GEO&BIO

2020 • vol. 19, pp 121–134
https://doi.org/10.15407/gb1912

Джерела тритію у природно-техногенних системах

О. В. Пушкарьов

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

Sources of tritium in natural-technogenic systems. — **O. V. Pushkar'ov.** — The radioactive decay of tritium is caused by the β-decay of one of the two neutrons in the nucleus of the hydrogen isotope atom (triton) into a proton, electron, and electron antineutrino with the formation of a monatomic gas and a half-life of 12.33 years due to a change in the quark structure of the neutron. The average energy of a β-particle is 5.7 keV. Tritium is formed by natural and man-made paths. Natural tritium occurs as a result of the collision of high-energy particles of the solar wind (neutrons, protons, deuterons) with air molecules in Earth's atmosphere. The total amount of cosmogenic tritium in the hydrosphere and atmosphere is about 2.7 kg. The formation of technogenic tritium began as a result of atmospheric testing of nuclear and thermonuclear weapons and continued with the production of electricity at nuclear power plants. "Bomb" tritium is evenly dispersed in the biosphere as a result of planetary air and gulf stream. The current "bomb" tritium residue in the biosphere is about 23.3 kg, of which 65 % are dissolved in the oceans and 35 % are distributed between the land and the atmosphere. The generation of tritium at nuclear power plants corresponds to the dynamics of the power of nuclear reactors and depends on their types and lifetime. In nuclear reactors, tritium is formed as a result of triple fission of fuel nuclei, capture of neutrons by B and Li nuclei, and as a result of the (n, γ)-reaction on deuterium nuclei in the reactor coolant. According to the estimates of the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, as of August 2019, in the nuclear reactors of nuclear power plants in the world (taking into account their service life) the production of tritium, normalized to power generation capacity, was $2{,}85 \cdot 10^{18}$ bq (7.5 kg). Plants for the reprocessing of spent nuclear fuel are also an important source of tritium entering the environment. Of these, 25 % of tritium in gas-aerosol forms enters the atmosphere and up to 75 % in liquid form (NTO) is discharged into the surface and ground waters. In general, the release of tritium into the environment from nuclear power plants (nuclear power plants and plants for reprocessing spent fuel) can be $1.26 \cdot 10^{18}$ Bq · year^{-1} (3.5 kg · year^{-1}). This is more than 20 times higher than its annual formation from natural sources (0.15 kg · year^{-1}) and may cause the annual doubling of the total tritium reserve in the biosphere.

Key words: tritium, sources, NPP, nuclear reactor, biosphere, atmosphere, hydrosphere.

Вступ

Упродовж довгого періоду існування Землі майже єдиним чинником утворення тритію були космогенні процеси в атмосфері. За цей час в біосфері сформувався динамічний баланс «утворення — розпаду» радіоактивного ізотопу водню. Знаходження тритію в атмосфері, мінеральному середовищі, поверхневих і підземних водах визначалося лише природними механізмами його утворення, спонтанного розпаду та закономірностями кругообігу води в природі. Випробування ядерної і термоядерної зброї та початок функціонування АЕС і супутніх підприємств ядерного паливно-енергетичного комплексу суттєво змінили вміст та розподіл тритію в компонентах біосфери. Утворений у ядерному реакторі тритій частково викидається в атмосферу та, головним чином, скидається в гідросферу. Значна частина тритію надходить в навколишнє середовище в процесі перероблення відпрацьованого ядерного палива. Певний внесок тритію у водне середовище створюють приповерхневі сховища радіоактивних матеріалів різного походження.

Потужним джерелом тритію можуть невдовзі стати термоядерні реактори, розробка яких розпочалася в 1951 році. Наукові і експериментальні дослідження в цьому напрямку виконуються в провідних країнах світу і наразі вже отримані перші практичні результати на експериментальному устаткуванні в США, Німеччині та Великій Британії. Ймовірно, що з розвитком термоядерної енергетики кількість тритію в біосфері щорічно подвоюватиметься.

Correspondence to: O. V. Pushkar'ov; Institute of Geochemistry of Environment, NAS of Ukraine; Academician Palladin Prospect 34 a, Kyiv-142, Kyiv, 03680 Ukraine; e-mail: pushkarevigns@gmail.com; orcid: 0000-0002-4382-8620

Негативний вплив тритію на стан біосфери, пов'язаний з розвитком ядерної енергетики спонукає Європейську спільноту більш прискіпливо відноситися до радіоактивного ізотопу водню. Затвердження на рівні Єврокомісії спеціальної дослідницької програми «Cross-cutting support to improved knowledge on tritium management in fission and fusion facilities» свідчить про нагальну необхідність проведення різнобічного вивчення поводження тритію у біогеосистемах[1]. Одним з аспектів рекомендованих досліджень є вивчення міграції тритію від первинних джерел та оцінка розподілу тритію між компонентами природно-техногенних систем.

Метою роботи є систематизація та узагальнення різнорідної інформації, щодо джерел та процесів утворення тритію, як первинної ланки геохімічної міграції цього радіоактивного ізотопу водню в природно-техногенних системах.

Фізичні властивості тритію

Вільний молекулярний тритій — це радіоактивний газ з двоатомною молекулою $^3H_2$, для спрощеного відображення якої зазвичай використовується символ T_2. Поведінка тритію у біосфері та особливості його використання в різних галузях науки і техніки обумовлені перш за все властивостями ядра тритію (тритону) та його відмінностями від протону, ядра найбільш розповсюдженого в природі ізотопу водню — протію (99,985 %) та дейтрона, ядра стабільного важкого ізотопу водню — дейтерію (0,015 %).

Ядро атома тритію масою 3,01605 а.о.м. складено з одного протону, тому його заряд дорівнює 1 та двох нейтронів. Енергія зв'язку між нуклонами дорівнює 8,1–8,4 МеВ (Otten *et al.* 2006), тобто на одну частинку припадає 2,7–2,8 МеВ, що значно менше, ніж в ядрі гелію. Внаслідок радіоактивного розпаду тритій перетворюється у моноатомний газ ^3_2He (рис. 1) з періодом напіврозпаду 12,33 року (Lensky 1981).

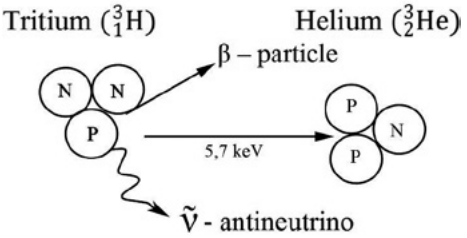

Рис. 1. Схема радіоактивного розпаду тритію. *N* — нейтрон, *P* — протон.

Fig. 1. The scheme of radioactive decay of tritium. *N* — neutron, *P* — proton

Дочірній ^3He стабільний, легший за звичайний ^4He. Ця реакція є єдиним джерелом утворення ^3He тобто увесь легкий ізотоп гелію, що накопичився за довгу історію Землі є маркером тої кількості тритію, що була утворена за цей час. Енергія, що виділяється при розпаді тритію є константою і дорівнює 18,6 кеВ, але вона розподіляється між β-частинкою та антинейтрино. В результаті не всі β-частинки мають однакову енергію. Середня енергія β-частинки, що утворилася при розпаді тритію, становить 5,7 кеВ (Lensky 1981). Оскільки нейтрон важче протона на 1,293 332 МеВ, або 0,001 388 а.о.м., то він може розпадатися у вільному стані (Green & Thompson 1990; Wietfeldt & Greene 2011). Єдиним каналом розпаду, дозволеним законами збереження енергії, електричного заряду, баріонного і лептонного квантових чисел є β-розпад нейтрона на протон, електрон і електронне антинейтрино (1) (Harteck 1954).

$$^1_0n \rightarrow {}^1_1p + e^- + \bar{\upsilon} \qquad (1)$$

Бета-розпад нейтрона був передбачений Ф. Жоліо-Кюрі в 1934 і відкритий в 1948–1950 рр. незалежно А. Снеллом, Дж. Робсоном та П. Е. Співаком (Tritium... 1979). Було встановлено, що спектр кінетичної енергії електрона, яка лежить в діапазоні від 0 до 782,318 кеВ. Час життя вільного нейтрона становить 880,1 ± 1,1 секунди, що відповідає періоду напіврозпаду 611 ± 0,8 с.

[1] *Euratom Work Programme*, 2016. NFRP-2016-2017. https://bit.ly/2EvzAUM

У фізиці елементарних часток вважається надійно встановленим, що нейтрон є пов'язаним станом трьох кварків (Kokkede 1971): одного u-кварка і двох d-кварків (кваркова структура udd). Близькість значень мас протона і нейтрона обумовлена властивістю наближеної ізотопічної інваріантності. При перетворенні нейтрона в протон один d-кварк замінюється на u-кварк (рис. 2) з утворенням кваркової структури uud. Оскільки маси цих кварків дуже близькі, така заміна слабо позначається на масі складової частинки.

На кварковому рівні β-розпад нейтрона може бути описаний як перетворення одного з d-кварків в u-кварк з випусканням віртуального W-бозона, який негайно розпадається на електрон і електронне антинейтрино. Вивчення розпаду вільного нейтрона важливо для уточнення властивостей слабкої взаємодії, а також пошуку порушень тимчасової інваріантності, нейтрон-антинейтронних осциляцій тощо.

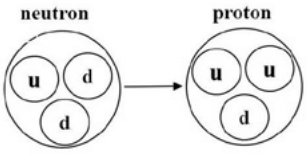

Рис. 2. Зміна кваркової структури нейтрону при його перетворенні в протон.

Fig. 2. Changing the quark's structure of neutron when its converting into a proton.

Упродовж довгого періоду існування Землі майже єдиним чинником утворення тритію були космогенні процеси в атмосфері. За цей час в біосфері сформувався динамічний баланс «утворення — розпаду» радіоактивного ізотопу водню. Знаходження тритію в атмосфері, мінеральному середовищі, поверхневих і підземних водах визначалося лише природними механізмами його утворення, спонтанного розпаду та закономірностями кругообігу води в природі. Випробування ядерної і термоядерної зброї та початок функціонування АЕС і супутніх підприємств ядерного паливно-енергетичного комплексу суттєво змінили вміст та розподіл тритію в компонентах біосфери.

Утворення тритію природним шляхом

Завдяки дослідженням лауреата Нобелівської премії У. Ф. Ліббі (Libby 1946) та інших видатних вчених встановлено, що тритій може утворюватися в атмосфері внаслідок безперервного зштовхування високоенергетичних елементарних частинок сонячного вітру (нейтронів, протонів, дейтронів) з молекулами повітря у земній атмосфері за реакціями (2–4):

$$ {}^{14}_{7}N + {}^{1}_{0}n \rightarrow {}^{3}_{1}H + {}^{12}_{6}C \qquad (2) $$

$$ {}^{14}_{7}N + {}^{1}_{1}H \rightarrow {}^{3}_{1}H + \textit{уламки} \qquad (3) $$

$$ {}^{2}_{1}H + {}^{2}_{1}H \rightarrow {}^{3}_{1}H + {}^{1}_{1}H \qquad (4) $$

Швидкість утворення тритію в атмосфері Землі складає (0,12 ± 0,05) · см$^{-2}$ · сек$^{-1}$ атомів тритію, тобто 5,4 · 10^{16} Бк рік$^{-1}$ (Martin 2000).

Утворені під впливом космічного випромінювання атоми тритію мають високу кінетичну енергію і легко окислюються киснем до утворення молекул НТО. Цей процес обумовлюється ланцюговим перетворенням НТ в НТО за участі фотохімічних реакцій (Harteck 1954; Burger 1976). 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 з утворенням радикала OT^-, який поєднується з воднем атмосфери, утворюючи НТО.

Поряд з тим, утворені внаслідок космічного випромінювання атоми тритію можуть неодноразово вільно зштовхуватися з атомами водню, що приводить до відновлення кількості молекул НТ згідно з обмінними реакціями типу (5):

$$ H_2 + T \rightarrow HT + H \qquad (5) $$

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 (Jacobs 1968). В цілому, атмосферне окислення космогенного НТ в НТО відбувається повільно з періодом трансформації понад 5 років (McFarlane *et al.* 1979).

Тритійована водяна пара з утвореним внаслідок трансформаційних реакцій співвідношенням НТ/НТО переноситься зі стратосфери в тропосферу приблизно з півперіодом в 1 рік. У свою чергу, 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. 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 океані протягом року (Östlund & Fine 1979). Після осадження на поверхні океану у верхньому змішаному шарі тритійована вода розбавляється. Надалі частка НТО випаровується назад в атмосферу при набагато меншій концентрації. Менша частина транспортується в глибини океану.

За сучасними оцінками кількість рівноважного космогенного тритію в гідросфері й атмосфері становить біля 2,7 кг ($9{,}6 \cdot 10^{17}$ **Бк**) (Tritium... 1979). При цьому близько 90 % природного тритію, головним чином у вигляді НТО знаходиться в гідросфері, в т.ч. до 65 % у світовому океані, 10 % у стратосфері (НТО) і 0,1 % у тропосфері (з них 50 % у вигляді НТ і декілька відсотків — у вигляді CH_3T).

Утворення техногенного тритію при ядерних та термоядерних випробуваннях

З початком «атомної» ери до механізмів утворення тритію природним шляхом у верхніх шарах земної атмосфери додалися нові джерела надходження тритію в біосферу. Випробування ядерної та термоядерної зброї в середині минулого століття стали головним джерелом техногенного тритію, який утворювався в значній кількості при ядерних і особливо при термоядерних вибухах (атмосферних, наземних і підземних) внаслідок реакцій ділення й синтезу. В атмосферних вибухах шляхом реакцій ділення утворювалося до $2{,}6 \cdot 10^{15}$ Бк тритію на 1 Мт потужності пристрою і, відповідно, $7{,}4 \cdot 10^{17}$ Бк при термоядерному синтезі (Miskel 1973). Утворений при цьому тритій майже повністю конвертується у тритієву воду НТО, яка змішується з природною водою, згідно з реакцією (6):

$$HT + H_2O \rightarrow HTO + H_2 \qquad (6)$$

Перше ядерне випробування ядерного заряду приблизно еквівалентного 20 кт у тротиловому еквіваленті було проведено Сполученими Штатами 16 липня 1945 р. в штаті Нью-Мексико[2]. Наступне ядерне випробування було проведено в СРСР 29 серпня 1949 р. І, починаючи з 1952 р., у ядерні випробування підключаються: Велика Британія, полігон Monte Bello Islands, Western Australia, Франція, 1960 р., полігон Регган на півдні Алжиру в пустелі Сахара (Bataille & Revol 2001), Китай, 1964 р., ядерний полігон Лоб-Нор (Lewis &Litai Xue 1991) та інші країни.

Перший термоядерний пристрій потужністю 10,4 Мт (в тротиловому еквіваленті) було випробувано США на атолі Еніветок (Маршаллові острови) у листопаді 1952 р., а перша воднева бомба в СРСР підірвана 12 серпня 1953 р. (близько 0,4 Мт в тротиловому еквіваленті). Випробування найбільшого термоядерного заряду («Цар-бомба» потужністю 58 Мт) проведено СРСР 30 жовтня 1961 р. Всього ядерними державами за період з 1945 по 1978 рр. проведено 422 випробування в атмосфері (рис. 3) з кумулятивною потужністю: 217 Мт ядерних боєзарядів і 328 Мт термоядерних пристроїв (UNSCEAR 2000).

Оскільки при вибухах ядерних боєприпасів утворюється $2{,}6 \cdot 10^{15}$ Бк · Мт$^{-1}$ ^{3}H, а при підриві заряду з термоядерним синтезом виділяється до $7{,}6 \cdot 10^{17}$ Бк · Мт$^{-1}$ ^{3}H (Podvig 1996) в результаті усіх випробувань в атмосферу надійшло $1{,}7 \cdot 10^{20}$ Бк (473,5 кг) тритію. Внаслідок

[2] Ядерное испытание. 2019. https://ru.wikipedia.org/wiki/

радіоактивного розпаду вміст «вибухового» тритію в біосфері зменшився і на даний час його залишок має складати біля 8,35 · 10^{18} Бк (23,3 кг).

Головна частина «бомбового» тритію розчинна у водах світового океану, де його розподіл визначився динамікою глобальних випадінь та спрямованістю і потужністю океанських водних течій (Östlund & Fine 1979).

За результатами моніторингових досліджень розподілу тритію, який потрапив у світовий океан після ядерних випробувань (Östlund & Fine 1979) встановлено (станом на 1979 р.), що більша його частина знаходиться в Тихому океані (73 кг 3H, в т.ч. 59 кг у його північній і 14 кг — в південній частинах) та в Атлантиці (73 кг 3H, в т.ч. 66 кг у північній та 7 кг у південній частинах), 6 кг 3H в Арктичному басейні і по 6 кг 3H в Індійському океані та в Антарктиці.

Максимальні концентрації НТО на поверхні Тихого й Атлантичного океанів, за виключенням зон випробувань, весною і влітку 1963 р. становили 3,6 Бк · $дм^{-3}$. В подальшому рівень оксиду тритію в атмосфері та гідросфері поступово зменшувався. Зниження концентрації тритію в опадах до кінця 60-х років проходило з періодом напіввиведення біля 1 року, але надалі уповільнилося (Vakulovsky *et al.* 1978).

Максимальні концентрації НТО на поверхні Тихого й Атлантичного океанів, за виключенням зон випробувань, весною і влітку 1963 р. становили 3,6 Бк · $дм^{-3}$. В подальшому рівень оксиду тритію в атмосфері та гідросфері поступово зменшувався. Зниження концентрації тритію в опадах до кінця 60-х років проходило з періодом напіввиведення біля 1 року, але надалі уповільнилося (Vakulovsky *et al.* 1978).

Головними транзитними шляхами, які обумовили перенесенні 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 1000 м — до 1,2 Бк · $дм^{-3}$ у північній частині Тихого Океану і

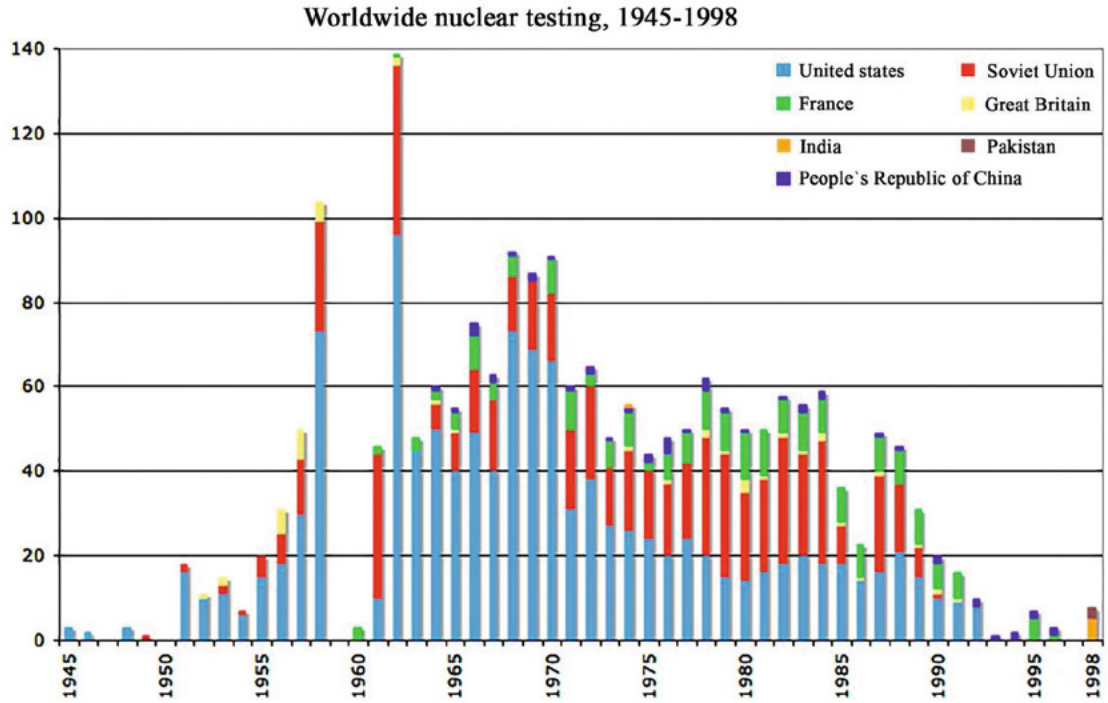

Рис. 3. Хронологія і кількісний розподіл ядерних випробувань[3]
Fig. 3. Chronology and quantitative distribution of nuclear tests.

[3] За даними з: *Ядерное испытание.* 2019. https://ru.wikipedia.org/wiki/

до 0,36 Бк · дм$^{-3}$ у західній Атлантиці (Östlund & Fine 1979). Отримані Остлундом і Файном аналітичні дані, підтверджені більш новітніми дослідженнями (Oms *et al.* 2019), дозволили встановити певну нерівномірність розподілу концентрацій тритію в водах світового океану і, використовуючи його як геохімічний індикатор, визначити деякі закономірності поверхневої і глибинної міграції великих водних мас, переміщення яких має великий вплив на світовий клімат.

Напрацювання тритію на об'єктах ядерного паливно-енергетичного комплексу

З припиненням ядерних випробувань і поступовим розпадом «вибухового» тритію головним джерелом надходження техногенного тритію в біосферу стають підприємства ядерної енергетики зокрема, ядерні реактори, заводи з регенерації ядерного палива, сховища відпрацьованого ядерного палива та радіоактивних матеріалів. Станом на 30 вересня 2019 року у 30 країнах світу експлуатували 191 атомну електростанцію (рис. 4) з працюючими 449 енергоблоками загальною електричною потужністю 399000 МВт (IAEA PRIS 2019).

Найбільший внесок в енергетичне забезпечення країн ядерні реактори складають у Франції (72 % загальної електричної потужності), Словаччині (55 %), Угорщині (50,6 %). На території України 5 діючих АЕС з 15 працюючими блоками забезпечують 55 % енергетичних потреб країни. Наразі іще 2 енергоблоки знаходяться в стадії будівництва.

При роботі АЕС тритій утворюється в реакторах в результаті потрійного поділу ядер палива, захопленні нейтронів ядрами B і Li, які перебувають в теплоносії водних реакторів, а також внаслідок (n, γ)-реакції на ядрах дейтерію в теплоносії (воді) (Investigation... 2009). Ядро урану зазвичай розпадається на два приблизно рівні уламки та декілька нейтронів. Проте, з вірогідністю 1 до 10 000 поділів ядро урану одноразово ділиться на три частини (потрійний поділ), одна з яких являє собою ядро атома тритію (тритон). При опроміненні ядер плутонію в активній зоні ядерних реакторів реакція виходу тритію втричі ефективніша, ніж при опроміненні урану. При цьому, у легководних, а також у газоохолоджувальних реакторах тритій переважно утворюється саме внаслідок потрійного поділу в реакторному паливі.

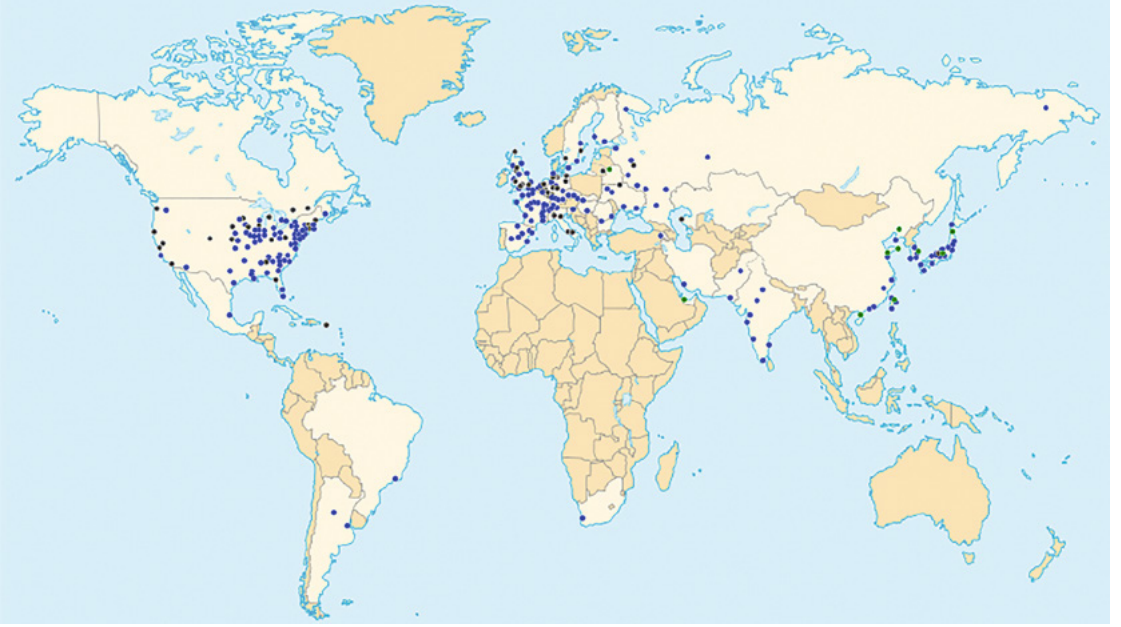

Рис. 4. Розподіл АЕС по країнах світу (за: Список АЭС мира. 2019: https://bit.ly/3juHux0).
Fig. 4. Distribution of nuclear power plants by countries of the world.

[4] IAEA PRIS. 2019. *The Database on Nuclear Power Reactors*. available at: https://www.iaea.org/pris/

Захоплення бором нейтрону призводить до утворення тритію за реакцією $^{10}B(n,2\alpha) \rightarrow {}^{3}H$. В результаті продукується $2{,}6 \cdot 10^{10}$ Бк · (МВт(ел.) · рік)$^{-1}$ (Investigation... 2009). Ця реакція залежить від концентрації борної кислоти у теплоносії, потоку нейтронів в активній зоні й часу опромінення. Деяка частина тритію в таких реакторах утворюється при нейтронному опроміненні ^{7}Li, який у вигляді LiOH використовується для контроля pH охолоджуючої рідини реактора в результаті реакції (7) (Locante & Malinowski 1973):

$$^{7}_{3}Li + ^{1}_{0}n \rightarrow ^{3}_{1}H + ^{4}_{2}He + ^{1}_{0}n \qquad (7)$$

У водних реакторах (PWR) тритій утворюється також шляхом активації дейтерію, присутнього у воді теплоносія та сповільнювача (Jones 2007). У зв'язку з невеликою кількістю дейтерію в природних водах ($D_2O : H_2O = 1{,}5 \cdot 10^{-4}$) і низькою ймовірністю захоплення ним нейтрона, це джерело тритію призводить до утворення $4 \cdot 10^{6}$ Бк · (МВт(ел.) · рік)$^{-1}$. Загалом, середня швидкість утворення тритію у легководних реакторах внаслідок поділу ядер становить $7{,}5 \cdot 10^{11}$ Бк · (МВт(ел.) · рік)$^{-1}$ та біля $(0{,}5–3{,}0) \cdot 10^{11}$ · МВт(ел.) · рік$^{-1}$ в результаті активації D, Li і B (табл. 1).

У важководних реакторах (HWR) важка вода (D_2O) використовується як сповільнювач, відбивач нейтронів і холодоагент (Butler 1963) і є основним джерелом тритію (табл. 1). У таких реакторах тритій утворюється переважно при нейтронному бомбардуванні дейтерію згідно з реакцією:

$$^{2}_{1}H + ^{1}_{0}n \rightarrow ^{3}_{1}H \qquad (8)$$

Окрім того, до $7{,}5 \cdot 10^{11}$ Бк · (МВт(ел.) · рік)$^{-1}$ тритію у важководних реакторах утворюється при реакціях потрійного поділу ядерного палива.

Таблиця 1. **Генерування тритію в ядерних реакторах, Бк · (МВт(ел.) · рік)$^{-1}$ (Investigation... 2009)**
Table 1. **Generation of tritium in nuclear reactors, Bq · (MW (el.) · year) $^{-1}$**

Джерело	PWR	BWR	HWR	GCR
Реакції поділу	$7{,}5 \cdot 10^{11}$	$7{,}5 \cdot 10^{11}$	$7{,}5 \cdot 10^{11}$	$7{,}5 \cdot 10^{11}$
Активація:				
– дейтерію	$4 \cdot 10^{6}$	$4 \cdot 10^{8}$	$2{,}0 \cdot 10^{13}$	
– літію	$7{,}0 \cdot 10^{8}$			$2{,}0 \cdot 10^{10}$
– бору	$2{,}6 \cdot 10^{10}$	$3{,}0 \cdot 10^{11}$		
– гелію				$1{,}6 \cdot 10^{11}$
Всього	$8{,}0 \cdot 10^{11}$	$1{,}1 \cdot 10^{12}$	$2{,}0 \cdot 10^{13}$	$9{,}3 \cdot 10^{11}$

Примітка: PWR — водо-водяний ядерний реактор, BWR — корпусний киплячий реактор, HWR — важководний ядерний реактор, GCR — газоохолоджувальний реактор.

Note: PWR is a water-water nuclear reactor, BWR is a fluidized-bed reactor, HWR is a liquid-water nuclear reactor, GCR is a gas-cooled reactor.

У газоохолоджувальних реакторах типу GCR тритій напрацьовується головним чином внаслідок реакцій потрійного поділу ядерного палива в кількості $7{,}5 \cdot 10^{11}$ Бк · (МВт(ел.) · рік)$^{-1}$ (табл. 1), а також внаслідок нейтронного бомбардування Li, що знаходиться у графітовому сповільнювачі — до $2{,}0 \cdot 10^{10}$ Бк · (МВт(ел.) · рік)$^{-1}$. Використання гелію в якості холодоагенту призводить до утворення $(1{,}12{,}1) \cdot 10^{11}$ Бк · (МВт(ел.) · рік)$^{-1}$ тритію за реакцією $^{3}He(n,p) \rightarrow {}^{3}H$ (UNSCEAR 1977).

Реактори типу FBR **(БН), тобто** реактори-розмножувачі на швидких нейтронах (брідери) складають дуже незначну частину від загальної кількості реакторів у світі (один в Китаї і два в Російській Федерації). За своїми техніко-фізичними характеристиками є такими, що майже увесь напрацьований тритій (до 95 %) можуть утримувати в лужному розплаві в контурі теплоносія. Решта значною мірою викидається в атмосферу (до 97 %) і частково в гідросферу (3 %).

[5] IAEA PRIS. 2019. *The Database on Nuclear Power Reactors*. available at: https://www.iaea.org/pris/

Потужним джерелом тритію можуть невдовзі стати термоядерні реактори, розробка яких розпочалася в 1951 році. Дослідження в цьому напрямку виконуються в провідних країнах світу і наразі вже отримані перші практичні результати на експериментальному устаткуванні в США, Німеччині та Великій Британії (ITER... 2016). Для утворення плазми і отримання енергії в реакторах першого покоління типу ТОКАМАК та СТЕЛЛАРАТОР використовується реакція, яка відбувається при найнижчій з можливих температурі (Artsimovich 1961):

$$ {}_1^2H + {}_1^3H \rightarrow {}_2^4He + {}_0^1n + 17,6\,МеВ \qquad (9) $$

Два ядра, дейтрон і тритон зливаються з утворенням α-частинки (^{4}He) та високоенергетичного нейтрона, який надалі використовують для відтворення тритію при його взаємодії з літієвою оболонкою реактора (бланкета) за реакціями:

$$ {}_3^6Li + {}_0^1n \rightarrow {}_1^3H + {}_2^4He + 4,8\,МэВ \qquad (10) $$

$$ {}_3^7Li + {}_0^1n \rightarrow {}_1^3H + {}_2^4He + {}_0^1n - 2,7\,МэВ \qquad (11) $$

Обидва ізотопи літію широко розповсюджені в природі у відсотковому відношенні ^{6}Li : ^{7}Li = 7,5 : 92,5. Реакція з ^{6}Li є екзотермічною, що забезпечує отримання невеликої енергії для реактора. Реакція з ^{7}Li є ендотермічною, але не споживає нейтронів. Тритій, напрацьований з літію в процесі роботи реактора видаляють з бланкета при його нагріванні потоком гарячого гелію, а потім видаляють з гелію в цеху з очищення палива.

Утворення тритію очікується також в потужних нейтронних генераторах, які передбачається використовувати для трансмутації радіонуклідів з великим терміном напіврозпаду в короткоіснуючі нукліди (Hefele *et al.* 1988).

Емісія техногенного тритію з підприємств ядерного енергетичного комплексу

Тритій, утворений в ядерному реакторі, може перебувати у формах HTO, DTO, HT, T_2, тритідів металів, органічних похідних (Betti *et al.* 2004). Як і інші енергетичні системи, АЕС виділяє в навколишнє середовище напрацьовані в них забруднюючі речовини, серед яких важливе місце займає тритій. З реакторів і установок з перероблення відпрацьованого палива тритій виділяється або у вигляді прототритію (HT), або тритійованої води (HTO) внаслідок паро-газових викидів та рідких скидів, що потрапляють в атмосферу, поверхневі і підземні води.

За даними Всесвітньої ядерної асоціації та UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation) емісія тритію у природне середовище визначається джерелом його утворення, потужністю електрогенерації на ядерних реакторах та їх конструкційним типом (UNSCEAR 1977, 2000, 2016). Узагальнена оцінка таких зкидів, визначена для різних типів ядерних ректорів, наведена в табл. 2.

З урахуванням оцінок скидів тритію з реакторів, нормалізованих на потужність електрогенерації, терміну їх експлуатації та з урахуванням радіоактивного розпаду з АЕС світу станом на серпень 2019 р. у навколишнє середовище надійшло біля $1,1 \cdot 10^{17}$ Бк тритію (біля 300 г), в т.ч. викинуто в атмосферу до $2,8 \cdot 10^{16}$ Бк тритію (до 80 г) і до $7,8 \cdot 10^{16}$ Бк тритію (до 220 г) в гідросферу (табл. 3).

Таблиця 2. **Оцінка можливих скидів тритію з реакторів, нормалізована на потужність електрогенерації (МБк · (МВт · рік)$^{-1}$) (UNSCEAR 2016)**

Table 2. **Estimation of possible tritium discharges from reactors normalized to power generation capacity (MBq · (MW · year)$^{-1}$)**

Середовище скиду	Тип реактора				
	PWR	BWR	HWR	GCR	FBR
Атмосфера	$1,5 \cdot 10^3$	$1,3 \cdot 10^3$	$2,0 \cdot 10^5$	$5,0 \cdot 10^3$	$4,9 \cdot 10^4$
Гідросфера	$1,8 \cdot 10^4$	$8,2 \cdot 10^2$	$1,7 \cdot 10^5$	$4,7 \cdot 10^3$	$1,7 \cdot 10^3$

Таблиця 3. **Узагальнена оцінка можливої емісії тритію з реакторів АЕС світу протягом компанії з урахуванням розпаду** *станом на серпень 2019 р*.

Table 3. **Generalized estimation of the possible emission of tritium from the reactors of the world NPPs during the company taking into account the disintegration as of August 2019**

Тип реактора	Генерування тритію, г	Викид в атмосферу, г	Скид в гідросферу, г	Сумарна емісія, г
PWR	2960	14	167	182
BWR	1088	1,5	1,0	2,5
HWR	3297	58	49	108
GCR	103	3,5	0,2	3,7
Загалом	7448	78	218	295

З наведених оцінок випливає, що більш небезпечними в сенсі забруднення гідросфери є графітові (GCR), важководні (HWR) та легководні (PWR) реактори, а найбільш потужними постачальниками тритію в атмосферу є важководні реактори HWR. При цьому, лідерами тритієвої емісії в навколишнє середовище виступають Індія, Південна Корея, США, Франція, Російська Федерація та Китай які обумовлюють майже 76 % світової емісії тритію з ядерних реакторів.

Згідно з даними МАГАТЕ, станом на грудень 2018 року в Україні на 15 реакторах чотирьох АЕС вироблено 85,6 · 10^6 МВт · год, що склало 55,1 % від загального річного виробництва електричної енергії. Розраховані вірогідні викиди тритію в атмосферу за штатного режиму роботи АЕС України можуть складати близько 2,0 · 10^7 МБк · рік$^{-1}$ та скиди в гідросферу до 2,4 · 10^8 МБк · рік$^{-1}$, що загалом може становити не більше 2,4 % від загальної активності тритію, що генерується в реакторах. Разом з тим, згідно зі звітом Державного комітету з ядерного регулювання України, наданого МАГАТЕ 10.08.2017 р., викиди в гідросферу на діючих АЕС України у 2016 році були стабільно нижче рівнів, встановлених для кожної АЕС (табл. 4). Щодо викидів тритію в атмосферу в звіті за цей період дані відсутні.

Таблиця 4. **Зафіксовані скиди тритію в гідросферу та допустимий рівень скидів (ДРС) на АЕС України у 2016 році, МБк · рік$^{-1}$**

Table 4. **Fixed tritium discharges into the hydrosphere and allowable discharge level (ADL) at Ukrainian NPPs in 2016, MBq · year^{-1}**

Тритій	ЗАЕС	РАЕС	ПУАЕС	ХАЕС	Загалом
Зафіксовані скиди	1,04 · 10^8	2,6 · 10^7	3,1 · 10^7	8,0 · 10^6	2,05 · 10^8
ДРС	1,9 · 10^9	2,4 · 10^9	1,2 · 10^8	2,0 · 10^9	4,62 · 10^9

Примітка: ЗАЕС, РАЕС, ПУАЕС, ХАЕС — атомні станції відповідно: Запорізька, Рівненська, Південно-Українська та Хмельницька.
Note: ZNPP, RNPP, SUNPP, KhNPP — nuclear power plants respectively: Zaporizhzhya, Rivne, South Ukrainian and Khmelnitsky.

Надходження тритію в біосферу з термоядерних реакторів очікується значно більшим, ніж із вже працюючих ядерних реакторів. З десяти систем термоядерного реактора, в яких утворюється тритій, головними є системи інжекції, збору та очищення тритію, бланкет-розмножувачі та системи екстракції тритію з бланкетів (ITER... 2016). Робочі запаси тритію в термоядерному реакторі оцінюються в межах (0,73–8,7) · 10^{12} МБк або від 2,0 до 23,5 кг, а експлуатаційні втрати в період штатної експлуатації можуть варіювати в межах трьох порядків — від 1,7 · 10^3 до 1,3 · 10^6 МБк · рік$^{-1}$ при середньозваженому значенні 1,35 · 10^5 МБк · рік$^{-1}$ (ITER... 2016).

Таким чином, середньорічна емісія тритію в біосферу в процесі експлуатації термоядерного реактора може бути оцінена у (1–3) · 10^5 МБк · МВт(ел.)$^{-1}$.

[6] IAEA PRIS. 2019. *The Database on Nuclear Power Reactors.* available at: https://www.iaea.org/pris/

[7] *Report on Nuclear and Radiation safety in Ukraine for 2016: 2017.* Available at: https://bit.ly/32RKwEG

Переорієнтування енергетичного комплексу на керований термоядерний синтез згідно з оцінками Міжнародної Асоціації «ITER organization» призведе, до щорічного генерування 100–200 кг тритію, необхідних для функціонування термоядерних реакторів, тобто на 2 порядки вище, ніж природний вміст у біосфері та, відповідно, до збільшення надходження тритію у навколишнє середовище (ITER... 2016).

Враховуючи важливість забезпечення безпеки людей та навколишнього середовища від діяльності об'єктів ядерного енергетичного комплексу, під егідою МАГАТЕ у 1997 р. ухвалена міжнародна Об'єднана Конвенція «Joint convention on the safety of spent fuel management and on the safety of radioactive waste management» (IAEA SSR 2017), яку Україна підписала 29.09.1997 та ратифікувала 24.07.2000. У Конвенції відзначається, що регулювання безпеки є національною відповідальністю. Проте, радіаційні ризики можуть виходити за межі національних кордонів, тому міжнародне співробітництво сприятиме просуванню і зміцненню безпеки в усьому світі шляхом обміну досвідом і вдосконаленням можливостей по боротьбі з небезпеками, запобіганням аварій, реагуванням на надзвичайні ситуації та пом'якшенням будь-яких шкідливих наслідків.

Надходження тритію в біосферу з підприємств з перероблення відпрацьованого ядерного палива

Важливим аспектом Конвенції є регулювання поводження з відпрацьованим ядерним паливом, оскільки у ядерній енергетиці вони є важливим джерелом надходження тритію в складові природно-техногенних систем. Надходження тритію в навколишнє середовище з підприємств з перероблення відпрацьованого палива складаються із газо-аерозольних форм (до 25 %), які потрапляють в атмосферу та на 75 % — із скидів рідкої форми (HTO) у поверхневі та підземні води. Так, переробний завод продуктивністю 1500 т UO_2 на рік, що відповідає встановленій потужності легководних реакторів на рівні 50 ГВт, може викидати в атмосферу (1–3) · 10^{16} Бк тритію в рік (Yegorov 1982). Використання води та азотної кислоти в процесі перероблення 1 т відпрацьованого палива призводить до утворення близько 100 $м^3$ тритієвих стоків (IAEA... 2004).

До теперішнього часу у світі було перероблено близько 1 · 10^5 т використаного палива з комерційних енергетичних реакторів, що обумовило надходження в атмосферу 1,15 · 10^{18} Бк тритію. Щорічна потужність підприємств з перероблення відпрацьованого ядерного палива становить біля 5370 т · $рік^{-1}$ (табл. 5).

Як відмічає Лебарон-Джакобс зі співавторами (Lebaron-Jacobs *et al.* 2009), на заводі La Hague у Франції, щорічно з 1600 метричних тонн ядерного матеріалу виділяється близько 30 г (1,08 · 10^{16} Бк · $рік^{-1}$) тритію. Із заводу з перероблення ядерного палива «Sellafield» (Великобританія) щороку у гідросферу надходить приблизно 8 г (2,9 · 10^{15} Бк · $рік^{-1}$) тритію. На заводі «Tokai Reprocessing Plant», Японія, за період з 1977 до 2008 р. при переробленні 1140 тонн використаного палива було напрацьовано 4,5 · 10^{15} Бк (12,5 г) тритію, який було скинуто в море (Kokubun *et al.* 2011), що призвело до підвищення концентрації тритію у морській воді до 1700 Бк · $дм^{-3}$.

Моніторинг впливу на навколишнє середовище заводу по переробленню відпрацьованого палива CORAL (Індія) показав, що викиди тритію відбуваються головним чином у вигляді газу (Sundar *et al.* 2010). При переробленні 1 т палива, з вигорянням 25 ГВт утворюється 2,6 · 10^9 Бк тритію, з яких у повітря викидається біля 73 % (1,9 · 10^9 Бк), що при потужності заводу 330 т · $рік^{-1}$ (табл. 5) може призвести до надходження у навколишнє середовище до 6,4 · 10^{11} Бк.

[8] Processing of Used Nuclear Fuel. 2017. *World Nuclear Association*. available at: https://bit.ly/3hKpKgC

Якщо припустити технологічну подібність перероблення ядерного палива на підприємствах інших країн (за винятком «Tokai Reprocessing Plant», Японія), то вірогідне щорічне надходження тритію у біосферу за наявних потужностей цих підприємств може становити близько 70 г, або $2{,}5 \cdot 10^{16}$ Бк · рік$^{-1}$.

Таблиця 5. **Потужність підприємств з перероблення відпрацьованого ядерного палива (т · рік$^{-1}$)**
Table 5. **Capacity of spent fuel processing enterprises (t · year^{-1})**(Processing... 2017)

Паливо	Країна	Продуктивність, т · рік$^{-1}$
З реакторів PWR	Франція, La Hague	1700
	Велика Британія, Sellafield (THORP)	600
	Росія, Озерск («Маяк»)	400
	Японія, (Rokkasho)	800
Загалом для PWR		3500
З інших типів реакторів	Велика Британія, Sellafield (Magnox)	1500
	Індія, (HWR, 4 реактори)	330
	Японія, Tokai MOX	40
Загалом ядерне паливо з інших типів реакторів		1870
В цілому невоєнні потужності		5370

Таким чином, сучасні рівні надходження тритію в навколишнє середовище від підприємств ядерної енергетики (АЕС та заводів по переробленню відпрацьованого палива) можуть становити $1{,}26 \cdot 10^{18}$ Бк · рік$^{-1}$ (3,5 кг · рік$^{-1}$). Це більше, ніж у 20 разів перевищує його щорічне утворення з природних джерел (0,15 кг · рік$^{-1}$) та може обумовлювати щорічне подвоєння загального запасу тритію у біосфері (*рис. 5*).

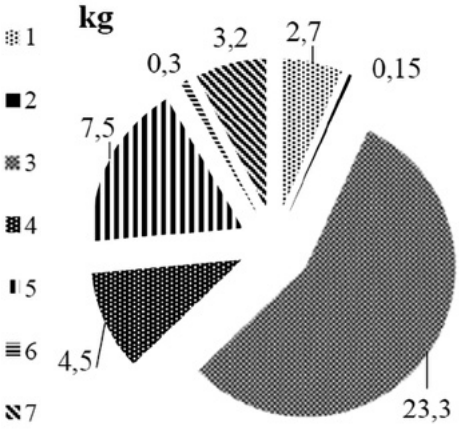

Рис. 5. Головні джерела тритію в природно-техногенних системах (станом на серпень 2019 р.).
1 — вміст природного тритію в природно-техногенних системах; *2* — щорічне утворення природного тритію; 3 — ядерні випробування 1945–1978 рр.; *4* — виробництво люмінофорів; *5* — генерування тритію у ядерних реакторах протягом кампанії; *6* — емісія тритію в навколишнє середовище з АЕС протягом кампанії; *7* — емісія тритію з підприємств перероблення відпрацьованого ядерного палива.

Fig. 5. The main sources of tritium in natural-technogenic systems (as of August 2019).
1 — the content of natural tritium in natural-technogenic systems; *2* — annual formation of natural tritium; *3* — nuclear tests 1945–1978; *4* — production of luminophores; *5* — generation of tritium in nuclear reactors during the campaign; *6,* emissions of tritium into the environment from NPPs during the campaign; *7* — tritium emission from spent nuclear fuel processing enterprises.

Очікується, що до 2030 р. у всьому світі буде отримано близько 400 000 тон використаного палива, в тому числі 60 000 тон у Північній Америці та 69 000 тон в Європі. При збереженні сучасних технологій очікуваний викид тритію лише при переробленні цих об'ємів складе до $3 \cdot 10^{19}$ Бк (83,6 кг), що у 2 рази більше його сучасного вмісту в біосфері, сформованому за рахунок природних і техногенних джерел.

Емісія техногенного тритію зі сховищ радіоактивних відходів

Робота сучасних підприємств ядерного паливно-енергетичного комплексу супроводжується постійним напрацюванням різноактивних відходів, які зазвичай є носіями тритію. Деяка їх частина потрапляє на заводи по переробленню відпрацьованого палива. Інша частина потребує відповідного з ними поводження. Після завершення часу придатності різних технічних засобів і приладів, в яких використовується тритій також потребує їх певної утилізації. Для вирішення цих задач Всесвітня ядерна Асоціація, відповідно до прийнятої «Спільної

конвенції про безпеку поводження з відпрацьованим паливом та про безпеку поводження з радіоактивними відходами» (IAEA... 2017) надає рекомендації, щодо зменшення негативного впливу роботи підприємств ядерного комплексу на навколишнє середовище.

Згідно з такими рекомендаціями радіоактивні відходи зберігаються, щоб уникнути можливості опромінення людей або інших популяцій. Радіоактивність відходів з плином часу зменшується, забезпечуючи достатній стимул зберігати відходи високого рівня протягом приблизно 50 років перед захороненням. Ряд країн утилізують радіоактивні матеріали, що містять короткоживучі радіоізотопи, в т. ч. тритій, в приповерхневих сховищах, призначених для утилізації низькоактивних відходів (НАВ). Загальноприйняті у світі варіанти утилізації радіоактивних відходів (РАВ) наведено у таблиці 6.

Таблиця 6. **Загальноприйняті варіанти утилізації РАВ (UNSCEAR 2016)**
Table 6. **Common options for radioactive waste disposal**

Операції	Існуючі типи відходів	Приклади
Приземне захоронення на рівні землі або в камерах нижче рівня землі (на глибинах десятків метрів)	Низькоактивні відходи (НАВ) та короткоживучі РАВ	Впроваджено в багатьох країнах, в т.ч. у Великій Британії, Іспанії, Нідерландах, США, Україні, Фінляндії, Франції, Чеській Республіці, Швеції, Японії та ін.
Глибинне захоронення в геологічних формаціях (на глибинах від 250 до 1000 м для сховищ в гірських виробках або від 2000 до 5000 м для свердловин)	Довгоживучі РАВ та високоактивні відходи (в т.ч. використане ядерне паливо)	Багато країн виконують дослідження щодо сховищ в глибинних геологічних формаціях в якості офіційної політики щодо поводження з РАВ. Переважаючі ділянки для побудови геологічних сховищ вибрані у Франції, Швеції, Фінляндії та США. Процес відбору ділянок геологічного сховища розпочався у Великобританії та Канаді.

За визначенням МАГАТЕ в цьому варіанті сховищ здійснюється розміщення РАВ з використанням або без інженерних бар'єрів. У приповерхневих сховищах на рівні землі, або нижче її поверхні, захисне покриття має товщину в кілька метрів. Контейнери для відходів поміщаються в побудовані сховища і при заповненні сховищ засипаються. Потім вони покриваються водонепроникною мембраною і верхнім шаром ґрунту. Ці споруди можуть включати деяку форму дренажу і, можливо, систему газовідводу.

У даний час приповерхневі сховища на рівні землі використовують:

- Велика Британія — сховище «НАВ (Drigg)» в Камбрії, кероване «UK Nuclear Waste Management» (консорціум на чолі з «Washington Group International» та «Studsvik UK», Serco & Areva) від імені Управління по зняттю ядерних об'єктів з експлуатації;
- Іспанія — сховище «El Cabril НАВ» і середньо-активні відходи (САВ), експлуатується ENRESA;
- Франція — Центр «de l'Aube», яким керує Національна агенція Франції з поводження з РАВ (АНДРА);
- Японія — Центр утилізації НАВ в Роккашо-Муре, експлуатований «Japan Nuclear Fuel Limited»;
- США — п'ять сховищ для поховання НАВ: об'єкт «Техас Компакт» неподалік від кордону з Нью-Мексико, здійснюваний фахівцями з Управління Відходами, три сховища, керовані компанією Energy Solutions: Барнуелл, штат Південна Кароліна, Клайв, штат Юта та Оук-Рідж, штат Теннессі і сховище Річленд у штаті Вашингтон, яке управляється Американською Корпорацією Екології;
- Україна — Державна корпорація «Українське Державне об'єднання «Радон»» (ДК УкрДО «Радон»), у складі якої експлуатуються п'ять Державних міжобласних спецкомбінатів (ДМСК): Київський, Харківський, Дніпропетровський, Львівський, Одеський. Головним завданням

[9] World Nuclear Association Storage and Disposal of Radioactive Waste. 2017. available at: https://bit.ly/332j1IA
[10] World Nuclear Association Storage and Disposal of Radioactive Waste. 2017. available at: https://bit.ly/2DkPHnQ

для ДМСК було визначено виконання робіт зі збору, транспортування, переробки та захоронення РАВ. Основні групи постачальників, від яких надійшли РАВ на спецпідприємства ДК УкрДО «Радон» у 2018 році (% від загального надходження): Державні адміністрації (7 %), медицина та охорона здоров'я (11 %), митниця (9 %), паливно-енергетичний комплекс (11 %), промисловість (19 %), транспорт (7 %), наукові та проектні установи (6 %), структури СБУ, МО та МНС (6 %), освіта і культура (4 %), інші (20 %).

Загалом в Україні у сховищах АЕС, УкрДО «Радон» та об'єкті «Укриття» зберігається близько $6 \cdot 10^{16}$ Бк тритію та майже вдвічі більше емітовано в навколишнє середовище.

Висновки

АЕС та підприємства по переробленню відпрацьованого палива на даний час є ключовими джерелами надходження тритію в біосферу. Наслідком є сучасний вміст тритію в біосфері, який більш, ніж у 15 разів перевищує постійно підтримуваний природний рівень. Головна частина тритію, напрацьованого в ядерних реакторах світу (до 74 %) потрапляє в гідросферу і до 26 % надходить в атмосферу.

Наразі з урахуванням емісії тритію, утвореного при випробуваннях ядерної та термоядерної зброї, напрацьованого на ядерних реакторах, підприємствах з перероблення відпрацьованого ядерного палива та від виробництв джерел іонізуючого випромінювання (ДІВ) у біосферу надійшло біля $1{,}22 \cdot 10^{19}$ Бк (34 кг) тритію.

Потужним джерелом тритію можуть невдовзі стати термоядерні реактори. Переорієнтування енергетичного комплексу на керований термоядерний синтез згідно з оцінками Міжнародної Асоціації «ITER organization» призведе, до щорічного генерування 100200 кг тритію, необхідних для функціонування термоядерних реакторів, тобто на два порядки більше, ніж природний вміст у біосфері і, відповідно, до збільшення надходження тритію в навколишнє середовище.

Потенційними джерелами надходження тритію можуть бути також пункти збереження РАВ де в сховищах складовані радіоактивні відходи, що вміщують тритій. Можливість такого розвитку подій підтверджується тим, що за тривалий термін експлуатації сховищ інженерні бар'єри частково втрачають свої захисні властивості, відбуваються радіаційні аварії, які призводять до потрапляння тритію у навколишнє середовище.

Подальша геохімічна історія тритію, що надійшов у біосферу визначається механізмами його утворення та шляхами міграції між компонентами природно-техногенних біогеосистем в залежності від форм його знаходження — газової (НТ), водної (НТО) та органічно зв'язаної (ОЗТ).

Література

Арцимович, Л. А. 1961. Управляемые термоядерные реакции. Физматлит, Москва, 1–467. [Artsimovich, L. A. 1961. *Controlled Thermonuclear Reactions.* Fizmatlit, Moscow, 1–467. (In Russian)]

Вакуловский, С. М., А. И. Воронцов, И. Ю. Катрич, И. А. Колосков, Ф. Я. Ровинский, Е. И. Рослый. 1978. Тритий в атмосферних осадках, реках и морях, омывающих территорию Советского Союза. Москва: Атомная энергия, **44** (5): 432–435. [Vakulovsky, S. M., A. U. Voronzov, I. Ju. Katrich, I. A. Koloskov, F. Ja. Rovinsky, E. I. Rosly. 1978. Tritium in precipitation, rivers and seas washing the territory of the Soviet Union. *Atomic Energy*, **44** (5): 432–435. (In Russian)]

Егоров, Ю. А. 1982. Основы радиационной безопасности атомных электростанций. Энергоатомиздат, Москва, 1–236. [Yegorov, Yu. A. 1982. *Fundamentals of Radiation Safety of Nuclear Power Plants.* Energoatomizdat, Moscow, 1–236. (In Russian)]

Коккедэ, Я. 1971. Теория кварков. Мир, Москва, 1–341. [Kokkede, Ya. 1971. *Quark theory.* Mir, Moscow, 1–341. (In Russian)]

Ленский, Л. А. 1981. Физика и химия трития. Энергоатомиздат, Москва, 1–110. [Lensky, L. A. 1981. *Physics and chemistry of tritium.* Energoatomizdat, Moscow, 1–110. (In Russian)]

Подвиг, П. Л. 1996. Термоядерное оружие. Ядерная энциклопедия. *Том 1.* Благотворительный фонд Ярошинской. Москва, 46–48. [Podvig, P. L. 1996. Thermonuclear weapons. *Nuclear Encyclopedia, Volume 1.* Yaroshinskaya Charitable Foundation, Moscow, 46–48. (In Russian)]

[11] *Report on Nuclear and Radiation safety in Ukraine for 2016. 2017.* Available at: https://bit.ly/3lhpya

Хефеле, В., А. Хармс, К. Марчетти. 1988. Технологические аспекты ядерных энергетических систем с воспроизводством топлива. Энергоатомиздат, Москва, 1–278. [Hefele, B., A. Harms, K. Marchetti. 1988. *Technological Aspects of Nuclear Power Systems with Reproduction of Fuel.* Energoatomizdat, Moscow, 1–278. (In Russian)]

Bataille, M. C., M. H. Revol. 2001. *Les incidences environnementales et sanitaires des essais nucleaires effectues par la France entre 1960 et 1996 et elements de comparaison avec les essais des autres puissances nucleaires*. Paris, 1–248.

Betti, M., L. Heras, A. Janssens, et al. 2004. Results of the European Commission MARINA II study: part I — general information and effects of discharges by the nuclear industry. *Journal of Environmental Radioactivity*, **74** (1–3): 243–254.

Burger, L. L. 1976. *The Conversion of Tritiated Hydrogen to Water in the Atmosphere.* Pacific Northwest Laboratories, Richland, Washington, 1–46.

Butler, H. L. 1963. Tritium Hazards in Heavy-Water-Moderated Reactors. *Nuclear Safety*, **4** (3): 77–82.

Green, K., D. Thompson. 1990. The decay of the neutron to a hydrogen atom. *Journal of Physics G: Nuclear and Particle Physics*, **16** (4): 75–76.

Harteck, P. 1954. The relative abundance of HT and HTO in the atmosphere. *Journal Chemical Physics*, **22**: 1746–1751.

IAEA Technical Reports. 2004. Management of waste containing tritium and carbon-14. *IAEA Series,* **421**: 28–31.

IAEA SSR. 2017. Safety Standards for protecting people & environment. Safety of Nuclear Fuel Cycle Facilities. *Specific Safety Requirements.* 4. Vienna, 1–160. available at: http://www-ns.iaea.org/standards/

Investigation of the Environmental Fate of Tritium in the Atmosphere. 2009. Canadian Nuclear Safety Commission, Ottawa, Ontario, 1–110.

ITER... 2016. *ITER organization magazine*. Viena. Available at: https://bit.ly/3hu3cjR

Jacobs, D. 1968. *Sources of Tritium and its Behavior Upon Release to the Environment*. (AEC critical revive series-Oak Ridge). USAEC. Tenessee, 1–98.

Jones, G. 2007. *PWR Tritium Issues.* 8th International Conference on Tritium Science and Technology. Rochester, New York, 1–26.

Kokubun, Y., H. Fujita, M. Nakano, S. Sumiya. 2011. Tritium concentration and diffusion in seawater discharged from Tokai Reprocessing Plant. *Progress in Nuclear Science and Technology, Volume 1.* Atomic Energy Society of Japan, 384–387. https://doi.org/10.15669/pnst.1.384

Lebaron-Jacobs L., J. Garmier-Laplace, B. Lopez, et al. 2009. Tritium. *Toxicologie nucleaire environnementale et humaine*, **30**: 575–602.

Lewis, J. W., L. Xue. 1991. *China Builds the Bomb.* Stanford University Press, 1–352.

Libby, W. F. 1946. Atmospheric Helium Three and Radiocarbon from Cosmic Radiation. *Physical Review*, **69** (11–12): 671–672.

Locante, J., D. D. Malinowski. 1973. Tritium in pressurized water reactors. *Messenger Graphics.* Las Vegas, Nevada, 45–57.

Martin, J. E. 2000. *Physics for Radiation Protection.* N. Y., Wiley Interscience, 1–713.

McFarlane, J. C., R. D. Rodgers, D. V. Bradley Jr. 1979. Tritium oxidation in surface soils. A survey of soils near five fuel reprocessing plants. *Envirronmental Science & Technology*, **13**: 607–608.

Miskel, J. A. 1973. Production of tritium by nuclear weapons. *Messenger Graphics*. Phoenix and Las Vegas, 79–85.

Oms, P., P. Du Bois , F. Dumas, et al., 2019. Inventory and distribution of tritium in the oceans in 2016. *Science of the Total Environment,* 1289–1303. https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-02336283

Östlund, H. G., R. A. Fine. 1979. Oceanic distribution and transport of tritium. *Behavior of Tritium in the Environvent. IAEA*. Vienna, 314–324.

Otten, E. W., J. Bonn, Ch. Weinheimer. 2006. The Q-value of tritium β-decay and the neutrino mass. *International Journal of Mass Spectrometry*, **251** (2–3): 173–178.

Sundar M., S. Bala, S. Chandrasekaran, K. C. Ajoy, N. Yuvaraj. 2010. Monitoring of tritium In CORAL reprocessing facility. *Indira Gandhi Centre for Atomic Research*, *Kalpakkam*, **33** (3): 104–105.

UNSCEAR. 1977. *Sources and Effects of Ionizing Radiation*. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation Report to the General Assembly, with annexes. United Nations sales publication, **E.77. IX.I**: 178–180.

UNSCEAR... 2016. *Sources, effects and risks of ionizing radiation*. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Report to the General Assembly. ANNEX B: Radiation exposures from electricity generation, 1–110. Available at: https://bit.ly/2YxduZe

UNSCEAR. 2000. *Sources and Effects of Ionizing Radiation*. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation Report to the General Assembly, with annexes. United Nations sales publication. **E.77. IX.I**: 158–287.

Tritium... 1979. *Tritium in the Environment.* National Council on Radiation Protection and Measurements (NCRP), Bethesda, USA, 1–62.

Wietfeldt, F. E., G. L. Greene. 2011. The Neutron Lifetime. *Reviews of Modern Physics*, **83**: 1–1173.