenza in natura irrilevante; infatti nei minerali di Uranio e Torio ne sono state trovate quantità comprese tra $4 \cdot 10^{-14}$ e $7 \cdot 10^{-12}$ g/g di minerale (11).

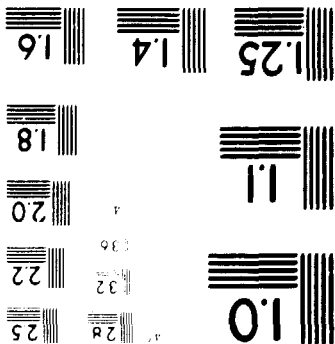
Ciò è comprensibile se si pensa che i valori dei tempi di dimezzamento dei vari isotopi del Plutonio sono compresi tra qualche decina di minuti (^{232}Pu , ^{233}Pu , ^{235}Pu) e 76 milioni di anni (^{244}Pu), quindi comunque molto piccoli rispetto al l'età della terra, per cui debbono ritenersi completamente decaduti. Le piccole quantità presenti in natura (^{239}Pu - ^{240}Pu) potrebbero essersi formati dall' ^{238}U durante la fissione spontanea di quest'ultimo.

La prova che questo è ciò che era realmente accaduto fu data dalla scoperta (24), fatta da un gruppo di scienziati francesi del CEA (Commissariato Francese per l'Energia Atomica), di una reazione nucleare spontanea avvenuta vicino ad Oklo nel Gabon circa 1.500 milioni di anni or sono. In quell'epoca, poichè l' ^{235}U decade sei volte più rapidamente dell' ^{238}U , il rapporto percentuale

$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ era uguale al 3,5% invece che allo 0,72% attuale. Con una concentrazione di ^{235}U così elevata si può manifestare e mantenere una reazione a catena utilizzando come moderatore l'acqua ordinaria.

Verosimilmente in questi depositi molto ricchi di Uranite, una volta saturati di acqua piovana, si instaurò in modo intermittente una reazione a catena la cui criticità dipendeva dalla presenza di una sufficiente quantità d'acqua; il reattore naturale di Oklo fu attivo per un periodo di circa un milione di anni, fino al momento in cui la quantità di ^{235}U , nel frattempo diminuita, non fu più sufficiente a sostenere la reazione. L'energia totale generata dal reattore di Oklo dovette essere dell'ordine di 10.000 Mw all'anno: durante il funzionamento si formarono più di una tonnellata di

MICROCOPY RESOLUTION TEST CHART
NATIONAL BUREAU OF STANDARDS-
STANDARD REFERENCE MATERIAL 1010A
(ANALOGOUS TEST CHART No. 2)



^{239}Pu e circa quattro tonnellate di prodotti di fissione fortemente radioattivi (24).

Del Plutonio sono conosciuti vari stati di ossidazione: Pu^{+3} , Pu (III); Pu^{+4} , Pu (IV); Pu O_2^+ , Pu (V); Pu O_2^{++} , Pu (VI) che possono coesistere, caso unico nel sistema periodico, in particolari condizioni chimico-fisiche (11). Lo stato di ossidazione più stabile è comunque Pu (IV).

Il Plutonio è un elemento che subisce facilmente reazione di idrolisi anche a pH molto acido, questo favorisce la formazione di polimeri colloidali con formazione di complessi vari. Infatti, per soluzioni concentrate dell'ordine 10^{-2} M il polimero comincia a formarsi a pH 1; in soluzioni più diluite 10^{-8} M la formazione di colloidii inizia a pH 2,8 e di aggregati polimerici a pH 7,5.

Studi sperimentali hanno inoltre dimostra-

to che la tendenza all'idrolisi decresce nell'ordine:



E' possibile ostacolare la reazione di idrolisi e, di conseguenza, la formazione di polimeri mediante l'uso di complessanti che danno luogo ad una reazione di competizione con quella di idrolisi.

La costante di equilibrio per una generica reazione di complessazione viene definita come :

$$K_i = \frac{[\overline{\text{MLi}}]}{[\overline{\text{MLi-1}}] [\overline{\text{L}}]}$$

Considerando che la coordinazione di un legante L da parte di un catione metallico M può essere esemplificata con la serie di reazioni successive :



La tendenza alla complessazione per il ^{239}Pu decresce nell'ordine :

$\text{Pu (IV)} > \text{Pu (III)} > \text{Pu (VI)} > \text{Pu (V)}$

Una categoria di complessi molto importante del Plutonio per le ovvie implicazioni tossicologiche, è quella dei complessi chelati, formati da leganti con più di un atomo donatore.

Nel caso del Plutonio e degli altri Attinidi sono solo le molecole organiche con atomi di ossigeno abbastanza basici, che possono essere utili ai fini della chelazione.

2.3. Usi e produzione

Per quanto riguarda gli usi del Plutonio bisogna distinguere tra gli usi del ^{239}Pu e quelli del ^{238}Pu . Infatti, il ^{239}Pu , essendo materiale fis

sile, è impiegato in larga quantità sia per scopi pacifici (produzione di energia elettrica) che bellici.

Per il ^{238}Pu , prodotto non fissile, gli usi sono limitati alla produzione di generatori elettrici ad alta autonomia (S.N.A.P.) e di stimolatori cardiaci (PACE-MAKER).

Per quanto riguarda la produzione dei due isotopi è stato stimato che gli USA hanno usato 20 tonnellate di ^{239}Pu fino al 1980 e per il futuro è prevista una produzione di 60 tonnellate di ^{239}Pu nel decennio 1980/1990 e di 80 tonnellate nel decennio 1990/2000.

Per quanto concerne il ^{238}Pu ne sono stati prodotti 10-20 Kg fino al 1980, la stima al 2000 è di alcune tonnellate, prevedendo che in aggiunta ai bisogni per i programmi spaziali vi sia un grosso incremento degli usi medici (16).

2.4. Quantità di Plutonio nell'ambiente

E' noto che negli ultimi 30 anni considerevoli quantità di Plutonio sono state rilasciate nell'ambiente. Le fonti principali di tali contaminazioni sono riportate in modo riassuntivo in tabella 2 (10); da tali dati è evidente che il maggior rilascio di Plutonio è imputabile alle esplosioni nucleari ed in minima parte ad altre fonti, quali scarichi di impianti nucleari o incidenti di varia natura.

Attualmente si calcola che siano presenti nell'ambiente circa 18,5 Peta Bq (equivalenti a circa 8.000 Kg) di $^{239, 240}\text{Pu}$, distribuiti in massima parte nell'emisfero nord, e circa 0,518 Tera Bq (equivalenti a circa 850 g) di ^{238}Pu in massima parte nell'emisfero sud; quest'ultimo imputabile quasi totalmente al rientro accidentale nell'atmosfera, ne'

TABELLA 2
QUANTITA' DI PLUTONIO DISPERSE NELL'AMBIENTE

CAUSA	DISTRIBUZIONE	%	ATTIV. TOT.(Bq)	NOTE
Esplosioni nucleari (1945-1974)	Locale (emisfero Nord)	25	$1,6 \times 10^{16}$	^{239}Pu (60%)
	Totale	75		^{240}Pu (40%)
Ritorno satellite (1964)	Totale (emisfero sud)		$6,3 \times 10^{14}$	^{238}Pu
Incidente a Thule (Groenlandia 1968)	Sedimenti marini locali, suolo		$9,2 \times 10^{11}$	composizione non nota in quanto trattasi di bombe
Incidente a Palomares (Spagna 1966)	Locale (suolo)			^{239}Pu
Incidente a Rocky Flats, Colorado (1957-1958-1968, incidenti, per d _{ite} olio)	Locale	{ suolo	28	$5,2 \times 10^{11}$
		{ sottosuolo	71	
		{ atmosfera	0,3	
		{ corsi d'acqua s sup.	0,7	
Mound, Laboratorio (Ohio, rilascio continuo controllato)	Locale	{ atmosfera	6	$2,4 \times 10^{11}$
		{ fiumi	8	
		{ acqua		
		{ suolo		

15

segue Tab. 2

Los Alamos, Laboratori Scientifici (New Messico, rilascio continuo controllato)	Locale {	atmosfera	81	$5,9 \times 10^{10}$	
		suolo	19		
Savannah River (Georgia, rilascio continuo controllato)	Locale {	atmosfera	69	$1,9 \times 10^{11}$	circa 2/3 di ^{238}Pu
		suolo	31		
Windscale (UK) dal 1955, rilascio di rifiuti di media attività	Locale	ambiente		1×10^{15}	^{241}Am (64%) ^{239}Pu } (36%) ^{240}Pu }
		acquatico			
					^{238}Pu tracce

- 16 -

Riferimento EPRI - EA - 4 - 3 - SR. Special Report, Agosto 1976 (10).

l'aprile del 1964, di un satellite americano contenente un generatore elettrico a ^{238}Pu .

Queste quantità, non elevate se si considera la vastità dell'ambiente in cui sono state disperse, provocano una contaminazione ambientale molto bassa.

3. TOSSICOLOGIA DEL PLUTONIO

3.1. Metabolismo del Plutonio

Il Plutonio è generalmente considerato uno tra i più tossici elementi radioattivi conosciuti dall'uomo, anche se alcuni radionuclidi transplutonici sono, per unità di massa, più tossici.

Parlare di tossicità chimica riferendosi al Plutonio, non ha generalmente un gran significato in quanto gli effetti radiotossici sono evidenti

a concentrazioni decisamente inferiori a quelle che possono indurre una qualche tossicità chimica dovuta al Plutonio come metallo pesante (11).

Il Plutonio disperso nell'ambiente può entrare nel corpo umano attraverso varie vie, quali l'inalazione, l'ingestione, le ferite e, in quantità praticamente trascurabile, attraverso la cute integra.

Le vie principali di introduzione sono comunque l'inalazione e l'ingestione; alcuni parametri quali la forma chimico-fisica del Plutonio e le dimensioni delle particelle a cui è associato ricoprono un ruolo fondamentale nei meccanismi di assorbimento nell'uomo.

In particolare per quanto riguarda il Plutonio inalato molto importante è la dimensione della particella. In generale le particelle più grandi (2-10 μm) si depositano nel tratto nasale e questa

tendenza decresce col decrescere delle dimensioni della particella. Per particelle più piccole (0,2-3 μm) c'è un incremento della deposizione nella regione alveolare. Per quanto concerne l'ingestione c'è da dire che il coefficiente di assorbimento gastrointestinale è molto basso in quanto i composti del Plutonio più comuni quali, gli ossidi, gli idrossidi e i prodotti di idrolisi solubili, sono insolubili nei liquidi intestinali.

Il Plutonio, una volta entrato nel circolo ematico, si trasferisce principalmente nell'osso e nel fegato e, in minima parte, negli altri organi. Per il calcolo della distribuzione ai vari organi si assume che il Plutonio entrato nel circolo ematico viene depositato per il 45% nell'osso ed il 45% nel fegato. Il rimanente 10% si distribuisce negli altri organi o viene escreto. In realtà questo potrebbe non essere interamente vero in quanto i da

ti raccolti sull'uomo e supportati da studi fatti su animali, mostrano una significativa discordanza da questi valori (24).

3.2. Effetti biologici del Plutonio

Gli effetti del Plutonio possono manifestarsi precocemente, (effetti precoci) oppure richiedere un lungo intervallo di tempo prima di rendersi evidenti, (effetti tardivi). Per alcuni di essi, quali gli effetti precoci, esiste poi una proporzionalità diretta tra entità dell'effetto e dose di radiazioni (effetti non stocastici): per altri effetti, quali gli effetti tardivi, si ha invece una relazione tra la dose di radiazioni e la frequenza di comparsa dell'effetto (effetti stocastici).

Effetti stocastici sono: le mutazioni ge-

niche, le induzioni di leucemia e di neoplasie solide.

Per quanto riguarda gli effetti precoci, studi sulla tossicità acuta degli elementi transuranici non sono numerosi ed essi hanno scarsa rilevanza negli studi radioprotezionistici.

Infatti la D.L. 50/30 giorni (dose letale al 50% in 30 giorni) per inalazione di ^{239}Pu estrapolata all'uomo da studi sui topi è stata stimata in 50 mg pari a 110 KBq (1); è quindi molto difficile concepire una situazione in cui l'uomo possa inalare una simile quantità di Plutonio. La morte nei topi esposti è causata da un massivo edema polmonare o da emorragia polmonare.

Le informazioni disponibili sugli effetti tardivi nell'uomo dovute agli elementi transuranici sono estremamente limitate e sono state tutte ottenute su lavoratori che hanno subito contaminazioni

esterne da Plutonio. I pochi dati disponibili sono per lo più di difficile interpretazione anche perchè molti lavoratori sono stati esposti, oltre che al Plutonio, alle radiazioni e contaminazioni esterne da qualche altro radionuclide. I soli studi (19) che hanno dato qualche risultato positivo, anche se discutibili, sono dovuti ad indagini su effetti citogenetici; sono state infatti evidenziate aberrazioni cromosomiche per alcuni lavoratori esposti a contaminazione interna da Plutonio. E' comunque da tenere presente sia che il fondo genico prima della esposizione era praticamente sconosciuto, sia che gli effetti osservati potrebbero essere stati provocati anche dall'esposizione ad altri agenti tossici; d'altronde alcuni studi recenti (6) paiono mettere in correlazione la frequenza di aberrazioni strutturali con la quantità di Plutonio in circolo nel sangue.

Il maggior effetto che può essere prodotto dal Plutonio nell'uomo è la formazione di tumori solidi e del sangue (è da tenere presente che non è possibile distinguere clinicamente i tumori prodotti da radiazione da quelli causati da altri fattori cancerogeni e che comunque, fino ad oggi, non è stato ancora possibile osservare sicuramente un solo caso di tumore in un soggetto umano derivante da una avvenuta contaminazione da Plutonio.

In pratica effetti patologici gravi quali gli effetti cancerogeni attribuibili al Plutonio sono stati osservati direttamente solo su animali e tali dati estrapolati all'uomo, anche se l'estrapolazione all'uomo dei risultati della tossicità del Plutonio ottenuti sugli animali è di dubbia validità in molti casi.

I dati ottenuti con esperimenti su animali devono invece essere considerati di enorme utilità

tà per capire i meccanismi di danno da radiazioni ed in particolare per costruire le curve dose-effetto da cui possono essere poi calcolati i coefficienti di rischio anche per l'uomo.

Questi coefficienti per l'uomo relativi alle contaminazioni interne da Plutonio sono stati ricavati da estrapolazioni ottenute da curve dose-effetto ottenute sia su animali, sia utilizzando ad esempio i dati relativi a tumori prodotti su gruppi di popolazione umana dalla contaminazione interna causata da qualche altro radionuclide quali gli isotopi del Torio o del Radio (2). Gli unici studi effettuati sull'uomo per quanto riguarda il Plutonio sono quelli relativi a studi di escrezione e di distribuzione nei vari organi.

Langham ed altri (18) hanno, infatti, contaminato dodici soggetti ospedalizzati per gravi malattie con circa 5 μ g di ^{239}Pu iniettato endovena

come soluzione citrica ed hanno misurato l'attività escreta, per via urinaria e fecale, per circa 200 giorni misurando anche l'attività di Plutonio in alcuni organi di soggetti venuti a morte per cause non legate alla contaminazione subita. Questi risultati di distribuzione negli organi umani sono in discreto accordo con quelli ottenuti con studi su topi, ratti e cani. Una leggera discordanza sembra esserci per il fegato. Il Plutonio infatti sembra essere ritenuto nel fegato umano in maniera maggiore che non negli animali (18).

4. METODI DI ANALISI DEL PLUTONIO

4.1. Considerazioni generali

Le quantità di Plutonio rilasciate nell'ambiente dai test nucleari provocano una diffusa con-

taminazione ambientale, variabile a seconda del com
parto ambientale considerato, ma comunque molto bas
sa. Nella tabella 3 vengono riportati i livelli me-
di di ^{239, 240}Pu riscontrati attualmente in aria,
acqua e suolo nell'emisfero Nord (10).

Se si considera poi che il Plutonio è po-
co mobile nell'ambiente e che quindi i coefficienti
di trasferimento dall'ambiente agli organismi vege-
tali ed animali sono estremamente ridotti, ne conse-
gue che la quantità di Plutonio in essi presente, e
nella biosfera, può essere considerata minima. Per
tale motivo i procedimenti analitici per la determi-
nazione del Plutonio normalmente presente in campio-
ni ambientali o biologici debbono essere particolar-
mente accurati e sensibili. Esistono in questo ambi-
to alcuni problemi che richiedono un esame attento
ed ai quali vale la pena di accennare; essi sono con
nessi in primo luogo al prelievo ed alla conserva-

TABELLA 3
LIVELLI TIPICI DI 239 , 240 Pu IN ARIA, ACQUA E SUOLO

CAMPIONE	CONCENTRAZIONI
Aria (U.S.A.)	3,7 x 10 ⁻⁶ mBq/gr
Acqua di mare (globale)	1,85 x 10 ⁻⁵ " "
Acqua da bere (U.S.A.)	1,11 x 10 ⁻⁵ " "
Suolo (primi 5 cm) (U.S.A.)	1,11 " " *

* Peso secco

Rif.: Comar C.L., Plutonium; Facts and Inferences,
 EPRI EA-43-SR (1976) (10).

zione dei campioni (30), operazioni che debbono essere considerate parti importanti della determinazione di un radionuclide, in quanto possono avere un effetto marcato sul risultato finale.

Una particolare attenzione va rivolta al prelievo di aliquote di campioni, o di campioni, sufficientemente omogenei e statisticamente rappresentativi rispettivamente o dell'intero campione o dell'insieme dei campioni considerati.

Questo vale in particolare nel campionamento degli organi umani dove spesso risulta impossibile il prelevamento dell'intero organo.

Anche il trattamento chimico richiede una attenzione particolare, poichè serve ad isolare il Plutonio dalla matrice e dai radiointerferenti al fine di misurarlo adeguatamente. Data la complessità di questo trattamento, è bene accennare ad alcuni aspetti caratteristici delle metodologie analitiche

comunemente utilizzate.

Il procedimento radiochimico di determina zione del Plutonio (12) si sviluppa in generale attraverso tre stadi obbligati che sono nell'ordine :

a) distruzione della matrice organica mediante ince nerimento in muffola ad alta temperatura (500°C) seguita da mineralizzazione umida con acidi con centrati (HNO_3 ; HClO_4).

b) Isolamento chimico del Plutonio, ottenibile mediante scambio ionico (anionico) su resine o con estrazione mediante opportuni estraenti organici (ammine terziarie, derivati dell'acido fosforico o della fosfina, chetoni ad alto peso molecolare ecc.). Questo stadiodi purificazione viene generalmente preceduto dalla stabilizzazione della va lenza del Plutonio a IV per ossido-riduzione

(Fe Cl_2 ; Na NO_2), al fine di aumentare l'ad-
sorbimento sulla resina o l'estrazione da parte

dei solventi. Viceversa l'eluizione o la riestrazione del Plutonio vengono ottenuti mediante riduzione a Pu (III) (I^- , SO_3^{--}).

- c) Elettrodeposizione del Plutonio allo scopo di preparare una sorgente priva di residui solidi e idonea, quanto più possibile, ad ottenere una buona misura di attività alfa (12).

4.2. Parte sperimentale

Come accennato i problemi più importanti relativi alla determinazione del Plutonio in campioni ambientali e biologici derivano principalmente dalle basse concentrazioni di Plutonio che sono di norma presenti in tali campioni. La determinazione di bassi livelli di Plutonio deve quindi basarsi su

un metodo che deve tenere nella debita considerazione i seguenti fattori critici :

- a) separazione selettiva del Plutonio presente nel campione;
- b) la resa chimica globale del metodo di separazione del Plutonio;
- c) l'attività delle prove di confronto con i soli reattivi
- d) la preparazione della sorgente di conteggio;
- e) le caratteristiche elettroniche del sistema di misura.

E' bene ricordare come il grado di isolamento del Plutonio sia ovviamente importante in quanto influisce sulla presenza o meno nello spettro alfa di altri radionuclidi che possono interferire con gli isotopi del Plutonio che si vogliono misurare o con l'isotopo usato come indice di resa. Nella tabella 4 sono riportati per vari isotopi del Plutonio gli interferenti più probabili e i valori delle ener

TABELLA 4
RADIONUCLIDI INTERFERENTI DI ALCUNI ISOTOPI DEL PLUTONIO

ISOTOPI DEL PLUTONIO	ENERGIA ALFA (MeV)	RADIONUCLIDI INTERFERENTI	ENERGIA ALFA (MeV)
^{236}Pu	5,77 (69%)	^{224}Ra	5,68 (94%)
	5,72 (31%)		5,45 (6%)
^{238}Pu	5,50 (72%)	^{210}Po	5,31 (100%)
	5,46 (28%)	^{228}Th	5,42 (71%)
^{239}Pu	5,15 (72%) 5,13 (17%) 5,10 (11%)	^{241}Am	5,48 (85%)
			5,44 (13%)
		^{210}Po	5,31 (100%)
^{240}Pu	5,16 (76%)		
	5,12 (24%)		
^{242}Pu	4,90 (74%)	^{234}U	4,77 (73%)
	4,85 (26%)		4,71 (27%)

gie delle particelle alfa sia degli isotopi del Plu
tonio che degli interferenti.

a) Apparecchiature e reattivi

- Apparecchiature: colonne di vetro per cromato-
grafia aventi un diametro interno di un centimetro
e un'altezza di 30 cm.

- Apparecchiatura per elettrodeposizione in cor-
rente continua da 12 V. di fondo scala.

- Celle di elettrodeposizione costituite da un
cilindro di perspex, avente un diametro interno di
2,4 cm ed un'altezza di 15 cm., unito mediante una
impanatura a vite con un fondo di acciaio inossida-
bile, che costituisce il supporto del catodo.

Il catodo è un dischetto di acciaio inos-
sidabile lucidato a specchio, di 2 cm di diametro;
la superficie esposta all'elettrolita è pari a
220 mm². L'anodo è un filo di platino opportunamen-

te sagomato, immerso nell'elettrolita.

- Pipette e micropipette graduate, tarate pesando i rispettivi volumi di acqua prelevata (media di cinque valori). Le oscillazioni di ogni pesata dalla media sono dell'ordine del 2-3%.

- Catena per spettrometria alfa costituita da: rivelatore ORTEC (300 mm^2 $300 \mu\text{m}$, 24 KeV) di silicio a barriera superficiale montato in una camera a vuoto; preamplificatore ORTEC-109 A; Detector Bias Supply ORTEC-428; NIM Standard Bins e Power Supply ORTEC 401/402, Spectroscopy Amplifier ORTEC-451; Biased Amplifier ORTEC-408; Pulse stretcher ORTEC-411; Precision Pulse Generator ORTEC-419, Convertitore 1024 canali LABEN-8112; Spectroscopio LABEN NIM 8001; Timing Control LABEN-8190; Registratore X-Y Huston Instruments (Bausch e Lomb) 2000 Recorder; Stampante Hewlett Packard 5055 a Digital Recorder.

- Reagenti e soluzioni

Tri - n - ottilfosfina ossido (TOPO), Eastman Organic Chemicals, USA.

Microtene 710 (polietilene microporoso, 50-100 mesh)

Columbia Organic Chemicals, USA.

Soluzioni di $^{239,240}\text{Pu}$, Amersham Atomic Centre, Inghilterra; attività di ^{239}Pu : 1,173 uCi \pm 2,3% in 5,0462 gr di soluzione; attività di ^{240}Pu = 3,62% dell'attività del ^{239}Pu ; attività del $^{238}\text{Pu} + ^{241}\text{Am}$ = 0,5% dell'attività di ^{239}Pu .

Soluzione di ^{242}Pu , U.S. Energy Research and Development Administration, USA; attività di ^{242}Pu 7.000 dpm in 0,835 gr di soluzione; l'attività di ^{242}Pu è pari al 99,955% dell'attività alfa totale
Reagenti di tipo analitico.

b) Procedimento adottato

1) Pretrattamento dei campioni (mineralizzazione)

I campioni da analizzare, con la sola eccezione dei campioni di osso, vengono liofilizzati per rimuovere l'eccesso di H_2O . L'osso viene essiccato per 24 ore a $100^{\circ}C$. Vengono quindi posti in capsule di porcellana e introdotti in muffola per l'incenerimento. La temperatura della muffola viene portata e mantenuta a $150^{\circ}C$ per 24 ore, quindi alza ta fino a $500^{\circ}C$ con aumenti di $50^{\circ}C$ in modo da raggiungere i $500^{\circ}C$ nell'arco di 24 ore e mantenendola poi per altre 24 ore a tale temperatura. Il residuo viene trattato con HNO_3 concentrato a caldo e quindi nuovamente incenerito in muffola a $500^{\circ}C$ per dodici ore.

I trattamenti con HNO_3 si ripetono generalmente 2-3 volte e comunque fino a totale scomparsa del residuo organico. Si scioglie quindi il tut-

to in HNO_3 4M.

A volte, in special modo per i campioni di polmone, la soluzione non è limpida, per la presenza di sali insolubili, probabilmente silicati e fosfati. In tal caso la soluzione deve essere filtrata ed il residuo rimasto sul filtro trattato con $\text{HCl} + \text{HF}$, per la completa insolubilizzazione riunendolo successivamente al liquido limpido ottenuto con la precedente filtrazione.

2) Isolamento del Plutonio

a) Osso e alimenti

La soluzione proveniente dalla mineralizzazione viene diluita in 1000 cc di HNO_3 4M a caldo ed agitando. Si aggiunge quindi 1 cc della soluzione di ^{242}Pu come indicatore di resa, alla soluzione limpida si aggiunge 1 gr di FeCl_2 agitando per 15' quindi 3 gr di NaNO_2 agitando nuovamente per 20-30'.

Si procede poi all'estrazione in batch del Plutonio con una miscela estraente composta da 3 gr di microtene supportanti 2 cc di TOPO 0,3M in cicloesano. Si agita poi per 60'.

Si raccoglie su un imbuto di Buchner munito di filtro rapido la miscela estraente e si trasferisce in una colonna di vetro aiutandosi con un getto di HNO_3 4M.

b) Fegato, polmoni, reni, milza

La soluzione proveniente dalla mineralizzazione viene diluita con 200 cc di HNO_3 4M a caldo ed agitando. Si aggiunge quindi 1 cc della soluzione di ^{242}Pu come indicatore di resa. Alla soluzione limpida si aggiungono 200 mg di FeCl_2 agitando per 15' quindi 600 mg di NaNO_2 agitando per 20/30'. La soluzione si percola attraverso una colonna di vetro, contenente 3 gr di microtene supportanti 2 cc

di TOPO 0,2 M in cicloesano condizionati con HNO_3 4M alla velocità di flusso pari a 0,2-0,5 cc/minuto.

Da questo punto le analisi per l'osso (a) e per gli altri campioni (b) procedono allo stesso modo. La colonna viene lavata con 50 cc di HNO_3 4M ad una velocità di flusso di 0,5 cc/minuto ed infine il Plutonio viene eluito con 80 cc di una soluzione 6M di HCl e 0,02 M in HI ad un flusso di 0,25 cc/minuto. L'eluato si manda a secco aggiungendo qualche goccia di HNO_3 concentrato per eliminare lo eccesso di iodio eventualmente rimasto.

3) Preparazione delle sorgenti

Il residuo proveniente dal trattamento di estrazione del Plutonio si solubilizza con 0,5 cc di H_2SO_4 concentrato a caldo per 10', si aggiungono 3 cc di H_2O e 4 gocce di rosso di metile (1%) portando al viraggio con NH_4OH concentrato, sotto agita-

zione. Si trasferisce la soluzione nella cella di elettrodeposizione e si lava il bicchiere con piccoli volumi di H_2SO_4 diluito (1:99) per un totale di 6 cc, che sono trasferiti nella cella. Si porta a viraggio nuovamente con $NH_4 OH$ diluito (1:9), sotto agitazione, quindi di nuovo con H_2SO_4 diluito (1:9) fino a color rosa persistente. L'elettrodeposizione viene effettuata per sei ore a 600 mA. Un minuto prima di interrompere la corrente si aggiungono 10 cc di $NH_4 OH$ diluito (1:9). Il disco di acciaio elettrodeposto viene fatto asciugare all'aria, dopo averlo lavato con acqua distillata e si sottopone quindi a spettrometria alfa.

4) Valutazione del metodo adottato

Il procedimento da noi adottato soddisfa completamente tutti quei parametri che sono importanti per una buona determinazione di Plutonio a bassi

livelli nei campioni biologici.

La resa chimica, il basso valore dei bianchi, che determina la minima quantità rivelabile di Plutonio, ed i fattori di decontaminazione da altri radionuclidi sono perfettamente comparabili con quelli riportati da metodi analoghi usati in altri laboratori per l'esecuzione di simili programmi di ricerca.

Infatti come si può vedere dalla tabella 5 l'attività dei bianchi è sufficientemente bassa e permette la determinazione del Plutonio a livello di qualche frazione di milliBq.

Tale attività comprende sia l'attività del Plutonio contenuta nei reagenti, che il fondo del sistema di misura nell'intervallo di energia considerata per il Plutonio.

La tabella 6 mostra le rese medie finali ottenute su uno o più campioni di origine biologica;

TABELLA 5
 "VALORI DI BIANCO" TROVATI NEI REAGENTI USATI PER IL PROCEDIMENTO
 ANALITICO RIFERITI ALLE QUANTITA' DI CAMPIONE ANALIZZATO

CAMPIONI	239,240 Pu (mBq _± 26)	238 Pu (mBq _± 26)
SINGOLI ALIMENTI	0,148 ± 0,048	0,074 ± 0,029
TESSUTI UMANI MOLLI ED OSSO	0,185 ± 0,040	0,111 ± 0,040

TABELLA 6
RESA CHIMICA DI PLUTONIO IN ALCUNI TESSUTI UMANI E NEI SINGOLI ALIMENTI

CAMPIONI	PESO DEI CAMPIONI (FRESCO)	N° DEI CAMPIONI	RESA MEDIA (% \pm 2 σ)
OSSO	200 gr	10	81,5 \pm 22.6
POLMONE	200 gr	6	85,4 \pm 16.4
FEGATO	200 gr	6	76,3 \pm 22.9
RENE	50 gr	6	84,7 \pm 9.5
MILZA	50 gr	6	84,7 \pm 17.6
SINGOLI ALIMENTI	2 - 10 kg	6	79,4 \pm 11.4

tale resa è stata controllata per ogni determinazio
ne con aggiunta di ^{242}Pu come rivelatore di resa.
Nella tabella 7 vengono riportati i fattori di decon
taminazione di alcuni alfa emettitori interferenti
con il Plutonio relativi al metodo descritto (31).

I più bassi valori sono quelli del Polonio
e del Torio, tuttavia una doppia estrazione garanti
sce la quasi totale purificazione del Plutonio da
questi ultimi.

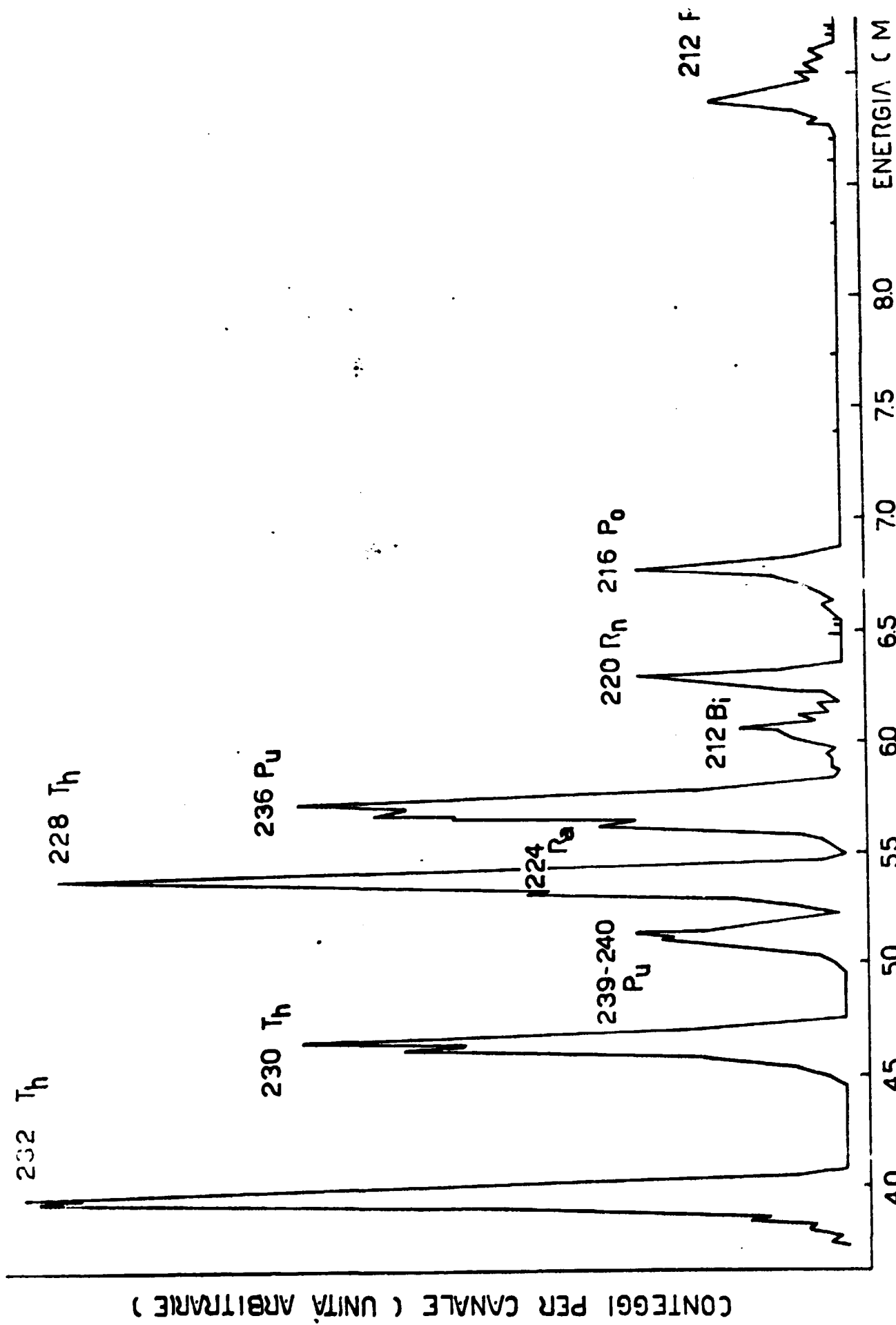
L'attività finale viene misurata per
spettrometria alfa, con un rivelatore allo stato so
lido da 300 mm^2 di area, la cui risoluzione, calco-
lata sull'intervallo di energia corrispondente a ne
tà altezza dei picchi, è di circa 40 KeV con
una efficienza di conteggio di circa il 30%.

Le figure 1,2,3,4,5 riportano alcuni spet
tri alfa da campioni da noi analizzati.

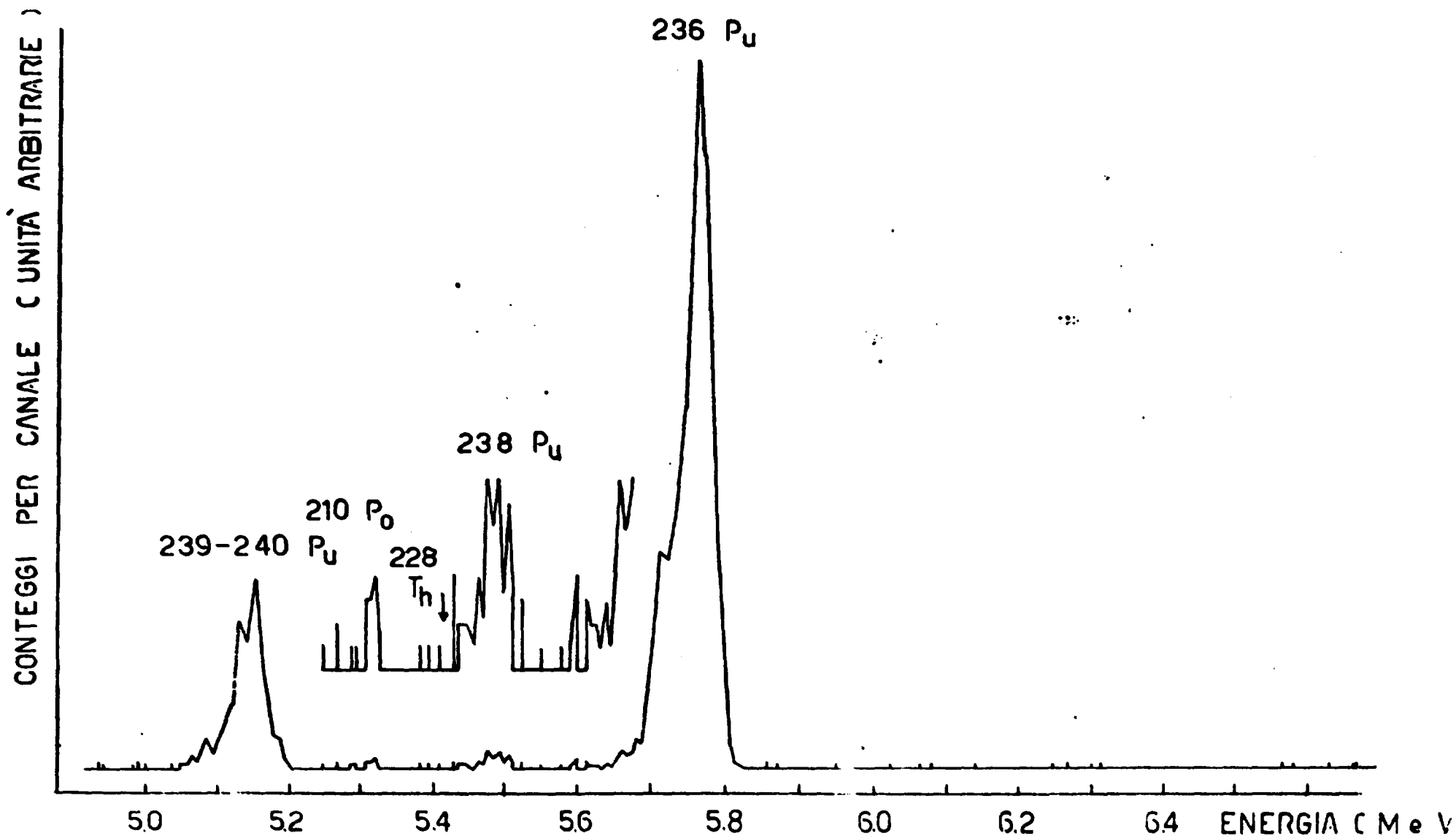
TABELLA 7
FATTORI DI DECONTAMINAZIONE DA ALCUNI RADIONUCLIDI ALFA EMETTITORI

RADIONUCLIDI	FATTORI DI DECONTAMINAZIONE
RADIO	1×10^4
AMERICIO	4×10^3
CURIO	4×10^3
PROTOATTINIO	2×10^3
URANIO	6×10^2
NEPTUNIO	3×10^2
TORIO	1×10^2
POLONIO	3×10

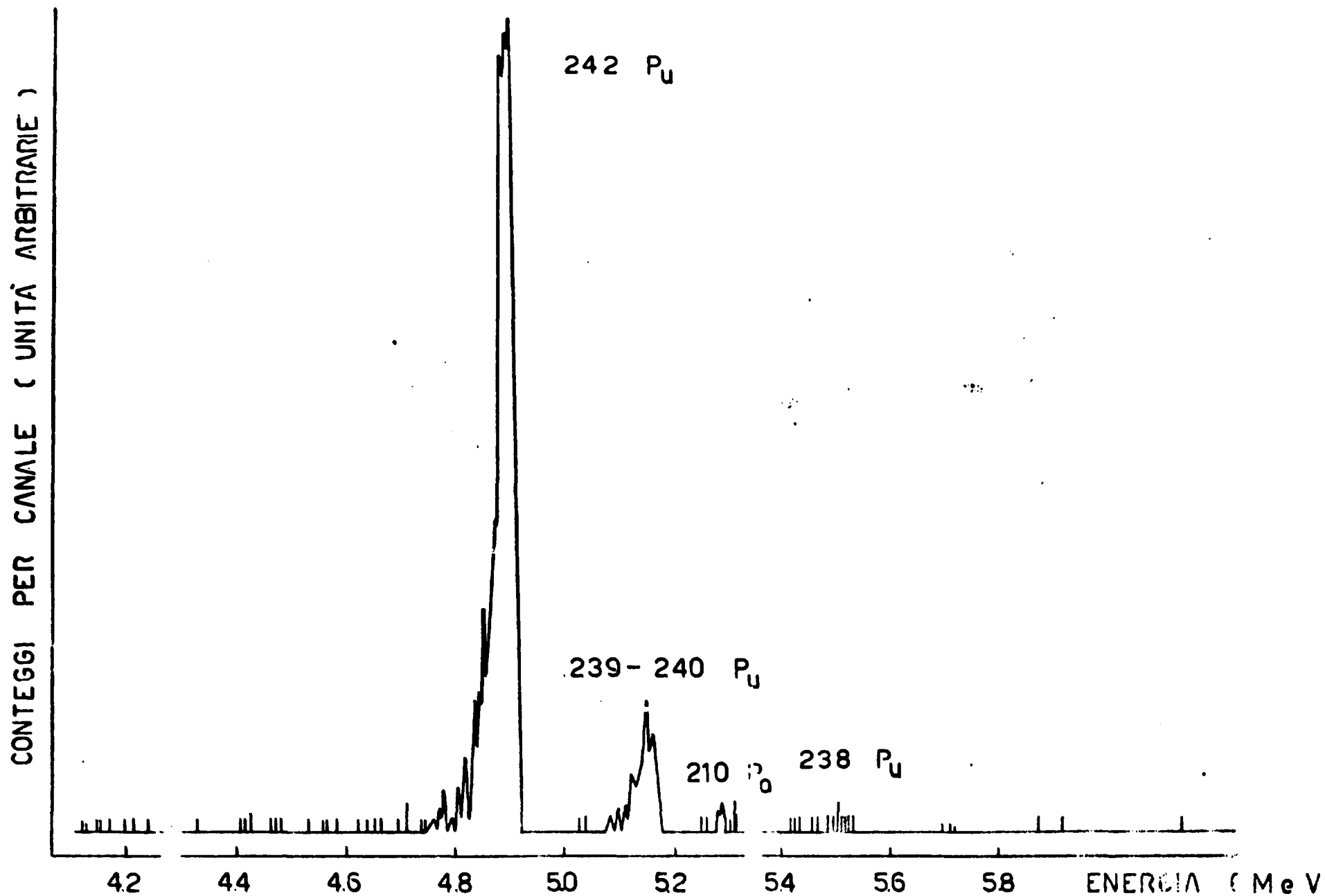
C.Testa, G.Santori (1972). "Un metodo sensibile per la determinazione di bassi livelli di Plutonio nelle urine di lavoratori esposti professionalmente". Giornale di Fisica Sanitaria e Radioprotezione 16,1 (20).



SPETTRO ALFA DA UN CAMPIONE DI SEDIMENTO (CENTO GRAMMI DI PESO SECCO) DOPO
 UNA SOLA ESTRAZIONE DEL PLUTONIO CON T.O.D.

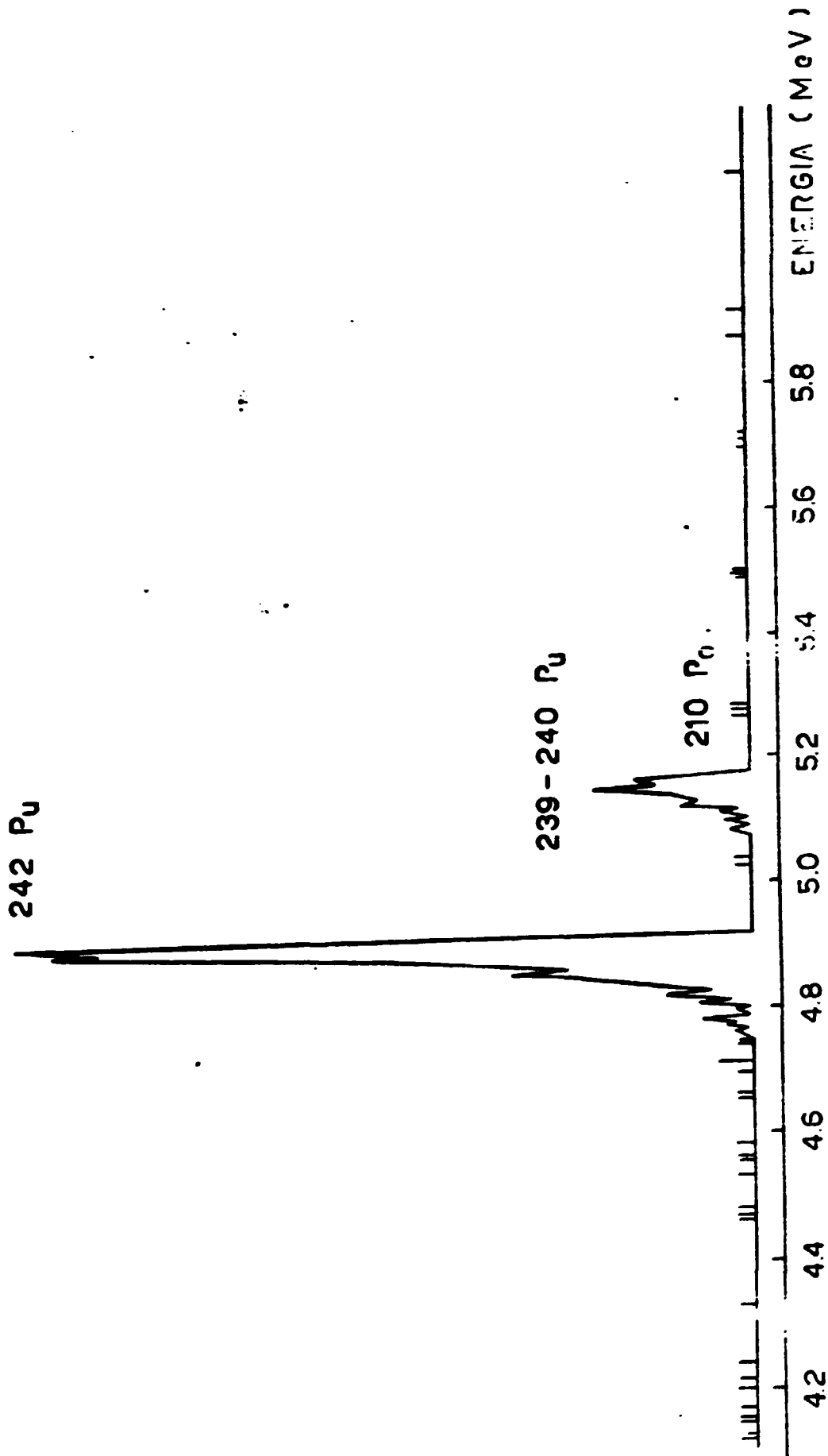


SPETTRO ALFA DA UN CAMPIONE DI SEDIMENTO (CENTO GRAMMI DI PESO SECCO) DOPO DUE SUCCESSIVE ESTRAZIONI DAL PLUTONIO CON TOPO.

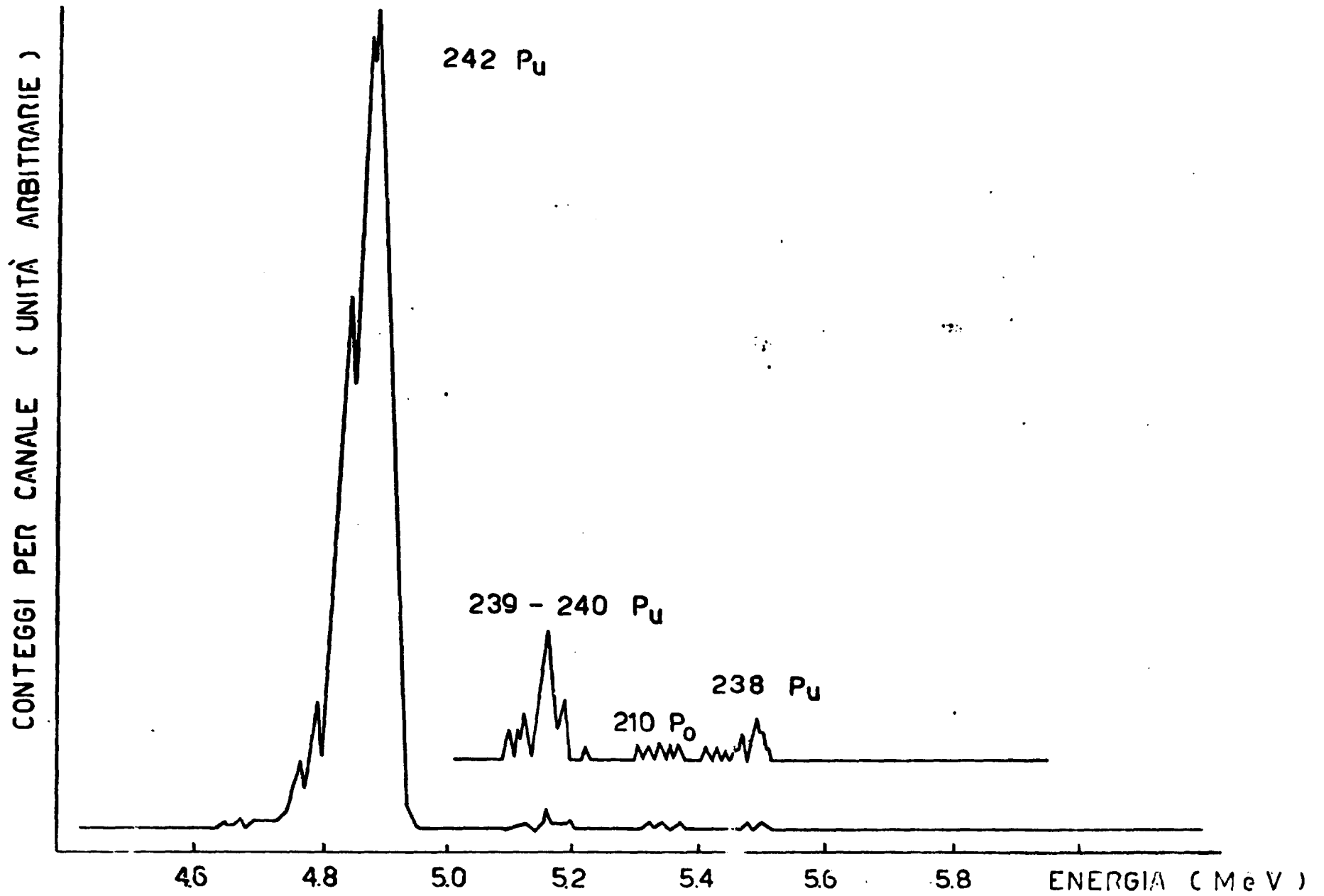


SPETTRO ALFA DA UN CAMPIONE DI PESCE (NASELLO) (TRECENTO GRAMMI DI PESO SECCO) DOPO DUE SUCCESSIVE ESTRAZIONI DEL PLUTONIO CON DOPPO.

CONTEGGI PER CANALE (UNITA' ARBITRARIE)



SPETTRO ALFA DA UN CAMPIONE DI FEGATO UMANO DOPO UNA SINGOLA ESTRAZIONE
CON TOR



SPETTRO ALFA DA UN CAMPIONE DI DIETA (1 Kg DI PESO FRESCO) DOPO 2

5. LIVELLI DI PLUTONIO IN ITALIA

5.1. Livelli di Plutonio nei terreni e nei sedimenti

In tabella 3 abbiamo riportato i livelli tipici di Plutonio in aria, acqua di mare, acqua da bere e suolo riferiti alla situazione U.S.A. Per quanto concerne la situazione in Italia i dati riportati in letteratura sono molto scarsi e principalmente riferiti ai suoli ed ai sedimenti.

Per il contenuto di Plutonio nei suoli, studi recenti (7,9) riportano valori compresi fra 59,2 e 229,4 mBq/kg con un valore medio di $114,3 \pm 25,9$ mBq/kg; tali valori sono riferiti a terreni disturbati (coltivati).

Nei terreni indisturbati i valori cambiano in funzione della profondità del campionamento. Nei primi 5 cm sono stati trovati valori compresi tra 392,20 e 1.228,4 mBq/kg. con un valore medio di

791,8 \pm 151,3 mBq/kg; ad una profondità maggiore di 5 cm vengono riportati valori compresi tra 81,4 e 407 mBq/kg con un valore medio di 225,7 \pm 55,3 mBq/kg.

Per i sedimenti vengono riportati i dati di Triulzi e collaboratori (34) riguardanti il contenuto di Plutonio in campioni prelevati in punti diversi del golfo di Taranto. La tabella 8 riporta tali valori in funzione della distribuzione verticale.

5.2. Livelli di Plutonio nella dieta e in alcuni singoli alimenti

Al fine di valutare in Italia sia l'ingestione di Plutonio che il suo contributo alla formazione del carico corporeo, sono state analizzate al

TABELLA 8
 DISTRIBUZIONE VERTICALE DEL $^{239,240}\text{Pu}$ IN SEDIMENTI MARINI RACCOLTI NEL
 GOLFO DI TARANTO

PROFONDITA'	$^{239,240}\text{Pu}$ (mBq/kg di peso secco)	
	ST. 2/A	ST. 2/B
0 - 6	388,5	643,8
6 - 10	432,9	858,4
10 - 15	251,2	506,9
15 - 30	29,6	421,8
30 - 40	-	229,4

C.Triulzi, A.Delle Site, V.Marchionni. " $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{238}Pu Seawater, Marine Organisms and Sediments of Taranto gulf (Ionian sea)". Esturvine, Coastal an shelf Science (1982) 15, 109-114.

cune diete che possono essere considerate caratteristiche della normale popolazione italiana. La raccolta è stata organizzata in modo da avere campioni rappresentativi dei consumi di alimenti e bevande di gruppi di popolazione abitanti in zone aventi caratteristiche geografiche e socio-economiche diverse e che possano quindi essere prese come abbastanza rappresentative dei consumi alimentari nazionali.

Sono state inoltre analizzati alcuni alimenti presi singolarmente in modo da poter valutare i vari contributi che essi danno alla dieta completa ed individuare eventualmente alimenti concentratori di Plutonio. Le tabelle 9 e 10 riportano i dati riguardanti il contenuto di Plutonio nella dieta completa ed in alcuni alimenti presi singolarmente. Dai dati riferiti alla dieta completa, tabella 9, si può calcolare che l'ingestione annua di Plutonio, per la popolazione italiana, considerando una inge-

TABELLA 9
 $^{239,240}\text{Pu}$ CONTENUTO NELLA DIETA ITALIANA

CAMPIONE	ANNO DEL CAMPIONAMENTO	ZONA DEL CAMPIONAMENTO	CONCENTRAZIONE DI $^{239,240}\text{Pu} \pm 2\sigma$ (mBq/kg peso fresco)
1	1975	AOSTA	0,08 \pm 0,04
2	1976	L'AQUILA	0,13 \pm 0,06
3	1976	L'AQUILA	0,07 \pm 0,04
4	1977	ROMA	0,11 \pm 0,04
5	1978	CASTROVILLARI (CS)	0,17 \pm 0,05
6	1979	NOVAZZA (BG)	0,10 \pm 0,04
		MEDIA	0,11 \pm 0,04

TABELLA 10
 CONCENTRAZIONE MEDIA DI $^{239,240}\text{Pu}$ IN ALCUNI ALIMENTI
 PRESI SINGOLARMENTE

CAMPIONE	ANNO DI CAMPIONAMENTO	ZONA DI CAMPIONAMENTO	$^{239,240}\text{Pu}_{\pm 2\sigma}$ (mBq/kg peso fresco)
FARINA	1981	ROMA	0,046 \pm 0,02
VEGETALI A FRUTTO	1982	ANGUILLARA	0,026 \pm 0,01
VEGETALI A FOGLIA	1981	ROMA	0,153 \pm 0,03
GAMBERI	1981	BAGNARA CALABRA	2,50 \pm 0,26
PESCE	1981	BAGNARA CALABRA	0,250 \pm 0,07

stione media giornaliera di 1,5 kg di dieta fresca, sia dell'ordine di 55-75 mBq/anno.

Considerando il fattore di assorbimento gastrointestinale di 3×10^{-5} , suggerito dall'ICRP (13), avremo una immissione nel sangue circolante causata dall'ingestione stimata di Plutonio di $1,8 \times 10^{-3}$ mBq/anno. Va precisato comunque che tale fattore di assorbimento è attualmente contestato in quanto stime più recenti lo danno pari a 10^{-4} per composti tetraivalenti (32). I dati riportati sono in ottimo accordo con quelli riportati da Bennett (3) per l'anno 1972 per diete americane ottenuti analizzando separatamente circa 20 componenti della dieta e risalendo alla ingestione media annua di Plutonio attraverso l'ingestione media annua di tali alimenti. Il contenuto medio di $^{239,240}\text{Pu}$ per kg era in questo caso di circa 0,11 mBq/kg.

Gli stessi risultati riportava Bennett(4)

per l'anno 1974 per cui si può affermare che, in as senza di nuove fonti di contaminazione, il contenuto di Plutonio ambientale è molto costante.

Di circa un ordine di grandezza superiore sono invece i dati di Okabayashi (25) il quale trova, per diete giapponesi raccolte negli anni 1965-69, rispettivamente 3,54 mBq/persona/giorno e 2,44 mBq/persona/giorno. Considerando infatti una ingestione media giornaliera di 1,5 kg di dieta si hanno valori di 2,36 mBq/kg per il 1965 e 1,6 mBq/kg per il 1969.

Okabayashi ritiene che ciò possa dipendere dal fatto che i giapponesi consumano grandi quan tità di pesce, crostacei ed alghe marine. In special modo le giovani acciughe sono considerate una delle cause prevalenti dell'alta concentrazione di ^{239,240}Pu nella dieta giapponese in quanto vengono consumate intere ingerendo quindi anche il fegato

che, come è noto, contiene più Plutonio dei muscoli.

La tabella 10 riporta i dati di alcuni singoli alimenti. Da tali dati risulta evidente che la concentrazione di Plutonio negli alimenti provenienti dall'ambiente continentale è notevolmente inferiore rispetto a quella trovata sugli organismi viventi in ambiente marino. Ciò conferma quanto trovato con le analisi effettuate sui terreni disturbati (coltivati) e sui sedimenti marini per i quali la concentrazione di ^{239}Pu per kg è di qualche ordine di grandezza superiore a quella trovata per i terreni coltivati (7,9,34).

In ultima analisi si può comunque affermare che i risultati ottenuti sono in buon accordo con quelli riportati in letteratura per diete normali di altri paesi e confermano che l'ingestione media di $^{239,240}\text{Pu}$ nell'emisfero nord è compresa nel-

l'intervallo (40-100 mBq/anno).

5.3. Livelli di Plutonio nei tessuti autoptici

I livelli attuali di Plutonio nei membri della normale popolazione italiana sono stati determinati su campioni autoptici prelevati da soggetti di entrambi i sessi e di varia età, tutti morti nel 1981 per cause accidentali, fornitici dall'"Istituto di Medicina Legale" dell'Università degli Studi di Roma.

Il prelievo di tali campioni ha richiesto attenzioni particolari collegate alle specifiche esigenze imposte dalla natura stessa dell'indagine. Il problema più importante era quello di ottenere campioni quanto più possibile esangui, onde non influenzare i risultati che dovevano riferirsi soltano

to al Plutonio contenuto nei singoli organi.

Ciò è stato ottenuto col prelevare i campioni nelle porzioni di viscere non declivi e perciò non soggette a raccolte ematiche ipostatiche; con la spremitura dei campioni e nel caso del tessuto osseo, con una scarnificazione quanto più completa possibile. In dettaglio si può dire che per il fegato sono stati prelevati campioni nella porzione superiore più sottodiaframmatica del viscere, nel polmone in quella apicale o comunque del terzo superiore perchè queste aree sono meno soggette a fenomeni di raccolta ipostatica di sangue.

Il rene, scapsulato, è stato raccolto in toto, così pure la milza. Per l'osso sono stati raccolti i corpi di due vertebre toraciche o lombari.

La tabella 11 riporta i dati caratteristici dei soggetti analizzati.

Le quantità di campione usate per l'analisi

TABELLA 11
DATI CARATTERISTICI DEI SOGGETTI ANALIZZATI

N° DEL CAMPIONE	ETA'	SESSO	ALTEZZA (cm)	PESO (kg)	PROFESSIONE
1	74	F	-	-	CASALINGA
2	61	M	165	64	PORTANTINO
3	25	M	170	63	DISOCCUPATO
4	79	F	141	58	BRACCIANTE AGRICOLO
5	61	F	165	72	CASALINGA
6	61	M	170	64	IMPIEGATO

1
62
1

si, preventivamente omogeneizzate, sono state di 50-100 gr per reni e milza e circa 150-200 gr per l'osso, il fegato e il polmone. Il numero dei campioni analizzati è ancora molto modesto per poter trarre delle conclusioni, tuttavia si può osservare che le concentrazioni di Plutonio, riferite ai vari organi analizzati, tabella 12, confermano che la maggior parte del Plutonio è ritenuto nel fegato e nello scheletro dei soggetti considerati.

La distribuzione di Plutonio nello scheletro e nel fegato per i soggetti anziani è in ottimo accordo con le ipotesi riportate dall'ICRP (14).

La distribuzione del Plutonio sembra essere diversa nei soggetti più giovani, nei quali il Plutonio contenuto nel fegato è di un ordine di grandezza più basso di quello contenuto nello scheletro; tale ipotesi deve però essere confermata con ulteriori dati.

TABELLA 12

CONCENTRAZIONE DI $^{239,240}\text{Pu}+^{26}\text{Pu}$ IN TESSUTI UMANI (mBq/kg tessuto fresco)

SOGGETTO	SCHIELETRO	POLMONE	FEGATO	MILZA	RENI
1	27,0 ± 6,0	2,0 ± 0,9	26,1 ± 1,0	5,8 ± 1,5	0,8 ± 1,7
2	7,0 ± 1,2	3,5 ± 0,8	22,5 ± 2,2	-	2,3 ± 2,0
3	4,8 ± 1,0	0,8 ± 0,3	1,5 ± 0,5	1,3 ± 0,9	0,5 ± 0,9
4	2,3 ± 1,3	3,1 ± 0,7	39,6 ± 2,0	2,6 ± 1,4	0,3 ± 1,4
5	9,3 ± 4,0	2,6 ± 0,8	5,7 ± 0,8	7,2 ± 1,7	0,3 ± 0,7
6	10,1 ± 4,0	1,6 ± 1,0	43,9 ± 3,5	2,0 ± 1,7	8,1 ± 3,0
MEDIA	10,1 ± 3,6	2,0 ± 0,4	23,2 ± 7,0	3,8 ± 1,1	2,0 ± 1,2

Il carico corporeo medio, tabella 13, riferito al contenuto di Plutonio nei membri più anziani della normale popolazione, è dell'ordine di 90 mBq. Tali valori sono in ottimo accordo con quelli riportati per gruppi di popolazioni di altri paesi (8,15,20,21,22,23,31) e confermano che la normale popolazione, vivente nell'emisfero nord, ha attualmente un carico corporeo di Plutonio dell'ordine di 50/100 mBq.

TABELLA 13
CARICO CORPOREO DI PLUTONIO IN VARI ORGANI E NEL CORPO INTERO (mBq)

SOGGETTO	SCHIELETRO	FEGATO	POLMONI	TESSUTI MOLLI	CORPO INTERO
1	135	47	2	0,7	187
2	35	41	3	0,5	79
3	24	3	1	0,3	28
4	12	71	3	0,5	86
5	45	10	2	0,7	57
6	50	8	2	0,9	69

6. CONCLUSIONI

Dai dati riportati in letteratura e da quelli da noi ottenuti sperimentalmente si possono ricavare alcune considerazioni relative al comportamento del Plutonio nell'ambiente ed ai suoi fattori di trasferimento attraverso la catena alimentare sino a giungere all'uomo. Il Plutonio disperso nello ambiente si ritrova quasi totalmente nei terreni e nei sedimenti ed in quantità molto inferiore nei livelli trofici successivi (acqua, dieta, etc.); questo dimostra quindi che la sua mobilità nell'ambiente è molto limitata. Essa dipende da vari fattori quali la forma chimica, lo stato di complessazione ed il pH del terreno.

Inoltre i meccanismi di trasferimento di questo elemento dall'ambiente agli organismi viventi sono molto poco efficaci poichè il Plutonio non

viene solubilizzato in maniera efficace e tende comunque a dare specie che passano con difficoltà la barriera biologica.

A tale riguardo si può osservare che recentemente il fattore di trasferimento del Plutonio è stato stimato in 10^{-4} dal suolo alle piante ed in 10^{-4} dalle piante all'uomo (11). Tale basso coefficiente di trasferimento trova conferma dai dati sui vegetali da noi trovati sperimentalmente.

Anche i dati riguardanti il contenuto di Plutonio nella dieta, da noi determinato su vari campioni, confermano tali evidenze. Questi dati sono inoltre in ottimo accordo con quelli riportati da altri autori e riferiti all'emisfero occidentale (3,4,25,26).

Un altro aspetto, forse il più importante, riguarda il Plutonio presente nell'aria e responsabile della contaminazione dell'uomo attraverso l'inalazione. E' noto infatti che l'inalazione sembra es-

sere la via più importante di trasferimento del Plutonio dall'ambiente all'uomo.

I livelli di contaminazione interna dovuti alla inalazione vengono generalmente studiati attraverso modelli metabolici di deposizione polmonare che arrivano fino alla valutazione della dose ricevuta dalla popolazione.

Secondo dati riportati in letteratura la quantità di Plutonio inalata annualmente nell'emisfero Nord è pari a 7,4 mBq/anno; considerando il fattore di assorbimento polmonare pari a $2 \cdot 10^{-1}$ si può vedere che la quantità di Plutonio introdotta attraverso tale via è di 1,48 mBq/anno (5).

La conferma che solo una piccolissima frazione del Plutonio disperso nell'ambiente si è trasferita all'uomo è evidente dai dati da noi trovati sperimentalmente analizzando tessuti autoptici della normale popolazione. I nostri dati su tali cam-

pioni sono anche qui in ottimo accordo con quelli riportati da altri autori per altri paesi e confermano che il Plutonio nell'emisfero Nord è distribuito abbastanza uniformemente (8,15,20,21,22,23,31).

Per quanto concerne infine la distribuzione del Plutonio nei vari organi viene confermato, dai nostri dati, che gli organi maggiormente interessati sono il fegato e lo scheletro. La distribuzione percentuale in tali organi non differisce significativamente da quanto ipotizzato nella più recente letteratura (14). Inoltre studi recenti, effettuati su reperti autoptici prelevati da lavoratori che presero parte al progetto Manhattan, oltre a confermare i dati sulla distribuzione del Plutonio nei vari organi da noi riportati hanno anche evidenziato l'ottimo accordo esistente tra il carico corporeo di Plutonio, a suo tempo stimato con modelli metabolici dai dati di escrezione, con quello ottenuto dalle analisi di tali reperti autoptici (35).

B I B L I O G R A F I A

1. Bair W.J., Bellou J.E., Park J.F. and Sanders C.L. (1973), Plutonium in soft Tissues with Emphasis on the Respiratory Tract. In "Uranium, Plutonium and Transplutonic Elements". Hodge H.C., Stannard J.N., Hursh J.B.; pp. 503-568, Springer-Verlag, Berlino.
2. Bair W.J. (1979); Metabolism and Biological Effects of Alpha Emitting Radionuclides. In "Proceedings of the Vith International Congress of Radiation Research". pp. 903-912, Tokio.
3. Bennet B.G. (1974); "Fallout Plutonium 239,240 in Diet" Report HASL 286.
4. Bennet B.G. (1976) "Fallout Plutonium 239,240 in Diet" Report HASL 306.
5. Bennet B.G. (1976) "Transfer of Plutonium from the Environment to Man". In Proceedings of the International Symposium on the Management of Wastes from the LWR fuel cycle. Conf. 7b 0701 pp 554-564, Denver (Colorado).

6. Brandon W.F., Archer P.G., Bloom A.D., Archer V.E., Bistline R.W. e Saccomanno G. (1979). "Cromosome changes in somatic celles of workers with internal deposition of Plutonium" in Proceedings of Symposium on biological implications of radionuclides released from nuclear industries. Vol. II pp. 195-210 IAEA (Vienna).
7. Brondi A., Cigna Rossi L., Perini A., Scalvenzo P., Zuccaro Labellarte G. (1982). "¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ^{239,240}Pu Distributions in Italian soils". Third International Symposium on Radiological Protection Advances in Teory and Practise. Vol. I pp. 99-105, Inverness - Scotland.
8. Campbell E.E., Milligan M.F., Moss W.D., Schulte H.F., Mc Introy J.F. (1973). "Plutonium in Autopsy Tissue. Report LA - 4875."
9. Cigna Rossi L., Zuccaro Labellarte G., Brondi A. (1982). "Behaviour of fallout Plutonium in Italian Soils and Sediments". Report EUR 7800/DE/EN/FR pp. 208 C.E.C. (Commissione Comunità Europea).

10. Comar C.L. (1976). "Plutonium. "Facts and Inferences". Rifer EPRI-EA-43-SR.
11. Delle Site A. (1975). "Comportamento chimico-fisico e biochimico del Pu nell'ambiente e nei sistemi biologici". Rapporto CNEN RT/PROT 78 (24).
12. Delle Site A., Marchionni V., Santori G. (1979). "Un metodo sensibile per la determinazione del Plutonio in campioni ambientali". Rapporto CNEN RT/PROT (79) 21.
13. International Commission on Radiological Protection (1959). "Report of Committee II on Permissible Dose for Internal Radiation". Publication 2, Pergamon Press, (Oxford).
14. International Commission on Radiological Protection (1979). "Limits for Intakes of Radionuclides by Workers". Publication 30, Part I, Pergamon Press. (Oxford).
15. Irlweck K., Frieman C., Schonfeld T., (1980). "Plutonium in the Lungs of Austrian Residents". Health Physics 39 pp. 95-99.

16. Kate J.J., Seaborg G.T. (1957). "The Chemistry of the Actinide Elements". Ed. Methuen and C.L.T.D. (Londra).
17. Kraus K.A. (1956). "Hydrolitic Behaviour of the Heavy Elements". In Proceedings International Conference Peaceful Uses Atomic Energy. Vol. 7, pp. 245-257 (Geneve).
18. Langham W.H., Bassett S.H., Harris P.S. and Carter R.E. (1980). "Distribution and Excretion of Plutonium Administered Intravenously to Man". Health Physics 38, pp. 1031-1060.
19. Lloyd D.C. "Surveys of chromosome aberrations in radiation workers". In Annual research and development report of the National Radiological Protection Board for 1976. pp. 116 (Harwell).
20. Mac Inroy J.F., Campbell E.E., Moss W.D., Tietien G.L., Eutsler B.C. and Boyd H.A. (1979). "Plutonium in Autopsy tissue: a revision and updating of data." Reported in LA-4875. Health Physics 37 pp. 1-136.

21. Magno P.J., Kauffman P.E. and Shleilen (1967). "Plu
tonium in Environmental and Biological Media".
Healty Phisics 13, pp. 1325-1330.
22. Mussalo H., Jaakkola T. and Miettinen J.K. (1980).
"Distribution of Fallout Plutonium in Southern
Finns". Healty Physics 39, pp. 245-255.
23. Nelson I.C., Heid K.R., Fuqua P.A. (1972). "Pluto-
nium in autopsy tissue samples". Healty Physics 22,
pp. 925-930.
24. Nuclear Energy Agency (1981). "The Environmental
and Biological Behaviour of Plutonium and some other
transuranium Elements". Report ISBN 92-64-12246-x.
(Parigi).
25. Okabayashi H. Comunicazione personale, dati non pub
blicati.
26. Santori G. (1979). "Contenuto di ^{239,240}Pu nella
dieta Italiana". Atti del XXI Congresso Nazionale
AIRP, pp. 345-350 (Palermo).

27. Seaborg G.T. (1958). "The Transuranium Elements".
Ed. Addison - Wesley. Massachussetts (USA).
28. Seaborg G.T., Mc Millan E.M., Kennedy J.W., Whal
A.C. (1946). "Radioactive Element 94 from Deuterons
on Uranium". Physical Review 66 pp. 366-374.
29. Seaborg G.T. (1969). "The syntetic actinides from
discovery to manufacture". American Nuclear Society
San Francisco (California).
30. Sill C.W. (1975). "Some Probiems in measuring Pluto-
nium in the Environment". Health Physics 29, p. 619.
31. Singh N.P., Ibrahim S.A., Cohen N., Wrenn M.E.
(1979). "Simultaneus Determination of Alpha-Emitting
Radionuclides of Thorium and Plutonium in Human
Tissue Including Bone". Analytical Chemistry 51
pp. 1978-1981.
32. Stater J.W. and Harrison J.D. "Comunicazione persona
le dati non pubblicati".

33. Testa C., Santori G. (1972). "Un metodo sensibile per la determinazione di bassi livelli di Plutonio nelle urine di persone professionalmente esposte". Giornale di Fisica Sanitaria e Radioprotezione 16 pp. 1-6.
34. Triulzi C., Delle Site A. and Marchionni V. (1982) "^{239,240}Pu and ²³⁸Pu in Seawater, Marine Organism and Sediments of Taranto Gulf (Ionian Sea)". Estuarine, Coastal and Shelf Science 15 pp. 109-114.
35. Voelz G.L., Hempelmann L.H., Lawrence J.N., Moss W.D. (1979) "A 32-Year Medical Follow-UP of Manhattan project Plutonium Workers". Health Physics 37 pp. 445-485.