

Міграція тритію у компонентах природного середовища

Олександр Пушкар'юв¹

д. геол. н., ст. наук. співробітник, пров. наук. співробітник,

¹ ДУ «Інститут геохімії навколишнього середовища НАН України», Київ, Україна,

e-mail: pushkarevigns@gmail.com, <https://orcid.org/0000-0002-4382-8620>;

Ірина Севрук¹,

к. геол. н., ст. дослідник, заст. директора,

e-mail: irina_mihalovna@ukr.net, <https://orcid.org/0000-0003-2407-0735>;

Іван Шраменко¹

к. геол.-мін. н., ст. наук. співробітник, пров. наук. співробітник,

e-mail: shramenko_ivan@ukr.net, <https://orcid.org/0000-0002-7010-0934>;

Олександр Зубко¹

наук. співробітник,

e-mail: zubko2019alex@gmail.com, <https://orcid.org/0000-0002-2521-8087>;

Володимир Вітер¹

к. хім. н., зав. лабораторії,

e-mail: chemanalyt555@gmail.com, <https://orcid.org/0009-0005-2551-9495>

Тритій, утворений внаслідок природних чи техногенних процесів, включається в міграційні потоки в залежності від форм його знаходження – газової (НТ), водної (НТО) або органічно зв'язаної (ОЗТ). При атмосферному переносі зменшення концентрації тритію відбувається згідно законів дифузії у повітряних шлейфах. Частина тритію з атмосферними опадами потрапляє на поверхню водойм, де розбавляється до фонових концентрацій, на рослинність та ґрунт. Подальша геохімічна історія цих випадків визначається законами біогеохімічної та гідрогеохімічної міграції і включенням у короткостроковий і довгостроковий колообіг у біосфері. За результатами моніторингу вмісту тритію в сніговому покриві та в атмосферній вологості в зоні впливу пунктів збереження радіоактивних відходів (ПЗРВ) визначено, що формування атмогеохімічних аномалій тритію залежить від конструктивних особливостей конфайнменту, геоморфологічних та ландшафтно-геохімічних чинників (форм рельєфу, типу і структури лісової екосистеми), наявності технологічних приміщень, що відіграють роль природних та техногенних бар'єрів на шляху руху повітряних мас, а також від узагальненої за контрольний період рози вітрів. Біогеохімічна міграція тритію відбувається з водою атмосферних опадів в ґрунтово-рослинній системі. Тритій, як ізотоп водню, бере участь в усіх процесах біогеоміграції, що передусім визначається біологічною роллю води в органічній речовині. За результатами радіогідрогеологічного моніторингу територій, прилеглих до ПЗРВ, визначено головні фактори, що впливають на формування гідрогеофільтраційних потоків тритію в геологічному середовищі. До них відносяться: інтенсивність виходу тритійованої води зі сховищ радіоактивних відходів (РАВ), гідравлічна проникність, гідрофізичні параметри та мінеральний склад зони ненасиченої фільтрації, рельєф поверхні водотривкого горизонту та сезонні коливання надходження атмосферних опадів до місцевого водоносного горизонту. Довготривале функціонування гідрогеофільтраційних потоків тритію у системі «зона аерації (ЗА) – підземний водоносний горизонт (ПВГ)» обумовлює їх розповсюдження на відстані, що значно перевищують планові розміри емностей і територію ПЗРВ.

Ключові слова: тритій, форми знаходження тритію, природне середовище, атмогеоміграція, біогеоміграція, гідрогеоміграція.

Як цитувати: Пушкар'юв Олександр, Севрук Ірина, Шраменко Іван, Зубко Олександр, Вітер Володимир (2025). Міграція тритію у компонентах природного середовища. Вісник Харківського національного університету імені В. Н. Каразіна. Серія «Геологія. Географія. Екологія», (62), 112-126. <https://doi.org/10.26565/2410-7360-2025-62-09>

In cites: Pushkarov Oleksandr, Sevruk Iryna, Shramenko Ivan, Oleksandr Zubko, Volodymyr Viter (2025). Migration of tritium in the components of the natural environment. Visnyk of V.N. Karazin Kharkiv National University. Series Geology. Geography. Ecology, (62), 112-126. <https://doi.org/10.26565/2410-7360-2025-62-09> [in Ukrainian]

Вступ. Геохімічна міграція елементів є комплексом фундаментальних природних процесів, що ведуть до просторового переміщення хімічних елементів, зі зміною їх концентрації в одній ділянці природного середовища та накопиченням або розсіюванням в інших. Міграція хімічних елементів відтворює суть геохімічних процесів, викликає переміщення атомів у просторі, приводить до зміни взаємозв'язків між ними та до зміни їх кількісних співвідношень і відбувається в різних середовищах – в рідких, газоподібних, рідше у

твердих системах. Геохімічна міграція елементів може відбуватися в атомній, іонній, молекулярній, колоїдній або грубо дисперсній формі, включає перехід хімічного елементу у структурний стан та форми знаходження, що забезпечують їх рухомість у даних зовнішніх умовах і є нерозривним комплексом процесів, які сприяють перерозподілу хімічних елементів у природних тілах. Стан міграції та її шляхи залежать від двох груп факторів:

– внутрішніх властивостей атому, переважно

© Пушкар'юв Олександр, Севрук Ірина, Шраменко Іван, Зубко Олександр, Вітер Володимир, 2025

від його наріжних електронів і, в меншій мірі, – від ядра;

– від зовнішніх термодинамічних умов, що обумовлюють міграцію у градієнтних полях компонентів природного середовища.

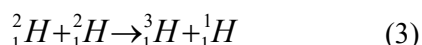
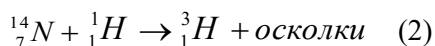
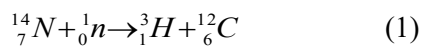
До внутрішніх факторів міграції відносяться їх гравітаційні, хімічні, електричні, радіоактивні властивості та група властивостей зв'язку (тобто швидкість дифузії, розчинність та ін.). Зовнішні фактори визначають стан середовища міграції та фізико-хімічні умови міграції.

Тритій, утворений внаслідок природних чи техногенних процесів, включається в міграційні потоки в залежності від форм його знаходження – газової (НТ), водної (НТО) або органічно зв'язаної (ОЗТ). Включаючись в різноманітні рухи атмосфери, поверхневих і підземних потоків, тритій поширюється в навколишньому середовищі згідно закономірностей колообігу водню в природі.

Метою роботи є систематизація та узагальнення інформації щодо процесів, які обумовлюють геохімічну міграцію радіоактивного ізотопу водню в природному середовищі.

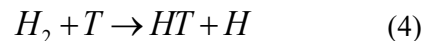
Атмогеохімічна міграція тритію. Атмосфера є важливим резервуаром і переносником радіонуклідів космічного і штучного походження. Тритій надходить в атмосферу двома шляхами – природним і техногенним. Ці два генетичних фактори є визначальними для подальшої геохімічної історії тритію в атмосфері.

Маса існуючої в даний час атмосфери зосереджена у стратифікованому шарі товщиною 100 км, який складається із тропосфери товщиною 16 км, стратосфери (до висоти 40 км), мезосфери (до висоти 80 км). Вище, розташований сильно іонізований шар – іоносфера, де внаслідок зіткнення високоенергетичних часток сонячного вітру (нейтронів 1_0n , протонів 1_1H , дейтронів 2_1H) з молекулами повітря постійно утворюється тритій 3_1H (Т) переважно у формі НТ [1]



Утворені під впливом космічного випромінювання атоми тритію мають високу кінетичну енергію і легко окиснюються киснем до утворення молекул НТО [2]. Цей процес обумовлюється ланцюговим перетворенням НТ в НТО за участі фотохімічних реакцій [1, 3]. Збуджені під впливом короткохвильового ультрафіолетового випромінювання молекули кисню швидко видаляють НТ з повітря. Атоми тритію, або утворені в ланцюгових фотохімічних реакціях радикали

TO_2^- , можуть реагувати з озоном (O_3) з утворенням радикала OT^- , який поєднується з воднем атмосфери, утворюючи НТО. Утворені внаслідок космічного випромінювання атоми тритію можуть неодноразово вільно зштовхуватися з атомами протію, що сприяє відновленню кількості молекул НТ згідно обмінних реакцій типу (4):



Невелика кількість НТО, що становить менше 1% від обсягів їх утворення за добу, також може бути отримана шляхом ініціювання реакції між тритієм і киснем внаслідок бета-випромінювання при розпаді тритію [4, 5]. Атмосферне окиснення космогенного НТ з утворенням НТО відбувається повільно з періодом трансформації понад 5 років [6].

Тритійована водяна пара з утворенням внаслідок трансформаційних реакцій співвідношенням НТ/НТО переноситься зі стратосфери в тропосферу з півперіодом в 1 рік. Низхідний рух в тропосфері та атмосферні опади є основними шляхами виведення тритію з атмосфери. Час перебування тритійованої пари в нижній тропосфері становить від 5 до 20 діб, після чого вона потрапляє на поверхню Землі у вигляді атмосферних опадів з подальшим включенням у гідрологічний цикл [2]. Біля 21% утвореної НТО випадає на рослинність, поверхню водойм та ґрунту, згодом частково випаровується і знову повертається в атмосферу.

Значна кількість тритію, що надходить в нижню частину атмосфери, розчиняється в світовому океані протягом року. Після осадження на поверхні океану у верхньому змішаному шарі тритійована вода розбавляється. В подальшому частка НТО випаровується назад в атмосферу із набагато меншою концентрацією тритію. Менша частина транспортується в глибини океану [7].

Надходження в стратосферу штучного тритію почалося після проведення серії термоядерних вибухів у 60–70-х роках минулого століття. За даними спеціальних станцій спостереження кількість техногенного тритію в атмосфері зростала включно до 1963 року [8, 9, 10].

До початку ядерних випробувань концентрація елементарного тритію в тропосфері ($\approx 3,7 \times 10^{-7}$ Бк $\times$ дм $^{-3}$) була, в середньому, на порядок нижче, ніж концентрація НТО, але внаслідок ядерних випробувань концентрація НТ зросла більш ніж на два порядки і утримувалась до 1975 р. на рівні $1,1 \times 10^{-4}$ Бк $\times$ дм $^{-3}$.

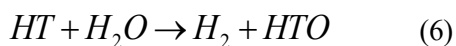
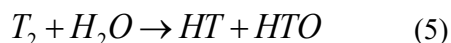
З поступовим зменшенням концентрації «бомбового» тритію лідерство у надходженні надважкого ізотопу водню в атмосферу перейшло до підприємств ядерного паливного енергетичного комплексу. Первинними джерелами

радіоактивних газо-аерозольних викидів з АЕС є вентиляційні системи приміщення першого контуру, самого реактора та приміщення, де розташовані басейни витримки високоактивного відпрацьованого ядерного палива (ВЯП).

Для легководних реакторів (PWR, ВВЕР і BWR) більша частина тритію, що виділяється в атмосферу, надходить від басейнів витримки ВЯП. Для важководних реакторів (HWR) домінуючим джерелом надходження тритію в атмосферу є важка вода теплоносія. Основними приміщеннями АЕС, де можливий інтенсивний обмін тритію між водою і повітрям, є басейни витримки відпрацьованого палива, випарні системи і апарати, хімічні лабораторії, системи обмивки обладнання.

В газо-аерозольних викидах з АЕС тритій існує у формі T_2 , НТ і НТО, рідше – тритієвого метану (CH_3T) [11]. Найбільшу частину в газо-аерозольних викидах складає пара тритійованої води (НТО) і тритійований газоподібний водень (НТ). Газова форма тритію недовговічна і на час її перетворення в НТО впливають температура повітря та вміст в ньому водяної пари.

Швидкість окиснення НТ до НТО пропорційна квадрату його концентрації у суміші та значною мірою залежить від наявності та кількості у повітрі водяної пари [12]. НТО утворюється при взаємодії тритію з водяною парою за реакціями обміну (5, 6):



Форма знаходження тритію важлива для його розподілу між компонентами навколишнього середовища. Газоподібний НТ реагує з іншими частинами навколишнього середовища повільніше, ніж НТО. Пара НТО поводить себе як звичайна вода в атмосфері і є більш поширеною хімічною формою у викидах з ядерних установок.

Тритій, що потрапив в атмосферу з вентиляційних та охолоджувальних систем, формує шлейфи підвищеної концентрації у повітрі. Його подальша атоміграція визначається закономір-

ностями аеродинаміки повітряних потоків та розсіювання домішок внаслідок дифузії. Атмосферні потоки тритію у формі НТ або пари НТО піддаються аналогічним дисперсійним процесам, як й інші типи атмосферних забруднень. Підйом шлейфу залежить від атмосферних умов і від характеристик джерела випуску.

Окрім типу викидів тритію, атмосферна дисперсія сформованих шлейфів залежить від багатьох факторів, пов'язаних з конкретними об'єктами, такими як кількість вентиляційних труб, висота вентиляційних труб, швидкість викиду, температура газу, що викидається, вологість повітря, розмір і розташування суміжних будівель, локальна атмосферна турбулентність і вітрові умови, а також місцева топографія.

Атмосферні умови значною мірою впливають на горизонтальну і вертикальну дисперсію шлейфу, яка є найбільшою в спокійних, ясних, денних умовах і найменшою – у спокійних, ясних, нічних умовах [13]. Кінцевим результатом математичного моделювання атмосферної дифузії є Гаусова модель розподілу домішок у хмарі викиду, яка в значній мірі ґрунтується на роботі Пасквілла [14]. Розрахунок швидкості поширення та дисперсії домішок у шлейфі для розподілу Гаусса залежить від оцінки стабільності атмосфери.

Дисперсія вмісту домішок у шлейфі визначається як фактор розбавлення. Розрахунок його значень виконується з урахуванням таких параметрів, як строковість викидів, точкове чи поширене джерело викиду, категорія стабільності або стійкості атмосфери, повторюваність напрямку вітру за час викиду тритію з джерела та його об'ємної активності у повітрі над однорідним поверхневим джерелом, переважання рози вітрів у заданому напрямку, відстань розрахункової позиції від джерела викиду та товщина шару перемішування тощо.

Для безперервного викиду з піднесеного точкового джерела при постійних параметрах вітру, його швидкості та інших атмосферних умов модель Гаусова шлейфу може бути розрахована згідно виразу (7) [8]:

$$C_A(x, y, z) = \frac{Q_i}{2\pi\sigma_y\sigma_z u} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right) \left\{ \exp\left[-\frac{(z-H)^2}{2\sigma_z^2}\right] + \exp\left[-\frac{(z+H)^2}{2\sigma_z^2}\right] \right\} \quad (7)$$

де: $C_A(x, y, z)$ – концентрація тритію у повітрі в точці (x, y, z) у напрямку вітру, $Bк \times м^{-3}$; x – відстань за вітром, м; y – бічний розмір шлейфу, м; z – вертикальний розмір шлейфу, м; Q_i – швидкість викиду радіонукліда, $Bк/с$; σ_y , σ_z – параметри дифузії, які є функцією відстані x у напрямку вітру і стабільності атмосфери, м; u – середня швидкість вітру, $м \times с^{-1}$; H – висота точки викиду, м.

Значення H являє собою фізичну висоту точ-

ки вивільнення з вентиляційної споруди плюс надбавка за будь-який додатковий підйом шлейфу за рахунок імпульсу (вихлопи вентилятора і т. ін.). У більшості випадків, пов'язаних з викидом радіонуклідів, ефективна висота точки викиду відповідає фізичній висоті вентиляційної споруди. Коефіцієнти горизонтальної та вертикальної дисперсії концентрації тритію в шлейфі розраховують з використанням формули Сміта – Хоскера [8].

Можливим джерелом надходження тритію в атмосферу є пункти збереження радіоактивних відходів (ПЗРВ). Згідно нашим спостереженням на таких об'єктах вихід тритію в навколишнє середовище із сховищ може здійснюватися двома шляхами – еманаціями газо-аерозольної суміші крізь перекриття сховищ, або інфільтраційним шляхом у вигляді тритійованої води (НТО) крізь порушення суцільності інженерних бар'єрів – стінки і днища сховищ [15].

Першим шляхом формуються атморадіогеохімічні аномалії, подальше існування та розвиток яких визначається метеорологічними факторами – переважним напрямком і силою руху повітряних мас, типом й інтенсивністю атмосферних опадів, а також впливом інших природних та техногенних чинників. Прямими вимірами концентрації тритію в атмосферній волозі за межами конфайнмента, спорудженого над сховищами РАВ,

було показано, що атмоміграція тритію у стабільному стані повітря відбувається, головним чином, дифузійним шляхом з поступовим розбавленням в межах ізометричного шлейфу [16] (рис. 1). Розміри сформованої у цей час атмогеохімічної аномалії в контурі $10 \text{ Бк} \times \text{м}^{-3}$ дорівнювали у північному напрямку 180 м від основного джерела витoku тритію і 110 м – в південному напрямку. В широтному напрямку розміри аномалії не перевищували 250 м.

Вилучення тритію з атмосферного повітря в зимовий період визначається можливістю його екстракції частинками снігу та льоду. Осадження тритію в сніговий покрив відбувається шляхом прямого обміну між парою НТО та снігом і відповідає його концентрації в середовищі формування опадів. Так, згідно Девісу і Баррі, швидкість перенесення тритію в сніговий покрив складає біля $(1,6 \div 3,0) \times 10^{-3} \text{ м} \times \text{с}^{-1}$ [17, 18].

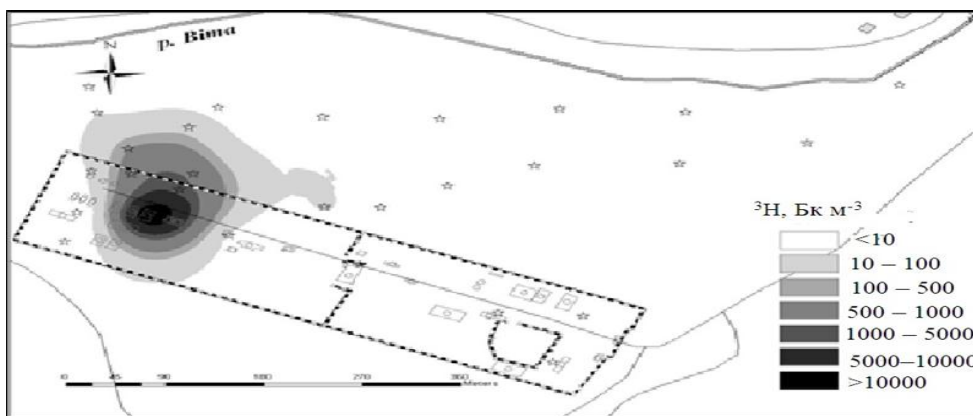


Рис. 1. Поширення тритієвої атмогеохімічної аномалії в санітарно-захисній зоні Київського ПЗРВ заданими атмосферних вимірювань. Зірочками позначено точки відбору проб повітря [16] /

Fig. 1. Distribution of tritium atmochemochemical anomaly in the Kyiv SFRW according to the data of atmospheric measurements. Air sampling points are marked with asterisks [16]

Процес обміну тритієм між парою НТО і снігом був зафіксований в межах проммайданчика та санітарно-захисної зони (СЗЗ) Київського ПЗРВ. Внаслідок самочинної вентиляції відбувалося виносення тритію атмосферними потоками через вентиляційні отвори конфайнменту, розташовані на висоті близько 3 м. В умовах невеликих від'ємних температур та високої вологості повітря волога конденсувалася у приземному шарі атмосфери та осідала на поверхню снігу (рис. 2). Як наслідок, вміст тритію у сніговому покриві збільшився від $4\text{--}8 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$ (під час опадів) до $100 \div 3\,000 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$ (після 30-добової експозиції в умовах стійкого снігового покриву).

На основі узагальнення отриманих результатів моніторингу вмісту тритію в сніговому покриві та прямих вимірів тритію в атмосферній волозі було встановлено, що поширення тритію з атмосферними потоками лише частково залежить від узагальненої за контрольний період рози

вітрів. Більш значущими чинниками впливу на інтенсивність і напрямок переносу тритію у приземній частині атмосфери є особливості рельєфу, наявність природних і техногенних бар'єрів, які обумовлюють переважний рух повітряних мас.

Подальша геохімічна історія тритію, що переноситься атмосферними потоками, визначається процесами його вилучення з повітря, осадження на рослинність, поверхню водойм та ґрунту та включення у короткостроковий і довгостроковий колообіг у біосфері.

Біогеоміграція тритію. Тритій, як ізотоп водню, бере участь в усіх процесах біогеоміграції, що передусім визначається біологічною роллю води в органічній речовині. Включення в ці процеси важких ізотопів водню відбувається надзвичайно швидко внаслідок ізотопного обміну, окиснення до водної форми, фракціонування в процесах фотосинтезу, кореневого живлення та інших біогеохімічних процесів. Основними шляхами

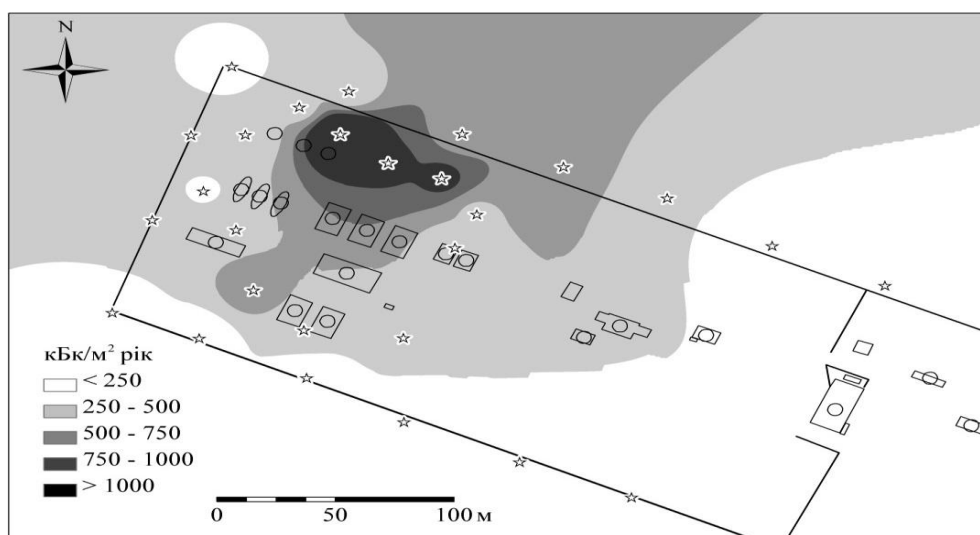


Рис. 2. Розподіл тритію у сніговому покриві внаслідок його емісії зі сховищ Київського ПЗРВ та атмосферної міграції [16] /

Fig. 2. Distribution of tritium in the snow cover due to its emission from Kyiv SFRW and atmospheric migration [16]

надходження тритію в рослини є засвоєння водної та парової фаз НТО, що переносяться при атмогеохімічній міграції та вимиваються з повітря атмосферними опадами.

Основні біофізичні процеси, що визначають біогеоміграцію тритію:

- початкове осаджування на поверхню ґрунту і рослинність;
- перетворення НТ в НТО в ґрунті через бактеріальне окиснення;
- поглинання НТО рослинами з перетворенням частини НТО в ОЗТ;
- транспортування НТО в ґрунті та поглинання НТО корінням;
- реемісія НТО в атмосферу з ґрунту і рослин.

Перенос тритію в системі «атмосфера – рослинність – ґрунт» відбувається в три фази. Перша фаза – це період осадження, коли хмара, що вміщує НТО, проходить над територією, а концентрація в атмосфері є рушійною силою поглинання тритію. Друга фаза – це транспірація НТО з рослинності в атмосферу, яка відбувається через продири і кутикули та залежить від температури, вологості, сили і напрямку вітру, інтенсивності світла.

Перша і друга фази переносу тритію в системі «атмосфера – рослинність – ґрунт» відбуваються швидко відразу після надходження тритію з атмосфери. Вони чутливі до існуючих метеорологічних параметрів (сонячного світла, вологості, температури і кількості опадів), а також фізіології та стадії росту рослин.

Третя фаза починається через кілька днів після того, як відбулося осадження тритію з атмосфери, коли рушійною силою стає транспірація тритійованої води. Транспірація води рослинами призводить до її пересування по ксилемі з коріння в листя. Рослина транспірує, коли вологість нав-

колишнього повітря нижче, ніж вологість повітря в порах рослинної тканини. В інших умовах рослина буде продовжувати поглинати водяну пару з повітря з утворенням ОЗТ. Зв'язок між вологістю ґрунту і евапо-транспірацією відповідає за реемісію тритію в атмосферу й має вирішальне значення для біогеохімічної міграції тритію в біосфері.

В узагальненому вигляді надходження НТО з атмосфери в листя (без врахування частки тритію, що поглинається в формі ОЗТ) як результат взаємодії цих різноспрямованих процесів може бути відображено рівнянням (8) [19]:

$$\frac{dC}{dt} = \frac{\gamma V_{exc}}{M_w} \left(C_{air} - \frac{\rho_s C_s}{\beta} \right) + \frac{V_{exc}}{M_w} (\rho_s - \rho) C_s \quad (8)$$

де: C – концентрація НТО у вільній воді рослин (головним чином вода у листі), Бк $\times$ кг $^{-1}$; C_{air} – концентрація НТО у повітрі, Бк $\times$ м $^{-3}$; C_s – концентрація НТО у випарах (транспіраційній воді), в результаті екстракції води коріннями на різній глибині, Бк $\times$ кг $^{-1}$; ρ_s – абсолютна вологість повітря при температурі рослинності, кг $\times$ м $^{-3}$; ρ – вологість повітря на відповідній висоті, кг $\times$ м $^{-3}$; V_{exc} – швидкість обміну між атмосферою і рослинним покривом, м $\times$ с $^{-1}$; M_w – маса мобільної вологи в листі, віднесена на одиницю поверхні ґрунту, кг $\times$ м $^{-2}$; γ – відношення швидкості обміну НТО $\rightarrow$ H $_2$ O до швидкості обміну води (зазвичай = 0,95); β – ізотопне фракціонування між тритієм і воднем (усереднений показник 1,1).

Частина тритію, яка внаслідок дифузії та транспортування водою надійшла в рослинність у вигляді НТО, внаслідок фотосинтезу перетворюється у вуглеводи (ОЗТ). Утворений у листі ОЗТ

переноситься до коріння де локалізуються продукти фотосинтезу. Там ОЗТ затримується або розкладається з утворенням НТО внаслідок автотрофних кореневих трансформацій чи гетеротрофних трансформацій при мікробному розкладанні біо-косної речовини (грунтового вуглецю та підстилки). Тритій, затриманий в ґрунті або в органічно зв'язаній формі, виключається з колообігу в біосфері.

Внаслідок атмосферної емісії тритію, обумовленої конвективно-дифузійним виходом газо-аерозольної суміші зі сховищ РАВ, в зоні розміщення ПЗРВ Київського Державного міжобласного спецкомбінату (КДМСК) «РАДОН» утворилась радіобіогеохімічна аномалія водню в однорічній і багаторічній рослинності. Більш високі концентрації тритію в межах промайданчика ПЗРВ були зафіксовані в місцях, наближених до сховищ РАВ, і значно меншими – в іншій частині санітарно-захисної зони [15].

Співвідношення питомої активності тритію у транспіраційній (ТВ) та органічно зв'язаній (ОЗТ) формах визначено як коефіцієнти пропорційності, обчислені за виразами (9, 10, 11, 12):

$$Kr^1 = A_G^{2F} / A_G^{1F} \quad (9)$$

$$Kr^2 = A_L^{2F} / A_L^{1F} \quad (10)$$

$$Kr^3 = A_L^{1F} / A_G^{1F} \quad (11)$$

$$Kr^4 = A_L^{2F} / A_G^{2F} \quad (12)$$

де: A_G^{1F} – питома активність тритію в ТВ трави (1 фракція); A_G^{2F} – питома активність тритію в ОЗТ трави (2 фракція); A_L^{1F} – питома активність тритію в ТВ листя (1 фракція); A_L^{2F} – питома

активність тритію в ОЗТ листя (2 фракція).

Осереднені значення питомої активності тритію та співвідношень його вмісту в різних формах знаходження в рослинності промайданчика ПЗРВ та його СЗЗ наведено в таблиці 1. Довготривале існування атмогеохімічного міграційного потоку обумовило узгоджений процес накопичення тритію у транспіраційній воді (ТВ, температура вилучення фракції НТО до 150 °С) і в ОЗТ ($t = 240-650$ °С) у травостої (однорічна рослинність) та в листі дерев та кущів (багаторічна рослинність). Це підтверджується коефіцієнтами кореляції між динамікою поглинання ТВ та накопичення тритію з атмосфери ОЗТ в однорічній та багаторічній рослинності в зоні впливу ПЗРВ, які коливаються від 0,89 до 0,98 (див. табл. 1).

Зазначимо, що більш ефективно, ніж однорічна рослинність (трава), тритій поглинається й утримується багаторічною рослинністю – кущами та деревами (відповідно $Kr^2 = 1,44$, $Kr^4 = 1,19$ (табл. 2). Вільно мігруюча вода внаслідок більшої мобільності та більшої залежності від змін питомої активності тритію в атмосферному шлейфі і насиченості вологою повітря, має меншу питому активність тритію, ніж органічно фіксована (відповідно $Kr^1 = 1,17$, $Kr^3 = 0,96$). За час емісії тритію зі сховищ РАВ відбулося суттєве накопичення важкого ізотопу водню в органічно зв'язаній формі. Відповідно, значна частина поглинутого рослинністю з повітря тритію затримується на час існування органічної речовини і надійно виключається з біологічного колообігу.

Таблиця 1 / Table 1

Питома активність тритію в різних формах знаходження в рослинності промайданчика ПЗРВ та його СЗЗ /

Specific activity of tritium in various forms in the vegetation of the industrial site of the SFRW and its SPZ

Питома активність тритію Бк*см ³ (середнє)		Трава		Листя	
		ТВ	ОЗТ	ТВ	ОЗТ
		685	800	659	952
Коефіцієнти кореляції між вмістом тритію у різних фракціях вологи	Cor.(fr)		0,98		0,89
	Cor.(g/l)			0,98	0,95

Примітка. Коефіцієнти кореляції: Cor.(fr), обчислені для фракцій вологи у кожному типі рослинності; Cor.(g/l) – між травою і листям по кожній із фракцій.

Таблиця 2 / Table 2

Співвідношення питомої активності тритію у транспіраційній (ТВ) та органічно зв'язаній (ОЗТ) формах знаходження (коефіцієнти пропорційності) у рослинності промайданчика ПЗРВ та його СЗЗ /
The ratio of the specific activity of tritium in transpiration (TW) and organically bound (OBT) forms of occurrence (proportionality coefficients) in the vegetation of the industrial site SFRW and its SPZ

Форми знаходження тритію	трава	листя	ТВ	ОЗТ
Коефіцієнти пропорційності	Kr^1	Kr^2	Kr^3	Kr^4
	1,17	1,44	0,96	1,19

Примітка. Kr^n – коефіцієнти пропорційності, $n = 1, 2, 3, 4$.

Дані щодо вмісту тритію в однорічній і багаторічній рослинності дозволяють визначати просторове положення атмогеоміграційних шляхів розповсюдження тритію. Рослинні індикатори опосередковано відображають вплив цього міграційного потоку на пряме поглинання тритію органічною речовиною з повітря, або ж всмоктування його із кореневого шару ґрунту, куди важкий ізотоп водню надходить з атмосферними опадами [16]. Окрім того, результати виміру вмісту тритію в рослинах дозволяють оцінити біогеохімічні іммобілізаційні властивості фітоценозу. Враховуючи осереднені дані про біологічну продуктивність трави та листя дерев, що відповідають умовам місця розташування ПЗРВ Київського ДМСК, розраховано питомі запаси тритію, які поглинаються рослинністю (табл. 3) на одиничному майданчику площею 1 м². Розрахунок виконано на основі даних про вагу проаналізованої наважки рослинної біомаси, об'єм отриманої з неї витяжки вологи, питому активність тритію в цій витяжці та осереднену річну продуктивність рослинної біомаси на 1 м² площі за виразом (13):

$$Z = A \times V \times B \times P^{-1} \quad (13)$$

де: Z – запас тритію в біомасі, Бк; A – питома активність тритію, Бк×см⁻³; V – об'єм отриманої витяжки вологи, см⁻³; B – осереднена річна продуктивність рослинної біомаси, г×м⁻²; P – вага проаналізованої наважки, г.

Таким чином, тритій, що викидається в повітря, поглинається однорічною та багаторічною рослинністю. При цьому тритій захоплюється органічною біомасою у вигляді вільно мігруючої води (ТВ), яка значною мірою внаслідок транспірації випаровується назад у повітря з трави та листя, та в міцно пов'язаній формі рослинної целюлози. І перша, і друга форми вилучають тритій з водневого колообігу, але перша форма – лише на період вегетаційного процесу з частковим поверненням у повітря за рахунок транспірації та після опадання і наступного розкладання листя і трави. У другій формі тритій фіксується на час існування рослинної целюлози. При цьому, коефіцієнти кореляції між динамікою поглинання та утримання тритію в різних типах рослинності дорівнюють 0,89–0,98 (див. табл. 2).

Таблиця 3/ Table 3

Запас тритію, що накопичується рослинністю з одиничної площі земної поверхні в зоні впливу ПЗРВ Київського ДМСК / Tritium stock accumulated by vegetation from a unit area of the earth's surface in the area of influence of the SFRW Kyiv SISC

Запас тритію, Бк×м ⁻²			
ТВ		ОЗТ	
Трава	Листя	Трава	Листя
92	141	114	205

Ступінь поглинання тритію рослинною біомасою залежить від інтенсивності її накопичення і є показником біогеохімічних бар'єрних властивостей фітоценозу. Цей параметр в опосередкованому вигляді враховує взаємодію різних факторів, таких як концентрація тритію в атмосферних опадах та їх кількість, ступінь накопичення тритію на поверхні ґрунту та в його кореновому шарі тощо. Враховуючи таку властивість рослинності, міграційні потоки тритію в приземному повітрі можуть бути зафіксовані при застосуванні біогеохімічного опробування. Цей метод дуже детально опрацьовано в пошуковій геохімії. За його допомогою на потенційно аварійних об'єктах (якими є ПЗРВ, побудовані на початку 60-х років) може бути заздалегідь визначено переважаючі напрямки атмосферних потоків, за якими буде здійснюватися повітряна міграція тритію в разі виникнення аварійних викидів.

На об'єктах, де концентрований вихід тритію в атмосферу вже відбувається, таким чином може бути встановлено ареал розповсюдження забрудненої тритієм рослинності з відображенням на

біогеохімічній карті градацій вмісту нукліду та визначено найбільш небезпечний напрямок радіаційного забруднення території шляхом повітряного переносу. За даними біогеохімічного картування території СЗЗ та враховуючи дані про приріст рослинної біомаси можна оцінити частку тритію, що вилучається з водневого колообігу та виключається з трофічних ланцюгів.

Гідрогеоміграція тритію. Близько 99% від загальної кількості природного тритію, що бере участь в глобальному коловороті води, потрапляє на земну поверхню у вигляді тритійованої води (НТО). Частка тритію, що знаходиться в атмосфері у вигляді молекул НТ, окиснюється до НТО і разом з іншими молекулами НТО включається в загальний колообіг тритію в біосфері. Згідно існуючих оцінок, у глобальному балансі природного тритію головним депо є гідросфера [20]. При цьому, у світовому океані розчинено біля 65%, в т.ч. 35% у верхніх і 30% у глибинних шарах океанів. Залишкові 27% і 7% розподілені між суходолом і атмосферою.

Швидкість включення тритію в гідрологічний цикл визначається швидкістю й особливостями

ми його надходження на земну поверхню, поверхневого змиву, інфільтрації та зворотного випарювання.

Міграція тритію у світовому океані. Тритій, що надходить у нижні шари атмосфери, розчиняється в океані протягом року завдяки паро-обмінним процесам і внаслідок цих же обмінних процесів частково випаровується в атмосферу при набагато меншій концентрації НТО [21]. До початку ядерних випробувань концентрація тритію в поверхневих водах океану становила близько $0,12 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$ [7]. З початком ядерної ери розподіл тритію у світовому океані визначався динамікою глобальних випадіння і спрямованістю та потужністю водних течій. Після ядерних випробувань (станом на 1979 рік), більша частина тритію (146 кг) була виявлена в Тихому океані та в Атлантиці, 6 кг в Арктичному басейні і по 6 кг в Індійському океані та в Антарктиці [22].

Головними транзитними шляхами, які обумовили перенесення тритію у водах світового океану, була система планетарних океанських течій, які не тільки переміщали тритій у поверхневому шарі води, але й обумовлювали формування профілю деякого збільшення концентрацій тритію до глибини 1 000 м – до $1,2 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$ у північній частині Тихого Океану і до $0,36 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$ у західній Атлантиці. Отримані Остлундом і Файном аналітичні дані, були підтверджені більш новітніми дослідженнями [23], які дозволили встановити певну нерівномірність розподілу концентрацій тритію в водах світового океану і, використовуючи його як геохімічний індикатор, визначити деякі закономірності поверхневої та глибинної міграції великих водних мас, переміщення яких має великий вплив на світовий клімат.

Міграція тритію у поверхневих водоймах і водотоках. В континентальній частині земної біосфери природний тритій обумовив формування фонових концентрацій у різних її компонентах. В подальшому вміст тритію в більшості водойм визначався надходженням до них тритію, що утворився внаслідок глобальних ядерних випробувань. Після екстремальних концентрацій тритію, зафіксованих у 1963 році, відбувалося поступове їх експоненційне зниження з періодом напіввиведення 3,2 роки.

Об'ємна активність тритію, пов'язаного з ядерними випробуваннями, в прісноводних водоймах осереднено оцінюється величиною $5\text{--}15 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$ [16]. У річках східної Європи та поверхневих водах морів, що мають обмежений водообмін з океанами (Балтійське, Чорне море та ін.), в 1975 и 1976 рр. спостерігалася концентрація тритію близько $11 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$.

Тритій природного чи техногенного генезису, що потрапив в атмосферу з різних джерел і переноситься повітряними потоками, потрапляє до земної поверхні з опадами або шляхом обміну між паровою та ґрунтовими і поверхневими водами. Такий обмін є безперервним і домінуючим для приповерхневої частини шлейфів поблизу землі і в певних метеорологічних умовах може супроводжуватися прямою конденсацією атмосферної тритійованої водяної пари на поверхні ґрунту. Як відзначав Сейкора [24], слабкі тривалі опади можуть призводити до більш високих концентрацій тритію в підземних водах, стоках, зливових стоках і ґрунтах, ніж потужні короточасні зливи.

Ступінь вилучення тритію з повітря атмосферними опадами, згідно Чамберлену і Еггלטону [25], може бути розрахована за виразом (14):

$$\chi = \chi_0 \exp(-\lambda t) \quad (14)$$

де: χ – концентрація домішок у повітрі через години t ; χ_0 – концентрація домішок у повітрі на початку вимивання; λ – коефіцієнт вимивання домішок з атмосфери.

Коефіцієнт вимивання являє собою константу, яка входить до рівняння зміни концентрації домішок у повітрі і відображає швидкість видалення тритію з повітря дощем або снігом і, згідно [26] для дощу визначається на рівні $n \times 10^{-4} \text{ с}^{-1}$ та для снігопаду інтенсивністю $1 \text{ мм} \times \text{год}^{-1}$ (водний еквівалент) на рівні $2,1 \times 10^{-5} \text{ с}^{-1}$ – $2,6 \times 10^{-5} \text{ с}^{-1}$ [27].

Концентрація тритію в масі поверхневих вод або у ґрунтовій поровій воді, відображає динамічну рівновагу між концентрації тритію у повітрі та воді і залежить від періоду водообміну у водоймі або у поверхневій ґрунтовій волозі. Так, тривалість водообміну в поверхневому ґрунті вимірюється місяцями, в ставках та озерах він коливається від тижнів до сотень років залежно від їх об'єму та динаміки розвантаження, в той час як у глибинних горизонтах може коливатися в межах від одного до тисячі років.

В динамічних водних системах відбувається майже миттєве розбавлення вилученої з повітря пари НТО проточною водою і подальша геохімічна історія таких надходжень цілком залежить від гідрологічної історії цих систем. Оскільки обмін між водою річкових систем та атмосферою регулюється природними процесами фазового переходу (випаровування, конденсації тощо) і осадженням, перенос тритію залежить від його концентрації в повітрі та воді, а конденсована фаза може дещо збагачуватися за рахунок ізотопного фракціонування. Обмін між тритійованою водою та донними відкладами в основному регулюється динамікою потоку води, яка збагачена тритієм, що обумовлюється незначною взаємодією між водою і твердими частинками.

За даними моніторингу поверхневих природних водойм України, вміст тритію у річках Псьол, Ворскла, Інгулець та Інгул, гідравлічно не з'єднаних із скидними каналами АЕС, не перевищує $8\text{--}14 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$ і може вважатися як фоновий, обумовлений глобальним колообігом важкого ізотопу водню [28]. Дещо інші концентрації тритію встановлюються при моніторингу в річках, де є гідравлічний зв'язок зі скидними каналами АЕС України (рис. 3). Встановлено, що в зоні впливу Рівненської АЕС у воді річки Стир на вхідному

(вище АЕС за течією) та вихідному (нижче за течією) створах концентрації тритію у воді коливалися від $6 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$ до $50 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$. В зоні впливу Хмельницької АЕС вміст тритію у воді р. Горинь у середньому на вихідному створі в осінньо-зимову межень може дорівнювати $14 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$, у літню межень – $24 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$, у весняну повінь – $10 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$. На створах ЗАЕС у воді р. Дніпро до знищення дамби Каховського водосховища спостерігалися коливання концентрації тритію в літню і осінню межень від 16 до $40 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$.

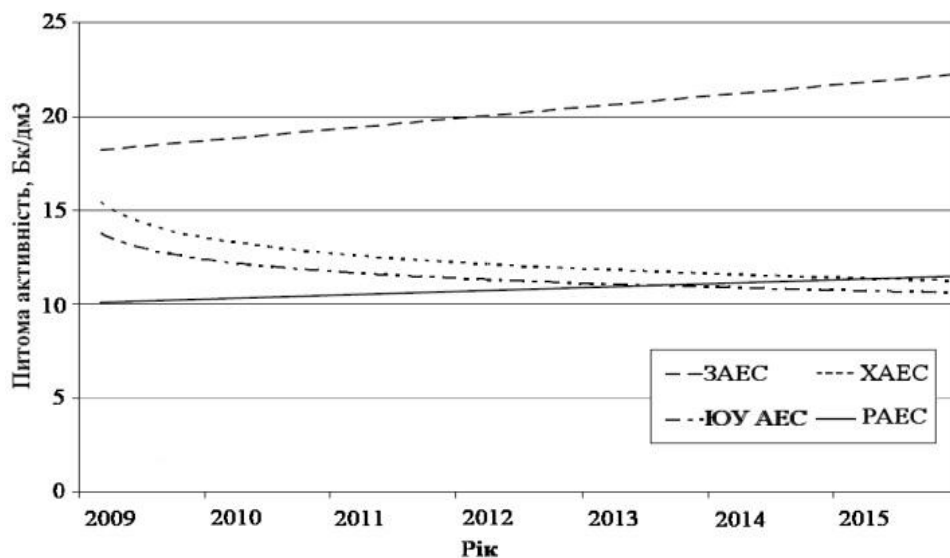


Рис. 3. Динаміка і прогноз вмісту тритію у вихідних створах АЕС України на річках Горинь, Стир, П. Буг і Каховському водосховищі, $\text{Бк} \times \text{дм}^{-3}$. ЗАЕС, ХАЕС, ЮУАЕС, РАЕС – Запорізька, Хмельницька, Південно-Українська та Рівненська АЕС [28] / Fig. 3. Dynamics and forecast of tritium content in the outlet of Ukrainian NPPs on the Goryn, Styr, P. Bug rivers and Kakhovka reservoir, $\text{Bq} \times \text{dm}^{-3}$. ZNPP, KhNPP, SUNPP, RNPP – Zaporizhzhya, Khmelnytsky, South Ukrainian and Rivne NPPs [28]

Майже такими ж були встановлені межі коливань концентрації тритію у воді р. Південний Буг в зоні впливу ПУАЕС – від 7 до $30 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$.

У воді Київського та Канівського водосховищ Дніпровського каскаду та р. Прип'ять концентрації тритію становили від 9 до $29 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$. Дещо більші концентрації тритію ($20\text{--}55 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$) були виявлені у воді р. Десна, що можна пояснити скидами зі Смоленської та Курської АЕС Російської Федерації.

Для всіх АЕС України характерним є те, що за рахунок рідинних скидів активність тритію в ставках-охолоджувачах та найближчих водоймах досягає декількох сотень $\text{Бк} \times \text{дм}^{-3}$. Технологічна продувка знижує активність тритію в ставках-охолоджувачах і збільшує її в прилеглих водоймах. Однак незначне забруднення цих водойм (до кількох десятків $\text{Бк} \times \text{дм}^{-3}$) має локальний характер.

Спостереженнями у 9 точках біля узбережжя о. Долобецький (м. Київ) в період з квітня 2009 р. до листопада 2010 р. встановлено, що вміст тритію у дніпровській воді в межах Київської

міської агломерації коливався від 5,4 до $17,7 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$ (в середньому $9,1 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$). Максимальні концентрації спостерігалися улітку, мінімальні – пізньої осені та ранньої весни і досить вірогідно, що ці показники суттєво не змінилися до цього часу.

Гідрогеоміграція тритію у підземних водоносних горизонтах. Серед усіх джерел підземних вод, які використовуються для питного водопостачання, найменша активність тритію спостерігається в артезіанських свердловинах. У воді зі свердловин м. Києва, що експлуатують сеноман-келовейський водоносний комплекс, середня питома активність тритію дорівнює $5,6 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$. Час надходження поверхневих вод до цього комплексу становить від 10 до 12 років. Дещо вищі значення активності тритію встановлено у воді криниць, які дренують значною мірою незахищені ґрунтові водоносні горизонти, – до $6,3 \pm 0,9 \text{ Бк} \times \text{дм}^{-3}$ [16].

В умовах недостатньої захищеності водоносних горизонтів суттєве збільшення концентрації тритію у підземних водах може відбуватися

внаслідок інфільтрації з поверхневих водних басейнів, особливо при техногенних аваріях на об'єктах ядерної енергетики та сховищах РАВ. Окрім значної кількості підприємств ядерного паливно-енергетичного комплексу (АЕС та підприємства з переробки ВЯП) у різних країнах світу споруджено і експлуатується 64 приповерхневих сховищ РАВ [29]. Будуються і виконуються роботи з проектування та визначення місць розташування ще 25 аналогічних сховищ.

Одним з шляхів впливу приповерхневих пунктів збереження РАВ на біосферу є гідрогеофільтрація тритійованої води крізь зону ненасиченої фільтрації (аерації) геологічного середовища, яка є природним і останнім бар'єром на шляху міграції цього нукліду до водоносних горизонтів. Як показує світова практика, при експлуатації ПЗРВ може відбуватися порушення щільності інженерних бар'єрів і потрапляння вологи в ємності з РАВ. За час довготривалого зберігання джерел іонізуючого випромінювання та інших радіоактивних матеріалів, що надходять з промислових, наукових та медичних установ, тритій може вивільнюватися із накопичених у сховищах радіоактивних матеріалів, утворюючи в присутності конденсаційної вологи тритійовану воду НТО. Експериментально показано [16], що леткі форми тритію можуть проникати не лише крізь найменші пори та щілини, але й дифундувати крізь бетон сховищ, метали, резину та полімерні матеріали і, таким чином, надходити в оточуюче середовище. Підтвердженням цього є свідчення у світових публікаціях про встановлення підвищених концентрацій тритію в підземних водах поблизу сховищ РАВ.

У 1993 році було виявлено витік тритію в ґрунтові води зі сховищ, розташованих у лісі Барткушкіс приблизно в 30 км від Вільнюса, столиці Литви, в місці з болотистим середовищем, чутливим до міграції радіонуклідів в біоті [30]. Встановлено, що тритій вивільнюється зі сховищ шляхом випаровування крізь бетон інженерних бар'єрів у ґрунт та шляхом вимивання тритію з раніше забруднених шарів зони ненасиченої фільтрації внаслідок підвищення рівня ґрунтових вод. Найвищі концентрації тритію в ґрунті спостерігалися в 2005 році, коли максимальна питома активність в ґрунтовій волозі дорівнювала близько 1×10^5 Бк $\times$ дм $^{-3}$.

На приповерхневому сховищі Шеффілд (США Іллінойс) внаслідок руйнування контейнерів у 1982 році відбулося вимивання тритію з розміщених там РАВ, що призвело до суттєвого підвищення концентрації тритію в поровій та ґрунтовій воді до $4,5 \times 10^4$ Бк $\times$ дм $^{-3}$ [31].

Головним сховищем Великобританії для утилізації радіоактивних відходів низького рівня є приповерхнєве ПЗРВ Дрігг, розташоване на

прибережній рівнині Західної Камбрії приблизно в 0,5 км від берега Ірландського моря. Основними інженерними спорудами є траншеї з бетонними стінами і основою з контрольованою дренажною системою [29]. Підвищені концентрації тритію у гідрогеофільтраційному потоці за межами інженерних бар'єрів були зафіксовані на рівнях від 4×10^5 Бк $\times$ дм $^{-3}$ до $3,8 \times 10^6$ Бк $\times$ дм $^{-3}$ та поступовим зниженням концентрації тритію до $1,3 \times 10^5$ Бк $\times$ дм $^{-3}$ після прийняття додаткових обмежувальних заходів [32].

Підвищені концентрації тритію виявлено також в місцях розміщення приповерхневих пунктів збереження РАВ Канади, Франції, Угорщини, Латвії. Зокрема, у підземних водах зони впливу сховища Center de la Manche (м. Шербург, Франція) концентрації тритію сягали $(17-20) \times 10^3$ Бк $\times$ дм $^{-3}$ (1997–2002 рр.) з наступним зменшенням до $(7-13) \times 10^3$ Бк $\times$ дм $^{-3}$ (2008 р.) [33]. Тритієве забруднення підземних вод у зоні впливу приповерхневого сховища РАВ Угорщини у 2008 р. сягало $n \times 10^4$ Бк $\times$ дм $^{-3}$ [34]. В підземних водах приповерхневого ПЗРВ Baldone (Латвія) у 1997 р. спостерігався підвищений (до 2×10^5 Бк $\times$ дм $^{-3}$) вміст тритію з поступовим (за 11 років) зменшенням до $(7-8) \times 10^3$ Бк $\times$ дм $^{-3}$ [35].

Діючі в Україні ПЗРВ, які були споруджені на початку 60-х років минулого століття із проектним строком використання біля 30 років, морально і технічно застаріли і є потенційним джерелом тритію в природно-техногенних системах. При проведенні радіоекологічних досліджень у місцях розміщення сховищ РАВ було виявлено поширення тритієвого забруднення в геологічному середовищі інфільтраційним гідрогеоміграційним шляхом [36]. В межах зони впливу ПЗРВ КДМСК УкрДО «Радон» довготривале функціонування гідрогеофільтраційного потоку тритію у системі «зона аерації – підземний водоносний горизонт» обумовило утворення мобільної і структурованої радіогідрогеохімічної аномалії, яка значно перевищує планові розміри ємностей РАВ і територію ПЗРВ [37]. При цьому, напрямок і інтенсивність гідрогеофільтраційних потоків тритію визначалися динамікою зміни інтенсивності витоку тритійованої води зі сховищ РАВ, а також особливостями палеорельєфу і геоструктурного плану поверхні водотривкого горизонту, який підстеляє перший від денної поверхні підземний водоносний горизонт.

Аналогічні явища виходу тритійованої води за межі інженерних бар'єрів були зафіксовані також на інших ПЗРВ України. Так, на Харківському ДМСК рівень забруднення підземного водоносного горизонту в контурі $n \times 10^5$ Бк $\times$ дм $^{-3}$ тритію вийшов за межі території ПЗРВ з подальшим поступовим зменшенням його концентрації у

першому водоносному горизонті [38]. Разом з тим, встановлюється проникнення тритійованої води крізь місцевий водотривкий горизонт у другий водоносний горизонт.

На Дніпропетровському ДМСК під час виконання співробітниками відділу біогеохімії ІГНС НАН України радіоекологічної оцінки захищеності прилеглих територій виявлено радіогідрогеохімічну аномалію під сховищами РАВ в зоні ненасиченої фільтрації [37]. В чорноземі (верхній частині ґрунтового профілю) та лесовидних супісках концентрація тритію складала до $(4,5-5,5) \times 10^3$ Бк $\times$ дм $^{-3}$. При цьому, адсорбційні властивості геологічного середовища дозволили захистити першій від поверхні водоносний горизонт, в якому безпосередньо під радіогідрогеохімічною аномалією, сформований в зоні аерації, концентрація тритію не перевищувала 55–110 Бк $\times$ дм $^{-3}$.

Таким чином, значним джерелом надходження тритію у підземні води наразі є сховища з високою концентрацією РАВ, де існуючі інженерні споруди не достатньо забезпечують надійність ізоляції накопичених у сховищах забруднених тритієм вод від геологічного середовища і яке, в даному разі, слугує останнім бар'єром на шляху гідрогеофільтраційної міграції тритію та довготривалим депозитарієм цього радіоактивного ізотопу водню.

Висновки. 1. Тритій, утворений внаслідок природних чи техногенних процесів, включається в міграційні потоки в залежності від форм його знаходження – газової (НТ), водної (НТО) та органічно зв'язаної (ОЗТ). Відповідно до цих форм відбувається перерозподіл тритію між різними компонентами природно-техногенних біогеосистем. Включаючись в різноманітні рухи атмосфери, поверхневих і підземних потоків, тритій поширюється в навколишньому середовищі згідно закономірностей колообігу водню в природі.

2. При атмогеоміграції зменшення концентрації тритію відбувається згідно законів дифузії у повітряних шлейфах. Частина тритію з атмосферними опадами потрапляє на поверхню водойм, де розбавляється до фонових концентрацій, на рослинність та ґрунт. Подальша геохімічна історія цих випадін визначається законами біогеохімічної та гідрогеохімічної міграції і включенням у короткостроковий і довгостроковий колообіг у біосфері.

3. Встановлено, що поширення атмогеохімічної аномалії тритію частково залежить від

узагальненої за контрольний період рози вітрів. Більш значуще на інтенсивність і напрямок атмогеохімічної міграції тритію впливають конструктивні особливості конфайнменту, геоморфологічні та ландшафтно-геохімічні чинники (форми рельєфу, тип і структура лісової екосистеми) та наявність технологічних приміщень, що відіграють роль природних та техногенних бар'єрів на шляху руху повітряних мас.

4. Тритій, як ізотоп водню, бере участь в усіх процесах біогеоміграції, що визначається біологічною роллю води та органічної речовини. Основними шляхами надходження тритію в рослини є засвоєння водної і парової фаз НТО, що переносяться при атмогеохімічній міграції та вимиваються з повітря атмосферними опадами.

Основні біофізичні процеси, що визначають біогеоміграцію тритію:

- початкове осаджування на поверхню ґрунту і рослинність;
- перетворення НТ в НТО в ґрунті шляхом бактеріального окиснення;
- поглинання НТО рослинами з перетворенням частини НТО в органічно зв'язану форму (ОЗТ);
- транспортування НТО в ґрунті та поглинання НТО корінням;
- реемісія НТО в атмосферу з ґрунту і рослин.

5. Гідрогеохімічна міграція тритію у поверхневих водоймах і водотоках обумовлює його розбавлення до фонових концентрацій. У скидах АЕС України в рр. Дніпро (Каховське водосховище), Горинь, Стир, П. Буг на вихідних, нижче за течією, створах концентрації тритію на перевищують 20–50 Бк $\times$ дм $^{-3}$.

6. Визначено головні фактори, що впливають на формування гідрогеофільтраційного потоку тритію в геологічному середовищі. До них відносяться: інтенсивність виходу тритійованої води зі сховищ РАВ, гідравлічна проникність, гідрофізичні параметри та мінеральний склад зони ненасиченої фільтрації, рельєф поверхні водотривкого горизонту та сезонні коливання надходження атмосферних опадів до місцевого водоносного горизонту. Довготривале функціонування гідрогеофільтраційних потоків тритію у системі «зона аерації – підземний водоносний горизонт» обумовлює його виявлення на відстанях, що значно перевищують планові розміри ємностей і території пунктів збереження радіоактивних відходів.

Список використаних джерел

1. Harteck, P. (1954). The relative abundance of HT and HTO in the atmosphere. *Journal of Chemical Physics*, 22(10), 1746–1751. <https://doi.org/10.1063/1.1740404>
2. Jacobs, D. G. (1968). Sources of tritium and its behavior upon release to the environment (AEC Critical Review Series). Oak Ridge, TN: U.S. Atomic Energy Commission. <https://doi.org/10.2172/4799828>

3. Burger, L. L. (1976). The conversion of tritiated hydrogen to water in the atmosphere. Pacific Northwest Laboratories. <https://digital.library.unt.edu/ark:/67531/metadc1445044/>
4. Delaporte-Mathurin, R., Goles, N., Ball, J., Dunn, C., Edwards, E., Ferry, S., Lamere, E., Lanzrath, A., Leccacorvi, R., Meschini, S., Peterson, E., Segantin, S., Vieira, R., Whyte, D., Zhou, W., & Woller, K. (2024). Advancing tritium self-sufficiency in fusion power plants: Insights from the BABY experiment. arXiv preprint arXiv:2412.02721. <https://arxiv.org/abs/2412.02721>
5. Yang, J. Y., & Gevantman, L. R. (1964). Tritium β -radiation-induced isotopic exchange with water vapor. *The Journal of Physical Chemistry*, 68(11), 3115–3119. <https://doi.org/10.1021/j100793a005>
6. McFarlane, J. C., Rodgers, R. D., & Bradley Jr., D. V. (1979). Tritium oxidation in surface soils: A survey of soils near five fuel reprocessing plants. *Environmental Science & Technology*, 13(5), 607–608.
7. World Health Organization. (1983). *Environmental health criteria 25: Selected radionuclides – Tritium*. Geneva: WHO.
8. International Atomic Energy Agency. (2001). *Generic models for use in assessing the impact of discharges of radioactive substances to the environment (Safety Reports Series No. 19)*. Vienna: IAEA.
9. Chakin, V., Rolli, R., Gaisin, R., & van Renterghem, W. (2023). Tritium desorption behavior and microstructure evolution of beryllium irradiated at low temperature up to high neutron dose in BR2 reactor. *Journal of Nuclear Engineering*, 4(3), 552–564. <https://doi.org/10.3390/jne4030036>
10. Matiatos, I., Tsangaratos, P., Copia, L., & Araguás-Araguás, L. (2025). Revisiting the historical tritium levels in precipitation in Greece—Preliminary assessment of groundwater transit times. *Journal of Environmental Radioactivity*. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2025.107619>
11. Beyerle, U., Aeschbach-Hertig, W., Hofer, M., et al. (1999). Infiltration of river water to a shallow aquifer investigated with $3\text{H}/3\text{He}$, noble gases, and CFCs. *Journal of Hydrology*, 220(3–4), 169–185.
12. Chaparro, M. C., & Saaltink, M. W. (2022). Tritium transport in non-saturated concrete under temperature fluctuations. *Journal of Environmental Radioactivity*, 251–252, 106969. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2022.106969>
13. Glugla, M., Murdoch, D. K., Antipenkov, A., et al. (2006). ITER fuel cycle R&D: Consequences for the design. *Fusion Engineering and Design*, 81(1–4), 733–744.
14. Pasquill, F. (1962). *Atmospheric diffusion: The dispersion of windborne material from industrial and other sources*. London: Van Nostrand Reinhold.
15. Пушкар'юв, О. В., Пушкар'юва, Р. О., Яковлев, Є. О., Колтунов, Б. Г., & Приймаченко, В. М. (2004). Атмосферна міграція тритію зі сховищ радіоактивних відходів і його розподіл у ґрунтово-рослинному комплексі. *Мінеральні ресурси України*, (1), 39–41.
16. Долін, В. В., Пушкар'юв, О. В., Шраменко, І. Ф., та ін. (2012). *Тритій в біосфері*. Київ: Наукова думка.
17. Butler, H. L. (1963). Tritium hazards in heavy-water-moderated reactors. *Nuclear Safety*, 4(3), 77–82.
18. Mattle, N., Kinzelbach, W., et al. (2001). Exploring an aquifer system by integrating hydraulic, hydrogeologic, and environmental tracer data in a three-dimensional hydrodynamic transport model. *Journal of Hydrology*, 242(3–4), 183–196.
19. International Atomic Energy Agency. (2014). *Transfer of tritium in the environment after accidental releases from nuclear facilities (IAEA-TECDOC-1738)*. Vienna: IAEA.
20. Pasler, V., Arbeiter, F., Klein, C., Klimenko, D., & Schlindwein, G. (2021). Development of a component-level hydrogen transport model with OpenFOAM and application to tritium transport inside a DEMO HCPB breeder. *Applied Sciences*, 11(8), 3481. <https://doi.org/10.3390/app11083481>
21. National Council on Radiation Protection and Measurements. (1979). *Tritium in the environment (NCRP Report No. 62)*. Bethesda, MD: NCRP.
22. Östlund, H. G., & Fine, R. A. (1979). Oceanic distribution and transport of tritium. In *Behavior of Tritium in the Environment* (314–324). Vienna: IAEA.
23. Oms, P. E., Bailly Du Bois, P., Dumas, F., et al. (2019). Inventory and distribution of tritium in the oceans in 2016. *Science of the Total Environment*, 656, 1289–1303.
24. Sejkora, K. (2006). Atmospheric sources of tritium and potential implication to surface and groundwater monitoring efforts. In *Proceedings of the 16th Annual RETS-REMP Workshop* (26–28). Mashantucket.
25. Chamberlain, A. C., & Eggleton, A. E. J. (1964). Washout of tritiated water vapour by rain. *International Journal of Air and Water Pollution*, 8, 135–149.
26. Ebina, T., Rwaichi, J. A., Minja, I., Nagase, T., Onodera, Y., & Chatterjee, A. (2004). Correlation of hydraulic conductivity of clay-sand compacted specimens with clay properties. *Applied Clay Science*, 26, 3–12.
27. Davis, P. A. (1997). Tritium transfer parameters for the winter environment. *Journal of Environmental Radioactivity*, 36(2–3), 177–196.
28. Васильченко, В. М., Давидов, М. М., Масько, О. М., & Чернов, П. А. (2013). Моніторинг тритію в природних поверхневих водоймах України. *Ядерна енергетика та довкілля*, (1), 14–21. <https://doi.org/10.31717/2311-8253>
29. Han, K. W., Heinonen, J., & Bonne, A. (1997). *Radioactive waste disposal: Global experience and challenges*. IAEA Bulletin, 39(1), 33–41.
30. Gudelis, A., & Gorina, I. (2015). On release of radionuclides from a near-surface radioactive waste repository to the environment. *Nukleonika*, 60(3), 551–555.

31. Peters, C. A., Striegl, R. G., Mills, P. C., & Healy, R. W. (1992). *Effects of low-level radioactive-waste disposal on water chemistry in the unsaturated zone at a site near Sheffield, Illinois, 1982–84*. U.S. Geological Survey Water-Supply Paper, 80.
32. LLW Repository Ltd. (2010). *Review of leachate, groundwater and surface water monitoring (RP/DR-GEN/PROJ/00035, Issue 2)*.
33. ANDRA. (2009). *Centre de stockage de la Manche: Rapport annuel 2008*. Beaumont-Hague: ANDRA.
34. Ormai, P. (2009). *Surveillance of non-radiological parameters: Planning of the post-closure surveillance programme*. In *Proceedings of the IAEA/ANDRA International Workshop on Post-operational Environmental Monitoring and Surveillance of Disposal Facilities for Radioactive Waste (22–25)*. Cherbourg, France.
35. BAPA. (2009). *Atskaite radioaktīvo atkritumu glabātavas „Radons” valsts nozīmes jonizējošā starojuma objektu kontroles programmas izpilde 2008. gadā (158 p.)*. Riga, Latvia: BAPA.
36. Vagner, I., Varlam, C., Faurescu, I., Faurescu, D., & Bogdan, D. (2024). *Tritium behavior from vine to wine*. *Applied Sciences*, 14(13), 5478. <https://doi.org/10.3390/app14135478>
37. Пушкаръов, О. В., Яковлев, С. О., Пушкаръова, Р. О., Колтунов, Б. Г., Летучий, О. М., та ін. (2003). *Гідрогео-міграція тритію в місцях розміщення сховищ РАВ. Мінеральні ресурси України*, (2), 38–40.
38. Коваленко, Г. Д. (2013). *Радиоэкология Украины (344)*. Харків: ІД «Інжсек».

Внесок авторів: всі автори зробили рівний внесок у цю роботу

Конфлікт інтересів: автори повідомляють про відсутність конфлікту інтересів

Migration of tritium in the components of the natural environment

Oleksandr Pushkarov¹

DSc (Geology), Senior Researcher, Leading Researcher,

¹ SE “Institute of Environmental Geochemistry of the NAS of Ukraine”, Kyiv, Ukraine;

Iryna Sevruk¹

PhD (Geology), Senior Researcher, Deputy Director;

Ivan Shramenko¹

PhD (Geology and Mineralogy), Senior Researcher, Leading Researcher;

Oleksandr Zubko¹

Researcher;

Volodymyr Viter¹

PhD (Chemical), Head of the laboratory

ABSTRACT

Formulation of the problem. Tritium formed as a result of natural or man-made processes is included in migration flows depending on the forms of its presence – gaseous (NT), aqueous (NTO) and organically bound (OZT). According to these forms, tritium is redistributed among various components of the natural environment and distributed in the environment according to the laws of the hydrogen cycle in nature.

Materials and methods. During atmospheric transport, the tritium concentration decreases according to the laws of diffusion in air plumes. Part of tritium with atmospheric precipitation falls on the surface of water bodies, where it is diluted to background concentrations, on vegetation and soil. The further geochemical history of these precipitations is determined by the laws of biogeochemical and hydrogeochemical migration and inclusion in the short-term and long-term cycles in the biosphere.

Results. According to the results of monitoring the content of tritium in the snow cover and in atmospheric moisture in the zone of influence of radioactive waste preservation (SFRW) projects, it was determined that the formation of at-mo-geochemical anomalies of tritium depends on the constructive features of the confinement, geomorphological and landscape-geochemical factors (relief forms, type and structure of the forest ecosystem), the presence of technological premises, which play the role of natural and man-made barriers in the way of the movement of air masses, as well as from the wind rose generalized for the control period. Biogeochemical migration of tritium occurs with water from atmospheric precipitation in the soil-plant system. Tritium, like a hydrogen isotope, participates in all processes of biogeomigration, which is primarily determined by the biological role of water and organic matter. The main biophysical processes determining the biogeomigration of tritium include: initial deposition on the surface of the soil and vegetation, conversion of tritiated hydrogen (HT) into tritiated water (HTO) in the soil due to bacterial oxidation, absorption of HTO by plants with the conversion of a part of HTO into an organically bound form (OZT), transportation of HTO in soil and absorption of HTO by roots, re-emission of HTO into the atmosphere from soil and plants. Hydrogeochemical migration of tritium in surface reservoirs and watercourses causes its dilution to background concentrations. Yes, in discharges from the nuclear power plants of Ukraine in Dnipro (Kakhovsky Reservoir), Horyn, Styr, P. Bug on the weekend, downstream of the tritium concentrations exceed $20\div50 \text{ Bq}\cdot\text{dm}^{-3}$.

Conclusions. According to the results of radio-hydrogeological monitoring of the territories adjacent to the SFRW, the main factors influencing the formation of tritium hydrogeofiltration flows in the geological environment were determined. These include: the intensity of the release of tritiated water from RAW storage facilities, hydraulic permeability, hydrophysical parameters and the mineral composition of the zone of unsaturated filtration, the topography of the surface of the water-resistant horizon and seasonal fluctuations in the amount of atmospheric precipitation to the local aquifer. The long-term operation of tritium hydrogeofiltration flows in the system "aeration zone (ZA) – underground aquifer (SAW)" causes their spread to a distance that significantly exceeds the planned dimensions of the containers and the territory of the SFRW.

Keywords: tritium, forms of tritium detection, natural environment, atmospheric geomigration, biogeomigration, hydrogeomigration.

References

1. Harteck, P. (1954). The relative abundance of HT and HTO in the atmosphere. *Journal of Chemical Physics*, 22, 1746–1751.
2. Jacobs, D. G. (1968). Sources of tritium and its behavior upon release to the environment (AEC Critical Review Series). Oak Ridge, TN: USAEC. <https://doi.org/10.2172/4799828>
3. Burger, L. L. (1976). Conversion of tritiated hydrogen to water in the atmosphere (BNWL-2113). Richland, WA: Pacific Northwest Laboratories. <https://doi.org/10.2172/7330458>
4. Delaporte-Mathurin, R., Goles, N., Ball, J., Dunn, C., Edwards, E., Ferry, S., Lamere, E., Lanzrath, A., Leccacorvi, R., Meschini, S., Peterson, E., Segantin, S., Vieira, R., Whyte, D., Zhou, W., & Woller, K. (2024). Advancing tritium self-sufficiency in fusion power plants: Insights from the BABY experiment. *arXiv preprint arXiv:2412.02721*. <https://arxiv.org/abs/2412.02721>
5. Yang, J. Y., & Gevantman, L. R. (1964). Tritium β -radiation-induced isotopic exchange with water vapor. *Journal of Physical Chemistry*, 68(11), 3115–3119. <https://doi.org/10.1021/j100793a005>
6. McFarlane, J. C., Rodgers, R. D., & Bradley, D. V. Jr. (1978). Environmental tritium oxidation in surface soil. *Environmental Science & Technology*, 12(5), 590–593. <https://doi.org/10.1021/es60141a003>
7. World Health Organization. (1983). Environmental health criteria 25: Selected radionuclides – Tritium. Geneva: WHO. Retrieved from <https://www.inchem.org/documents/ehc/ehc/ehc25.htm>
8. International Atomic Energy Agency. (2001). Generic models for use in assessing the impact of discharges of radioactive substances to the environment (Safety Reports Series No. 19). Vienna: IAEA. Retrieved from <https://www.iaea.org/publications/6024/generic-models-for-use-in-assessing-the-impact-of-discharges-of-radioactive-substances-to-the-environment>
9. Chakin, V., Rolli, R., Gaisin, R., & van Renterghem, W. (2023). Tritium desorption behavior and microstructure evolution of beryllium irradiated at low temperature up to high neutron dose in BR2 reactor. *Journal of Nuclear Engineering*, 4(3), 552–564. <https://doi.org/10.3390/jne4030036>
10. Matiatos, I., Tsangaratos, P., Copia, L., & Araguás-Araguás, L. (2025). Revisiting the historical tritium levels in precipitation in Greece—Preliminary assessment of groundwater transit times. *Journal of Environmental Radioactivity*. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2025.107619>
11. Beyerle, U., Aeschbach-Hertig, W., Hofer, M., et al. (1999). Infiltration of river water to a shallow aquifer investigated with $3\text{H}/3\text{He}$, noble gases and CFCs. *Journal of Hydrology*, 220(3–4), 169–185.
12. Chaparro, M. C., & Saaltink, M. W. (2022). Tritium transport in non-saturated concrete under temperature fluctuations. *Journal of Environmental Radioactivity*, 251–252, 106969. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2022.106969>
13. Glugla, M., Murdoch, D. K., Antipenkov, A., et al. (2006). ITER fuel cycle R&D: Consequences for the design. *Fusion Engineering and Design*, 81(1–4), 733–744.
14. Pasquill, F. (1962). Atmospheric diffusion: The dispersion of windborne material from industrial and other sources. London: Van Nostrand.
15. Pushkarev, O. V., Pushkareva, R. O., Yakovlev, E. O., Koltunov, B. G., & Prymachenko, V. M. (2004). Atmogeomigration of tritium from radioactive waste storage facilities and its distribution in the soil-plant complex. *Mineral Resources of Ukraine*, (1), 39–41. [in Ukrainian]
16. Dolin, V. V., Pushkarev, O. V., Shramenko, I. F., et al. (2012). Tritium in the biosphere. Kyiv: Naukova Dumka. [in Ukrainian]
17. Butler, H. L. (1963). Tritium hazards in heavy-water-moderated reactors. *Nuclear Safety*, 4(3), 77–82.
18. Mattle, N., Kinzelbach, W., et al. (2001). Exploring an aquifer system by integrating hydraulic, hydrogeologic and environmental tracer data in a three-dimensional hydrodynamic transport model. *Journal of Hydrology*, 242(3–4), 183–196.
19. International Atomic Energy Agency. (2014). Transfer of tritium in the environment after accidental releases from nuclear facilities (IAEA-TECDOC-1738). Vienna: IAEA.
20. Pasler, V., Arbeiter, F., Klein, C., Klimenko, D., & Schlindwein, G. (2021). Development of a component-level hydrogen transport model with OpenFOAM and application to tritium transport inside a DEMO HCPB breeder. *Applied Sciences*, 11(8), 3481. <https://doi.org/10.3390/app11083481>
21. National Council on Radiation Protection and Measurements. (1979). Tritium in the environment (NCRP Report No. 62). Bethesda, MD: NCRP.

22. Östlund, H. G., & Fine, R. A. (1979). Oceanic distribution and transport of tritium. In *Behavior of Tritium in the Environment* (pp. 314–324). Vienna: IAEA.
23. Oms, P. E., Bailly Du Bois, P., Dumas, F., et al. (2019). Inventory and distribution of tritium in the oceans in 2016. *Science of the Total Environment*, 656, 1289–1303.
24. Sejkora, K. (2006). Atmospheric sources of tritium and potential implication to surface and groundwater monitoring efforts. In *Proceedings of the 16th Annual RETS-REMP Workshop* (pp. 26–28). Mashantucket, CT.
25. Chamberlain, A. C., & Eggleton, A. E. J. (1964). Washout of tritiated water vapour by rain. *International Journal of Air and Water Pollution*, 8, 135–149.
26. Ebina, T., Rwaichi, J. A., Minja, I., Nagase, T., Onodera, Y., & Chatterjee, A. (2004). Correlation of hydraulic conductivity of clay–sand compacted specimens with clay properties. *Applied Clay Science*, 26, 3–12.
27. Davis, P. A. (1997). Tritium transfer parameters for the winter environment. *Journal of Environmental Radioactivity*, 36(2–3), 177–196.
28. Vasylchenko, V. M., Davydov, M. M., Masko, O. M., & Chernov, P. A. (2013). Monitoring of tritium in natural surface waters of Ukraine. *Nuclear Energy and Environment*, (1), 14–21. <https://doi.org/10.31717/2311-8253> [in Ukrainian]
29. Han, K. W., Heinonen, J., & Bonne, A. (1997). Radioactive waste disposal: Global experience and challenges. *IAEA Bulletin*, 39(1), 33–41.
30. Gudelis, A., & Gorina, I. (2015). On release of radionuclides from a near-surface radioactive waste repository to the environment. *Nukleonika*, 60(3), 551–555.
31. Peters, C. A., Striegl, R. G., Mills, P. C., & Healy, R. W. (1992). Effects of low-level radioactive-waste disposal on water chemistry in the unsaturated zone at a site near Sheffield, Illinois, 1982–84 (U.S. Geological Survey Water-Supply Paper). Reston, VA: U.S. Geological Survey.
32. LLW Repository Ltd. (2010). Review of leachate, groundwater and surface water monitoring (RP/DR-GEN/PROJ/00035, 2).
33. ANDRA. (2009). Centre de stockage de la Manche: Rapport annuel 2008.
34. Ormai, P. (2009, September 22–25). Surveillance of non-radiological parameters: Planning of the post-closure surveillance programme. In *IAEA/ANDRA International Workshop on Post-operational Environmental Monitoring and Surveillance of Disposal Facilities for Radioactive Waste*, Cherbourg, France. Retrieved from https://www.iaea.org/OurWork/ST/NE/NEFW/WTS-Networks/DISPONET/disponetfiles/IntlWkp_Post_op%20Env_Monitoring_Surv_DisFac_RW_Cherbourg_FR2009/Surv_non-rad_parameters-PURAM.pdf
35. BAPA. (2009). Report on the implementation of the control program for ionizing radiation facilities of national significance at the “Radons” radioactive waste repository in 2008. Riga, Latvia: BAPA. [in Latvian]
36. Vagner, I., Varlam, C., Faurescu, I., Faurescu, D., & Bogdan, D. (2024). Tritium behavior from vine to wine. *Applied Sciences*, 14(13), 5478. <https://doi.org/10.3390/app14135478>
37. Pushkarev, O. V., Yakovlev, E. O., Pushkareva, R. O., Koltunov, B. G., & Letuchy, O. M. (2003). Hydrogeomigration of tritium in the locations of radioactive waste storage facilities. *Mineral Resources of Ukraine*, (2), 38–40. [in Ukrainian]
38. Kovalenko, G. D. (2013). Radioecology of Ukraine. Kharkiv: ID “Inzhek”.

Authors Contribution: All authors have contributed equally to this work

Conflict of Interest: The authors declare no conflict of interest

Received 4 March 2025

Accepted 19 April 2025