

תנועה של טריטיום במערכות אקולוגיות - סקר ספרות

יפה פולווי (אליה), יעקב לייכטר

כסלו תשמ"ט - נובמבר 1988

English titel and abstract included



#### LEGAL NOTICE

This publication is issued by the Nuclear Research Centre - Negev, Israel Atomic Energy Commission. Neither the Nuclear Research Centre - Negev, nor its contractors, nor any person acting on their behalf or on behalf of the Israel Atomic Energy Commission

make any warranty or representation, express or implied, with respect to the accuracy, completeness, or usefulness of the information contained in this publication, or that the use of any information, apparatus, method or process disclosed in this publication will not infringe upon privately owned rights, or

assume any liability with respect to the use of, or for damages resulting from the use of any information, apparatus, method or process disclosed in this publication.

Mention of commercial products, their manufacturers, or their suppliers in this publication does not imply or connote approval or disapproval of the products by the Nuclear Research Centre - Negev or by the Israel Atomic Energy Commission.

#### הודעה משפטית

פרסום זה מוצא לאור על-ידי הקריה למחקר גרעיני — נגב, ההעדה לאנרגיה אטומית של ישראל.

הקריה למחקר גרעיני — נגב והמופעלים מטעמה או בשמה, או מטעם ההעדה לאנרגיה אטומית של ישראל או בשמה

אינם אחראים או ערבים, אחריות או ערבות כלשהי, במפורש או שלא במפורש, לדיוק, לשלמות ולשימוש מושיות של המידע הכלול בפרסום זה או לכך שהשימוש בכל מידע, מכשיר, שיטה או תהליך הנוון בפרסום זה לא יפגע בזכויות פרטיות של אחרים,

ואינם מקבלים על עצמם כל התחייבות בגין השימוש או נזקי השימוש בכל מידע, מכשיר, שיטה או תהליך הנוון בפרסום זה.

הציון של מוצרים מסחריים, של יצרניהם או של ספקיהם בפרסום זה אין משמעו אישור המוצרים על-ידי הקריה למחקר גרעיני — נגב או על-ידי ההעדה לאנרגיה אטומית של ישראל.

This publication and more information about its subject matter may be obtained at the following address:

Scientific and Technical Information Department  
Nuclear Research Centre - Negev  
P. O. Box 9007

84 190 Beer-Sheva, ISRAEL

ניתן להשיג את הפרסום הזה וכן מידע נוסף בנושא הפרסום על-ידי פנייה לכתובת:

יחידת המידע  
הקריה למחקר גרעיני — נגב (קמ"ט)  
ת"ד 9007

בארשבע 84 190

## תנועה של טריטיום במערכות אקולוגיות - סקר ספרות

כסלו תשמ"ט - נובמבר 1988

יפה פולווי (אליה), יעקב לייכטר

תקציר

מסוכמת האינטראקציה של טריטיום גזי ומי-טריטיום עם מרכיבים שונים במערכת האקולוגית ואופן קליטתם בצמחים ובקרנקעות. הסקר יכול לשמש כבסיס להערכת סיכונים של טריטיום לאדם דרך שרשרת המזון, לביצוע מעקב יעיל אחר ריכוזו בסביבה ומתאר היכן ניתן למצוא את הריכוזים המזיזים הגבוהים ביותר.

THE MOVMENT OF TRITIUM IN ECOLOGICAL SYSTEMS

Yaffa POLEVOY (ELIA), Yaacov LAICHTER

November 1988

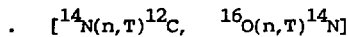
ABSTRACT

This literature survey summarizes the interaction of tritium gas and tritiated water with various components of the ecological system. The intake of tritium gas and tritiated water in plants and soil is described as well as the location of the highest measurable concentration. This information may serve as a basis for risk assessment from tritium to man through the food chain and enables effective tracing of its concentration in the environment.

<u>עמוד</u>	<u>תוכן העניינים</u>
1	1 מבוא
2	2 ריכוז טריטיום בסכיבה מאוכלסת ובסכיבת כור גרעיני
2	2.1 ריכוז טריטיום בסכיבה מאוכלסת
4	2.2 ריכוז טריטיום בסכיבת כור גרעיני
7	3 הפיכת טריטיום גזי ( $T_2$ , HT) למי-טריטיום ( $T_2O$ , HTO)
7	3.1 המהליכים הפיסיקליים והכימיים של הפיכת טריטיום גזי למי-טריטיום
8	3.2 קצבי תגובות החימצון והשיחלוף של טריטיום גזי למי-טריטיום
8	3.2.1 קצב תגובת החימצון
9	3.2.2 קצב תגובת השיחלוף
9	3.3 קצב ההפיכה של טריטיום גזי למי-טריטיום באוויר יבש ובאוויר לח
17	4 מנגונוני הפיכה של טריטיום גזי למי-טריטיום
17	4.1 התלות בסוגי הגזים בתערובת
19	4.2 התלות בריכוז הגזים בתערובת
19	4.2.1 תמצן
20	4.2.2 תחמוצת החנקן, NO
20	4.2.3 צפיפות אדי המים
20	4.2.4 גזים אצילים
22	4.3 נובחות קטליזטור מתכתי
23	5 האינטראקציה של טריטיום גזי ומי-טריטיום עם צמחיה
23	5.1 כללי
23	5.2 האינטראקציה של מי-טריטיום ( $T_2O$ , HTO) עם הצמחיה
30	5.3 האינטראקציה של טריטיום גזי ( $T_2$ , HT) עם הצמחיה
32	6 האינטראקציה של מי-טריטיום וטריטיום גזי עם הקרקע
32	6.1 האינטראקציה של מי-טריטיום עם הקרקע
33	6.2 האינטראקציה של טריטיום גזי עם הקרקע
38	7 סיכום
39	סימוכין

1 מבוא

קיימים שני מקורות לטריטיום הטבעי. המקור האחר והעיקרי הינו תגובות בין חלקיקי קרינה קוסמית לבין חנקן ותמצן בחלק העליון של האטמוספירה:



המקור השני הינו חרירה ישירה של טריטיום כקרינה קוסמית. סך-כל קצב ייצור הטריטיום הטבעי מוערך כ-4.8 MCi/year ובשיווי-משקל המצאי העולמי הינו כ-70\*140 MCi.

בנוסף לטריטיום טבעי, משוחרר טריטיום ( $\text{HT}$ ,  $\text{T}_2$ ,  $\text{HTO}$ ,  $\text{T}_2\text{O}$ ) לאטמוספירה ממקורות שונים הכוללים כורים גרעיניים, מיתקני טיפול בדלק גרעיני, מיתקנים להפרדת טריטיום, מאיצי חלקיקים ומתקלות רליפה. בעתיד, מקור נוסף לטריטיום יהיו גם כורי היתוך תרמו-גרעיניים מבוקרים, המתודלקים על-ידי טריטיום ודיוטריום.

ברוב השימושים הגרעיניים למטרות שלום משתחררת כמות קטנה של טריטיום לאטמוספירה. כיום קיימת מודעות רבה לשמירת איכות הסביבה, וקיימת דרישה חוקית להערכה של ההשפעות הסביבתיות שהמיתקנים הגרעיניים יוצרים עקב פעילויות המשחררות טריטיום לסביבה בצורה בלתי מבוקרת. כדי לקבוע את הסיכונים, כתוצאה מתקלה שכזו משתחרר טריטיום לאטמוספירה, דרושה אינפורמציה מהשרה הממחישה את האפקט הסביבתי של מיתקנים גרעיניים, וכן נתונים אקולוגיים המאפשרים להעריך את החשיפה האפשרית של הציבור לטריטיום דרך ערוצי המזון. בשנים 1973, 1978 ו-1980 נערכו כנסים בנושא התנהגות טריטיום בסביבה. מאמרי הכנסים לוקטו לספרים, (סימוכין 1, 2, ו-3).

מטרת סקר ספרות זה היא לספק מידע על ההתנהגות של מי-טריטיום המשוחררים באופן בלתי מבוקר לסביבה. מידע זה יכול לשמש בסיס להערכת סיכונים של טריטיום לאדם דרך ערוצי המזון. בנוסף לכך ניתן להשתמש בנתונים המופיעים בסקר זה למעקב אחר האינטראקציה של מים עם הסביבה מאחר והקינטיקה של מי-טריטיום בסביבה, זהה לזו של מים רגילים.

## 2 ריכוז טריטיום בסביבה מאוכלסת ובסביבת כור גרעיני

### 2.1 ריכוז טריטיום בסביבה מאוכלסת

Bogen ועמיתיו (סימוך 4) בדקו את כמות הטריטיום המצויה בארם ובסביבתו בעיר ניו-יורק. טווח הריכוזים של מי-הטריטיום החופשיים שנמצאו עבור צמחייה ומוצרי מזון נע בין  $600 \pm 1200$  pCi/l והנתונים שהתקבלו מסוכמים בטבלה 1.

טבלה 1 טריטיום במזון (האיסוף נעשה בעיר ניו-יורק, מתוך סימוך 4).

היחס	מי-טריטיום ב-pCi/l		המוצר	
	קשור/חופשי	קשורים אורגנית		חופשיים
4.5		3050	680	מוצרי מאפה
3.9		2400	620	גרעיני תבואה
2.5		3110	1260	ירקות טריים
3.5		2490	710	ירקות קנה
4.4		2530	580	ירקות שורש
3.7		2850	780	תפוחי ארמה
3.0		2430	810	פירות טריים
1.9		1330	710	פירות קנה
5.6		840	150	מיץ
-		2850	-	קמח
-		2950	-	מקרונים
-		810	-	אורז
-		3270	-	שעועית יבשה

Bogen ועמיתיו (סימוך 5) בדקו גם את התפלגות ריכוז הטריטיום במי-ברז בעיר ניו-יורק החל מ-1970, הערכים הממוצעים השנתיים מוצגים בטבלה 2.

טבלה 2 ריכוז טריטיום במי-ברז בעיר ניו-יורק (סימוך 5).

השנה	הריכוז (pCi/l)
1970	480±70
1971	350±50
1972	270±50
1973	230±50
1974	190±50
1975	190±50
1976	180±50
1977	190±50
1978	200±50

מטבלה 2 נראה כי, עד לשנים 1974+1975 מסתמנת ירידה באקטיביות הספציפית עם הזמן. לאחר שנים אלו בוצעו ניסויים נוספים בכלי נשק גרעיניים, שגרמו להגדלת מלאי הטריטיום באטמוספירה והובילו למצב עמיד של ריכוז הטריטיום כיום. בטבלה 3 מוצגת (סימוך 5) תכולת הטריטיום במוצרי מזון נוספים.



טבלה 3 טריטיום במזון (על-פי סימוך 5).

יחס	ריכוז הטריטיום ב-pCi/l		סוג המזון
	קשור/חופשי	קשור	
1.8	460±50	250±40	חלב
4.2	800±60	190±40	לחם
3.4	680±50	200±40	חטה
3.9	750±50	190±40	ירקות יושרש
2.9	520±40	180±30	בשר
3.9	630±50	160±30	דגים

## 2.2 ריכוז טריטיום בסביבת כור גרעיני

השיחורר הממוצע השנתי של טריטיום לאטמוספירה ב-Savannah River Plant (SRP) היה

$$5.12 \times 10^5 \text{ Ci} \text{ בתקופה שבין } 1974 \text{ ל-} 1977 \text{ (סימוך 6)}.$$

התברר כי היחס בין ריכוז מי-הטריטיום בצמחיה ובין המרחק ממקום פליטתו, הינו מורכב,

ומושפע מהתנאים האקלימיים וממאפייני הצמחיה. הריכוזים של מי-הטריטיום נבדקו בצמחיה

במרחקים של 40 ו-160 ק"מ ממקור הפליטה, תוצאות המדידות מסוכמות בטבלה 4. המים

הורחקו מהרוגמאות הלכו על-ידי ייבוש בהקפאה ונמנו במונה (נצנץ נוזלי).

טבלה 4 ריכוז טריטיום מימי במי-הצמח (pCi/ml) בשנים שונות ובמרחקים שונים ממקור הפליטה (על-פי סימוך 6).

המרחק בק"מ	ריכוז מי-טריטיום ב-pCi/ml בשנים			
	1977	1976	1975	1974
10	2.9	7.1	14.0	15.2
40	0.6	2.6	6.0	12.3
160	1.4	1.0	4.0	8.4

Strack ו-Konig (סימוך 7) ביצעו אנליזה בסוף 1980 באיזור Karlsruhe שבגרמניה, לעלים שנלקחו מעצי אשור, תפוחי עץ ומכרוב ממקומות שונים בסביבת מרכז המחקר הגרעיני. נמצאה אקטיביות טריטיום, כ- $HTO$ , בתחום שבין  $0.33 \pm 0.17$  pCi/ml ו- $9.00 \pm 0.21$  pCi/ml, התוצאות ניתנות בטבלה 5.

Brown (סימוך 8) בדק את התפלגות מי-הטריטיום ( $HTO$ ) בסביבות Chalk River Nuclear Lab. - (CRNL) ומצא כי הריכוז בעלים הוא  $12025 \pm 13975$  pCi/l ובקרקע הריכוז הינו  $2503$  pCi/l.

טבלה 5 ריכוזי טריטיום בדוגמות סביבתיות ב-pCi/ml (סימוך 7).

היחס קשור/חופשי	מי-טריטיום 'קשורים'	מי-טריטיום 'חופשיים'	הדוגמה	תאריך (1980)
3.10±0.6	4.10±0.34	1.34±0.21	עלי אשור	10.11
2.60±0.5	3.46±0.36	1.34±0.21	{Beech }	10.11
1.66±0.10	14.90±0.90	9.00±0.21	{Leaves}	10.11
0.79±0.09	3.54±0.29	4.49±0.34	{Horn- }	15.10
1.21±0.17	3.22±0.28	2.53±0.26	{beam L.}	29.10
2.61±0.43	4.23±0.38	1.62±0.22		10.11
2.00±1.10	0.76±0.21	0.38±0.17		11.11
2.10±1.20	0.78±0.27	0.37±0.17	תפוחים	21.11
1.40±0.80	0.53±0.18	0.37±0.16	{Apples}	12.12
2.40±1.00	1.11±0.19	0.47±0.18	ראשי כרוב	09.12
3.20±1.00	2.10±0.27	0.66±0.18	{B.S. Heads}	11.12
2.10±1.60	0.48±0.17	0.23±0.16		12.12
2.30±1.00	1.12±0.26	0.49±0.18	עלי כרוב	09.12
2.50±1.00	1.38±0.32	0.56±0.18	{B.S. Leaves}	11.12
1.40±0.90	0.49±0.18	0.34±0.17		12.12
1.20±0.90	0.63±0.43	0.54±0.19	גזע כרוב	09.12
2.50±1.40	0.83±0.18	0.53±0.17	{B.S. Stems}	11.12
1.50±1.00	0.41±0.17	0.31±0.17		12.12
1.30±0.80	0.53±0.20	0.41±0.18	שורש כרוב	09.12
1.50±0.90	0.59±0.21	0.40±0.18	{B.S. Roots}	11.12
-	< D.L.	0.28±0.17		12.12

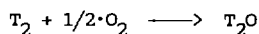
D.L. = Detection Limit = 0.15 pCi/ml

### 3 הפיכת טריטיום גזי ( $T_2, HT$ ) למי-טריטיום ( $T_2O, HTO$ )

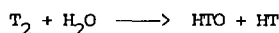
טריטיום גזי מגיב עם מרכיבים אטמוספריים שונים ויוצר ארים של מי-טריטיום המסוכנים לאדם יותר מאשר הטריטיום הגזי (סימוך 9). חלק מן הטריטיום המולקולרי המשוחרר לאטמוספירה מתחמצן ל- $HTO$ . כמות זו נעה בין  $0.2+3\%$  ליום (סימוך 10). לימוד והבנת פרטי המנגנונים של הפיכת  $HT$  ל- $HTO$  חשובים לפיתוח שיטות מתאימות להקטנת קצב הפיכת  $HT$  ל- $HTO$ , כלומר, הקטנת הסיכון הפוטנציאלי לאוכלוסיה.

הפיכת טריטיום גזי למי-טריטיום מוסהרת באופן כללי באמצעות שני המנגנונים הבאים:

(א) תהליך חימצון;



(ב) תהליך השחלוף האיזוטופי:



בכדי לבחון את מנגנוני הפיכת טריטיום גזי למי-טריטיום יש צורך להבין את התהליכים הפיסיקליים והכימיים השונים המתרחשים בתערובת גזית המכילה טריטיום. (תהליכים אלה מיועמים לתערובות גזיות ידועות שונות בכדי להסביר את התוצאות השונות).

#### 3.1 התהליכים הפיסיקליים והכימיים של הפיכת טריטיום גזי למי-טריטיום

בתערובת גזים של טריטיום ומרכיבים נוספים, ההפיכה של טריטיום גזי לטריטיום מימי מתרחשת דרך מספר תהליכים פיסיקליים וכימיים (סימוכין 9, 11).

מולקולות הטריטיום דועכות על-ידי פליטת חלקיקי  $\beta$  בעלי אנרגיה ממוצעת של  $5.7 \text{ keV}$  ומקסימום אנרגיה של  $18.6 \text{ keV}$ . לחלקיקי  $\beta$  אלה אנרגיה קינטית התחלתית גבוהה יותר מן

האנרגיה הקינטית הממוצעת של המולקולות בחערובת. חלקיקי ה- $\beta$  מאבדים אנרגיה כתוצאה מההתנגשויות עם חערובת המולקולות, עד שהם עוברים תרמליזציה ובסוף נעלמים על-ידי חיבור מחדש עם יונים חיוביים או עם מ<sup>+</sup>ןולות נייטרליות.

מולקולות החערובת בולעות חלק מן האנרגיה של חלקיקי ה- $\beta$  ועוברות יוניזציה או עירור בהתאם לכמות האנרגיה המועברת. כתוצאה מכך נוצרים יונים חיוביים ומולקולות מעוררות. רוב המולקולות המעוררות מתפרקות ויוצרות רדיקלים חופשיים. כאשר אנרגיית העירור מספיק גבוהה, הרדיקלים החופשיים יכולים להימצא ברמות מעוררות. תהליכים אלו גורמים להיווצרות של רדיקלים חופשיים הגורמים לתגובות בין רדיקליות. תגובות רדיקליות אלה הן האחראיות ליצירת התוצרים הסופיים, ובמקרה זה יצירת מי-טריטיום.

### 3.2 קצבי תגובות החימצון והשיחלופ של טריטיום גזי למי-טריטיום

#### 3.2.1 קצב תגובת החימצון

קצב תגובת החימצון בין טריטיום גזי ותמצן נמצא ביחס ישר לריכוז הטריטיום הגזי ( $T_2$ ). התגובה (12) הינה מסדר ראשון והקצב נתון על-ידי המשוואה:

$$\frac{d[H_2O]}{dt} = K[T_2](1 + b \cdot m_H)$$

כאשר:

$$K = 1.98 \times 10^{-6} \cdot \text{sec}^{-1} \text{ - קבוע הקצב של התגובה;}$$

$$b = 0.3 \text{ - האפקט האיזוטופי המתוקן;}$$

$$m_H = 0.055 \pm 0.831 \text{ - הפרקציה המולרית של פרוטיום ( ${}^3\text{HeT}^+$ ) במימן המגיב;}$$

$$[H_2O]; [T_2] \text{ - ריכוזי H}_2\text{O ו-} T_2.$$

תנאי העבודה:

הטמפרטורה -  $25^\circ\text{C}$ ;

לחץ הטריטיום -  $30 \pm 104 \text{ mmHg}$ ;

לחץ התמצן -  $.69 \pm 218 \text{ mmHg}$ .

3.2.2 קצב תגובת השיחלוף

קצב השיחלוף האיזוטופי בין טריטיום גזי וארי מיים משופעל על-ידי רעיכת ה- $\beta$ , ונמצא בעליה כפונקציה מסדר שני לגבי ריכוז הטריטיום הגזי  $[T_2]$  ובלתי תלוי בריכוז ארי המים (סימוך 13). קצב התגובה נתון על-ידי המשוואה:

$$\frac{d[HTO]}{dt} = K[T_2]^2$$

כאשר:

$$K = 4.17 \times 10^{-7} \text{ l} \cdot \text{Ci}^{-1} \cdot \text{sec}^{-1}$$

- קבוע הקצב של התגובה.

תנאי העבודה:

הטמפרטורה -  $22 \pm 2^\circ \text{C}$ ;

לחץ הטריטיום -  $0.0159 \pm 0.225 \text{ mmHg}$ ;

לחץ הליום -  $564 \pm 627 \text{ mmHg}$ ;

צפיפות ארי המים -  $0.5 \pm 17.5 \text{ mg/l}$ .

3.3 קצב ההפיכה של טריטיום גזי למי-טריטיום באוויר יבש ובאוויר לח

Eakins ו-Hutchinson מדדו את קצב הפיכת טריטיום למי-טריטיום באוויר יבש ובאוויר לח

בהיעדר קטליזטור (סימוך 14). המדידות כוצעו עם ריכוז טריטיום התחלתי של

$$2 \times 10^{-2} \text{ mCi} \cdot \text{ml}^{-1}$$

המתאים לתחום הריכוזים שבו עבדו Casaletto ועמיתיו (סימוך 15).

נעשו ארבע מדידות לקביעת קצב התגובה K, בשני התנאים והתוצאות מוצגות בטבלה 6 עבור

חימצון טריטיום באוויר יבש ובטבלה 7 עבור הפיכת טריטיום גזי למי-טריטיום באוויר

רווי במים.

טבלה 6 קצב חימצון הטריטיום באוויר יבש (סימון 14).

קבוע הקצב K ( $\text{ml} \cdot \text{mCi}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ )	זמן התגובה (h)
$1.4 \times 10^{-3}$	24
$7.1 \times 10^{-4}$	96
$3.5 \times 10^{-4}$	768
$6.2 \times 10^{-4}$	1464
$5.6 \times 10^{-4}$	הממוצע של שלושת הערכים האחרונים הוא:

טבלה 7 קצב ההפיכה של טריטיום גזי למי-טריטיום באוויר רווי במים (סימון 14).

קבוע הקצב K ( $\text{ml} \cdot \text{mCi}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ )	זמן התגובה (h)
$8.1 \times 10^{-3}$	24
$2.8 \times 10^{-3}$	72
$2.7 \times 10^{-3}$	168
$3.1 \times 10^{-3}$	336
$2.9 \times 10^{-3}$	הממוצע של שלושת הערכים האחרונים הוא:

בטבלאות 6 ו-7 התוצאה הראשונה הושגה מחישוב הממוצע מכיון שהיא גבוהה ביחס לשאר התוצאות.

הערך הממוצע של קצב חימצון הטריטיום באוויר יבש (טבלה 6)  $K = 5.6 \times 10^{-4} \text{ ml} \cdot \text{mCi}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ ,

נמצא בהתאמה טובה עם הערך  $K = 6.2 \times 10^{-4} \text{ ml} \cdot \text{mCi}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$  שהתקבל מ-Casaleto

ועמיתיו (סימון 15). הערך הממוצע של קצב ההפיכה של טריטיום גזי למי-טריטיום באוויר

רווי מים (טבלה 7),  $K = 2.9 \times 10^{-3} \text{ ml} \cdot \text{mCi}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ , מורכב משני גורמים:

(א) קצב החימצון של טריטיום למי-טריטיום;

(ב) קצב השיחלוף של טריטיום עם אדי מים.

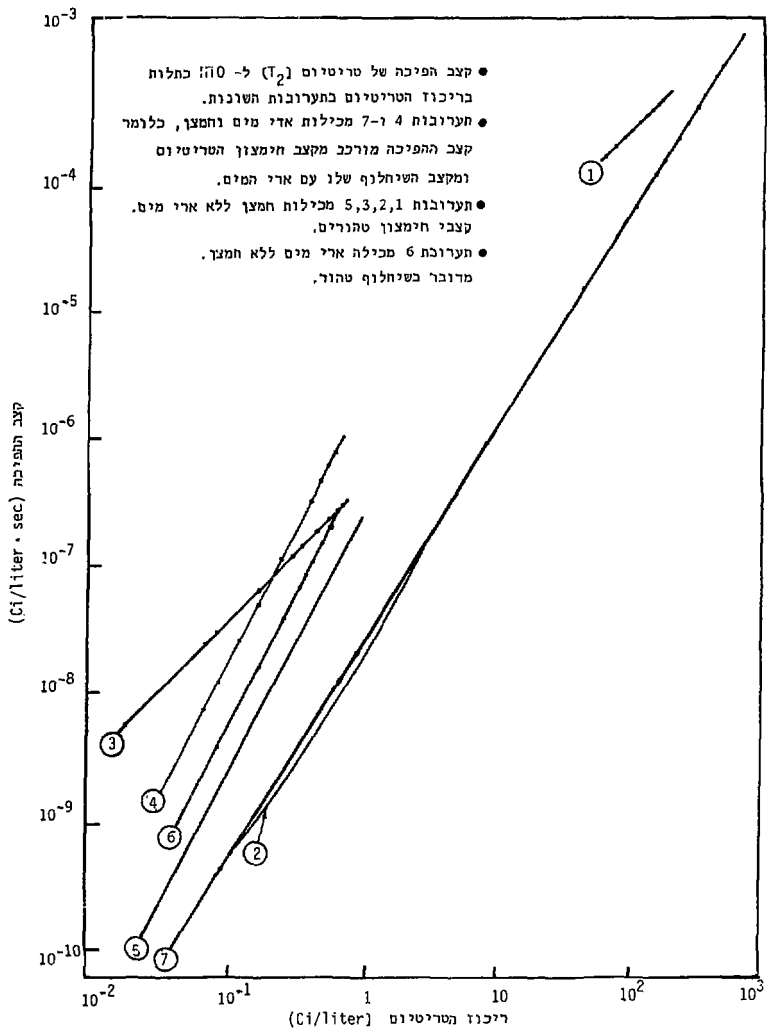
קצב השיחלוף נמצא מ-Yang ו-Gevantman (סימוך 13) כ- $1.5 \times 10^{-3} \text{ ml} \cdot \text{mCi}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$  וכאשר מתברים אותו עם הערך של קבוע החימצון  $K = 6.2 \times 10^{-4} \text{ ml} \cdot \text{nCi}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$  (סימוך 15) מקבלים שקבוע קצב התגובה הכללית הינו  $K = 2.1 \times 10^{-3} \text{ ml} \cdot \text{mCi}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ , המתאים לקבוע הקצב הממוצע הנתון בטבלה 7. מנתונים אלו ומנתוני הטבלאות 6 ו-7 רואים בבירור כי קצב השיחלוף הוא הרומיננטי בהפיכה של טריטיום למי-טריטיום. שני המנגנונים הללו משגשים לביאור התוצאות הנסיוניות המתקבלות מתערובות שונות של גזים וריכוזי טריטיום שונים. בטבלה 8 ניחנים קצבי הפיכה מדורים של טריטיום למי-טריטיום עבור תערובות שונות של גזים (9).

טבלה 8 קצב ההפיכה של טריטיום למי-טריטיום בתערובות שונות של גזים (סימוך 9).

הסימוך	קצב ההפיכה ( $\text{Ci} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{sec}^{-1}$ )	ריכוז הטריטיום ( $\text{Ci} \cdot \text{l}^{-1}$ )	סוג התערובת	מספר התערובת
12	$1.98 \times 10^{-6} [T_2]$	95+238	$T_2 + H_2 + O_2$	1
16	$1.7 \times 10^{-8} [T_2]^{5/3}$	0.09+90	$T_2 + O_2 + Ar$	2
15	$3.30 \times 10^{-7} [T_2]$	0.018+1	$T_2 + O_2 + N_2$	3
15	$1.20 \times 10^{-6} [T_2]$	<1	$T_2 + O_2 + H_2O$	4
15	$1.70 \times 10^{-7} [T_2]^2$	0.015+0.8	אוויר יבש	5
13	$4.2 \times 10^{-7} [T_2]^2$	0.05+0.8	$T_2 + H_2O + He, N_2, Ar, Kr$	6
16	$1.7 \times 10^{-8} [T_2]^{5/3}$	$6 \times 10^{-4} + 600$	אוויר יבש + $H_2O$	7

קצבי ההפיכה המיוחסים לתערובות המכילות אדי מים וחמצן (תערובות מספר 4, ו-7) מכילים את קצב החימצון של הטריטיום וקצב השיחלוף שלו עם אוני מים. קצבי ההפיכה המיוחסים לתערובות המכילות חמצן ללא אדי מים הם קצבי חימצון טהורים כמו בתערובות (1,2,3,5), ואילו כאשר התערובת מכילה אדי מים ללא חמצן מדובר בשיחלוף בלבד (תערובת מספר 6). כרי להקל על הדיון בנושא מוצגות תוצאות טבלה 3 באופן גרפי בצירור 1.





ציור 1 קצב הפיכה של טריטיום ( $T_2$ ) ל- $H_2O$  בתלות בריכוז הטריטיום בתערובות השונות.

גרף 2 מתאים לתחום הריכוזים  $0.1+10$  Ci/l

בציור 1 מוצג קצב ההפיכה היחסי, כפונקציה של ריכוז הטריטיום בתערובות השונות. הקינטיקה של הפיכת טריטיום למי-טריטיום באוויר (תערובת מספר 7, טריטיום-אוויר יבש - 50% אדי מים) הינה בעלת עניין מרבי מאחר והיא מייצגת בקירוב טוב את התנאים האטמוספיריים.

מציור 1 נראה כי קצבי ההפיכה של טריטיום למי-טריטיום זהים באוויר לח ובארגון יבש (תערובות מספר 7 ומספר 2) ולפיכך ניתן להניח כי התהליך הקובע את קצב ההפיכה הינו חימצון באמצעות קרינה של חלקיקי  $\beta$  (סימוך 16). כמו-כן ניתן לראות מציור 1 כי תערובת מספר 4 המכילה מים, טריטיום וחמצן, מהווה חסם עליון. זאת מאחר ותערובת זו אינה מכילה חנקן המשמש כמעכב של קצב ההפיכה. תערובת מספר 7 המכילה טריטיום אוויר יבש ו-50% לחות הינה כעלת קצב הפיכה נמוך יחסית לתערובת מספר 4 וזאת בגלל החנקן המצוי באוויר ומשמש כמעכב.

מאירך, צפוי היה כי קצב ההפיכה של תערובת מספר 3 ( $T_2, O_2, N_2$ ) ותערובת מספר 7 (אוויר יבש, 50% לחות,  $T_2$ ) יהא באותו סדר גודל, אך מהגרף ניתן לראות שיש הבדל של כסדר גודל ביניהם. בהנחה של שיתור טריטיום מולקולרי בו ריכוז הטריטיום באוויר  $10^{-2} \text{ Ci/l}$  מתקבל מעקומה מספר 4 קצב הפיכה יחסי של 0.1% ליממה. חישוב זה מתאים לקצב ההפיכה המקובל בהערכות סיכונים כמתואר בפרק 3.

מהשוואה של נתונים בספרות ונתונים נסיוניים הגיע Belovodskii (סימוך 16) למסקנה כי קצב ההפיכה במדיום של אוויר, נתון על-ידי המשוואה:

$$\frac{d[\text{HTO}]}{dt} = 1.19 \times 10^{-4} C_T + 2.5 \times 10^{-5} C_T^2 \quad [1]$$

כאשר  $C_T$  הינו ריכוז הטריטיום הגזי. ממשוואה זו ניתן לראות כי כאשר  $C_T < 5 \text{ Ci/l}$ , הפיכת הטריטיום ל- $\text{HTO}$  נשלטת על-ידי חימצון ואילו כאשר  $C_T > 5 \text{ Ci/l}$  הפיכת הטריטיום נשלטת בעיקר על-ידי שיתור איזוטופי

מכל מקום, מוצע (סימוך 16) שההפיכה של טריטיום ל- $\text{HTO}$  תבוא על-ידי המישואה:

$$\frac{d[\text{HTO}]}{dt} = (\alpha + \beta) C_T^2 \quad [2]$$

כאשר:

$$\alpha - \text{קצב החימצון, } 1.05 \times 10^{-4} \text{ 1/Ci} \cdot \text{min};$$

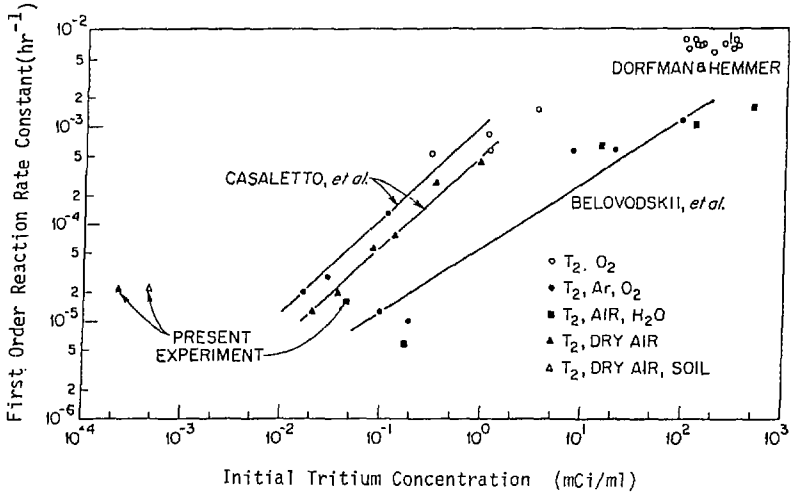
$$\beta - \text{קצב השיחלוף האיזוטופי, } 2.80 \times 10^{-4} \text{ 1/Ci} \cdot \text{min}$$

בהתייחס למישואה [2] החימצון והשיחלוף פרופורציוניים ל- $C_T^2$ .

במיקרה זה קצב השיחלוף יהא פי 2.8 גבוה מקצב החימצון. מסקנה זו סותרת את המתקבל ממישואה [1]. סתירה זו מוסברת על-ידי המתבר (16) בעזרה שחליך ההפיכה תלוי בגורמים רבים כמו ריכוזי המגיבים, הרכב תערובת הגזים, הטמפרטורה, נוכחות קטליזטור ועוד.

תגובת החימצון המשופעלת על-ידי קרינה, נלמדה על-ידי Dorfman ו-Hemmer (סימוך 12), Casalleto (סימוך 15) ועל-ידי Belovodskii (סימוך 16).

Dorfman ו-Hemmer מצאו קינטיקה מסדר ראשון, בריאקציה בין  $T_2$  ו- $O_2$  כאשר  $K = 1.19 \times 10^{-4} \text{ min}^{-1}$  בתחום ריכוזים של  $92+324 \text{ Ci/l}$  טריטיום (ציור 2).



צורך 2 קבוע קצב ריאקציה מסדר ראשון עבור מספר תערובות טריטיום כתלות בריכוז טריטיום התחלתי (סימון 11).

Casalleto (סימון 15) בדק את התגובה בריכוזים נמוכים יותר של טריטיום. בריכוז שמחת ל-1 Ci/1 נצפתה קינטיקה מסדר שני עם קבוע קצב של  $K = 1.2 \times 10^{-3} \text{ Ci}^{-1} \text{ h}^{-1}$  בנוכחות תמצן, ו- $K = 0.62 \times 10^{-3} \text{ Ci}^{-1} \text{ h}^{-1}$  באוויר יבש.

קבוע הקצב האחרון מצוי בהסכמה כללית עם Eakins ו-Hutchinson ועמיתיו (סימון 14).

Casalleto מצא כי נוכחות אדי מים בתמצן מגדילה את הקצב בפקטור 3.

Bellovdskii ועמיתיו (סימון 16) ביצעו ניסויים במערכת של טריטיום-אוויר יבש-ואדי מים כתחום ריכוזים רחב שבין  $10^{-3}$  ל-600 Ci/1.

הם מצאו כי קצב היצירה של מי-הטריטיום תלוי בריכוז הטריטיום הגזי בחזקה של 5/3.

$$\frac{d[\text{HTO}]}{dt} = 10^{-6} \frac{C}{T} \text{ Ci/1} \cdot \text{min} \quad [3]$$

הם לא מצאו הברלים כיצירת מי-טריתיום מטריתיום גזי במערכת שהכילה אוויר לח או ארגון יבש. עוברה זו מובילה למסקנה, כי הלחות שהינה הגורם האחראי לשיחלופ, כמעט ואינה משפיעה במיקרה זה, ולכן מנגנון החימצון הוא זה הרומיננטי. מסקנה זו הינה הפוכה לזו הטוענת כי השיחלופ הוא הגורם הרומיננטי בהפיכה של טריתיום גזי למי-טריתיום. מן האמור לעיל עולה כי ררושים נתונים נסיוניים נוספים המכסים תחום רחב של ריכוזים, בכרי לקבוע מהי התרומה היחסית של כל אחר מהמנגנונים.

4 מנגנוני ההפיכה של טריטיום גזי למי-טריטיום

מנגנוני ההפיכה של טריטיום גזי למי-טריטיום תלויים בגודמים הבאים:

(א) סוגי הגזים בתערובת;

(ב) ריכוז הגזים בתערובת;

(ג) נוכחות קטליזטור מתכתי;

(ד) הטמפרטורה.

4.1 התלות בסוגי הגזים בתערובת

קצב הפיכת טריטיום גזי למי-טריטיום הוערך בעבר על-פי ניסויים שנעשו עם הרכבים שונים של גזים וטריטיום (ראה טבלה.8). הבנת מנגנון ההפיכה של טריטיום גזי למי-טריטיום תהיה ברורה יותר אם ניתוח התוצאות הניסיוניות ייעשה מנקודת ראות של כימיה של קרינה.

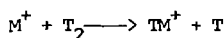
מנגנוני ההפיכה נבחנו עבור התערובות הבאות (סימוך 9):

1.  $[T_2, O_2, Ar]$

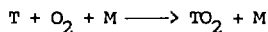
2.  $[T_2, H_2O, He]$

3.  $[T_2, O_2, N_2]$ .

בתערובת של גז אינרטי (M), טריטיום וחמצן (תערובת א'), מנגנון ההפיכה מתחיל ביצירת אטומי טריטיום (סימוך 16):

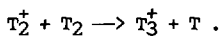
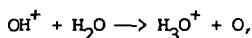
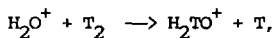
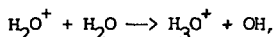
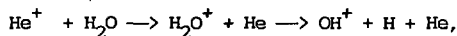


אטומי הטריטיום מגיבים עם החמצן ומולקולות הגז האינרטי לפי המישוראה:



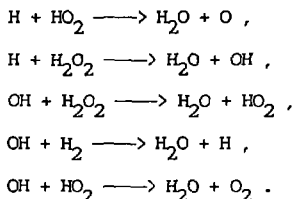
ובהמשך מתחילות מספר תגובות רדיקליות המובילות ליצירת מים.

בתערובת של הליום, טריטיום ומים (תערובת ב') נוצרים היונים  $He^+$ ,  $H_2O^+$  ו- $OH^+$  (סימוך 9) המשפעלים את התגובות:



הרדיקלים  $H$ ,  $OH$  ו- $T$  מתחילים מספר תגובות רדיקליות המובילות ליצירת מים ומי-טריטיום.

היצירה הסופית של המים מתרחשת דרך התגובות הבאות:



מתגובות אלה ניתן לראות את החשיבות הרבה של רדיקלי OH ו-H ביצירת מי-טריטיום. בתערובת של חמצן, טריטיום וחנקן (תערובת ג'), החנקן שהינו לוכד רדיקלים מובהק, גורם לסילוק רדיקלי הטריטיום ומונע את התגובות המובילות ליצירת מי-טריטיום.

## 4.2 התלות בריכוז הגזים בתערובת

### 4.2.1 חמצן

תערובת של טריטיום, מים והליום נבדקה על-ידי Yang ו-Gevantman (סימון 13). בניסיונותיהם, ריכוזי ההליום היו גבוהים בהרבה מריכוז ארי המים. ריכוז מולקולות  $\text{O}_2$  היה 0.001% מריכוז אטומי ההליום (כמות זו של אי-ניקיון צפויה בגז הליום מחקרי). אי-ניקיון של 0.001% חמצן בהליום נמצא מספיק בכדי להתחיל מספר תגובות חשובות (סימון 9) כמו:

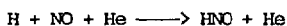
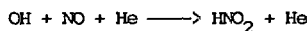


תגובות מעין אלו גורמות בהמשך לשפעול שאר התגובות הרדיקליות. ריכוז נמוך יותר של מולקולות  $\text{O}_2$  יקטין את הסיכוי שהתגובה [3] תצא לפועל והדבר יגרור שינוי מהלך התגובות שבהמשך. הריכוז היחסי של מולקולות  $\text{O}_2$  בתערובת זו הינו בעל חשיבות מרבית ביצירה הסופית של המים.



#### 4.2.2 תחמוצת החנקן, NO

בניסיונות שבהם נכח NO שהיגו לוכד רדיקלים חופשיים מובהק, מבחינים בעיכוב חזק ביצירת מי-טריטיום (סימוך 13). עבור  $[NO] = 1.58 [D_2]$  קצב היצירה של המים היה 4% בלבד, מהקצב הצפוי בהעדר NO. עובדה זו מיוחסת לאפקט הלכידה החזק של NO לגבי רדיקלי H ו-OH לפי התגובות:



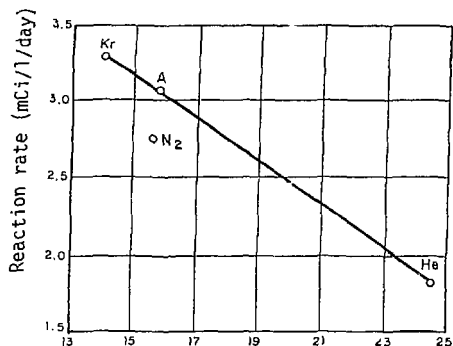
לפיכך תגובות אלו יהיו דומיננטיות יותר בהשוואה לתגובות המובילות ליצירת מים.

#### 4.2.3 צפיפות אדי המים

קצב יצירת מי-טריטיום בריכוז טריטיום התחלתי של  $52 \pm 1 \text{ mCi/l}$  נמצא מושפע משינויי הצפיפות של אדי המים בפקטור 4 (סימוך 13).

#### 4.2.4 גזים אצילים

גזים אצילים בולעים את אנרגיית ה- $\beta$  של הטריטיום ויכולים לשמש כגזים המאיטים את התגובה. בניסויים שנעשו על-ידי Yang ו-Gevantman (סימוך 13) נכח גז בכמות מספקת ככדי לובטיח בליעה מלאה של אנרגיית ה- $\beta$  של הטריטיום במערכת התגובה ולא בקירות הכלי. השימוש בגזים אינרטיים שונים גרם לשינויים קטנים בקצב התגובה. נמצאה תלות הפוכה של קצב התגובה בפוטנציאל היוניזציה של הגז (ציור 3).



Ionization Potential of Moderator Gases

ציור 3

קצב היצירה של מי-טרטיום כחלות בפוטנציאל היוניזציה של גזים מאיטים (סימון 13).

השימוש במספר גזים אינרטיים גרם לשינויים קטנים בקצב התגובה.

בטבלה 9 מוצגים נתוני קצב התגובה יחד עם נצולת מי-טרטיום המבוטאים כ-G(H<sub>2</sub>O).

G(H<sub>2</sub>O) = מספר המולקולות ל-100 eV של אנרגיה. הניסויים נעשו עם ריכוזי טריטיום של 210±4 mCi/l.

טבלה 9 קצב: שיהלוקף (13) בין טריטיום גזי (T<sub>2</sub>) לבין ארי מים ליצירת מי-טרטיום, R.

G(H <sub>2</sub> O)	$R/[T_2]^2 \times 10^{-5}$	R (mCi · l <sup>-1</sup> · day <sup>-1</sup> )	ריכוז T <sub>2</sub> התחלתי (mCi/l)	צפיפות ארי-המים (mg/l)	סוג הלחץ הכללי (mmHg)	הגז
2.69	3.21	16.4	714	9.3	626	He
1.78	3.98	5.77	380	9.6	613	He
1.03	4.28	1.83	207	9.6	653	He
0.48	4.13	0.425	102	12.2	638	He
0.21	3.49	0.095	52.1	17.5	564	He
0.20	3.18	0.088	52.6	9.4	627	He
0.19	3.17	0.083	51.2	5.0	617	He
1.51	6.17	2.72	210	9.8	377	N <sub>2</sub>
1.80	6.85	3.28	212	9.7	380	Kr
1.67	6.68	3.06	214	9.6	575	Ar

לסיכום נושא ריכוז הגזים בתערובת, ניתן לומר כי קצב השיחלוף האיזוטופי בין טריטיום גזי וארי מים הינו קבוע, נמצא בעלייה כפונקציה מסדר שני לגבי ריכוז הטריטיום הגזי ומוספע משינוי הצפיפות של ארי המים בפקטור 4. גזים אינרטיים, הנוכחים בעודף גדול, מהווים מצרים מעכב לאנרגיית ה- $\beta$  של הטריטיום. עם גז הליום כמעכב, וריכוז טריטיום בתחום שבין  $0.05 + 0.7 \text{ Ci/l}$  התקבל קצב תגובה של  $d(\text{HIO})/dt = 3.6 \times 10^{-5} [T_2]^2$  כאשר  $[T_2]$  הינו ריכוז הטריטיום ההתחלתי ב- $\text{mCi/l}$  ב- $2^\circ\text{C} \pm 0.22$ . ריאקציית שיחלוף זו מעוכבת חזק מאוד בנוכחות תנאן אוקסיד המצוי בתערובת התגובה.

#### 4.3 נוכחות קטליזטור מתחתי

Hutchinson ו-Eakins (סימוך 14) ברקו באופן ניסיוני את השפעת נוכחות קטליזטור מתחתי על קצב התגובה בנוכחות אוויר יבש ואוויר לח. בטבלות 6 ו-7 סוכמו קצבי התגובה ללא קטליזטור ובטבלה 10 ניתנים קבועי קצב התגובה בנוכחות פליז, פלדה, אלומיניום ופלטינה עבור אוויר לח ואוויר יבש. ההנחה שקטליזטור מתחתי יכול להחיש את קצב התגובה אך לא לשנות את הסדר שלה אומתה רק עבור הפלדה.

טבלה 10 הפיכה של טריטיום גזי למי-טריטיום בנוכחות קטליזטור מתחתי (סימוך 14).

סוג הקטליזטור	קבוע הקצב K ( $\text{mCi} \cdot \text{ml}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ )	
	אוויר יבש	אוויר לח
ללא קטליזטור	$5.6 \times 10^{-4}$	$2.9 \times 10^{-3}$
פליז	$6.0 \times 10^{-4}$	$8.6 \times 10^{-2}$
פלדה	$4.2 \times 10^{-3}$	$6.1 \times 10^{-2}$
אלומיניום	$3.9 \times 10^{-3}$	$9.6 \times 10^{-3}$
פלטינה	$2.4 \times 10^{-2}$	$8.4 \times 10^{-1}$

באוויר יבש רואים (טבלה 10) עלייה בקבוע קצב התגובה עבור כל המתכות פרט לפליז. עם הפלטינה כצפוי, מתקבלת העלייה הגבוהה ביותר. בנוכחות אוויר לח מתקבלת עלייה בקבוע הקצב עבור כל המתכות. העלייה הגבוהה ביותר מתקבלת עבור פלטינה הגורמת להגדלת קבוע הקצב פי 290 בהשוואה לערך שנמצא באוויר לח ללא קטליזטור.

### 5 האינטראקציה של טריטיום גזי ומי-טריטיום עם צמחיה

#### 5.1 כללי

בגלל הקשר ההרוק בין קרקע, מי-קרקע וצמחיה, יש קושי בהפרדה מוחלטת כיון הנושאים של תנועת מים בצמחיה ותנועתם בקרקע. בכל מערכת אקולוגית מצויים המים ברצף שבין קרקע-צמחיה-אטמוספירה.

מוזקרים הירורולוגיים הראו כי 23÷69% מכמות המשקעים החודרים לקרקע המכוסה עשב, יחזרו אל האטמוספירה עקב הזעה ואידוי מהצמחיה. הקינטיקה של מי-טריטיום בסביבה, זהה לזו של מים רגילים ולכן ניתן להשתמש בום לעקיבה אחר תהליכים של אינטראקציה של מים עם צמחיה. מי-טריטיום המצויים באטמוספירה נקלטים בצמח דרך העלים, הגרעול והגזע. הקליטה בעלים נעשית דרך הקרום העוטף את הצמח (Cuticle) ודרך הפיוניות (Stomata).

חלק מהמים הנקלטים על-ידי הצמח נשארים בו כמים חופשיים ונפליטים ממנו בתהליכי ההזעה והאידוי הרגילים של הצמח. החלק האחר של המים משתתף בתהליך הפוטוסינתזה ונקשר למולקולות אורגניות המצומקמות בכל חלקי הצמח. קיימע אורגני של טריטיום בצמחים מתרחש אף בזמני חשיפה קצרים. משך הזמן בו שווה הטרטיום הקשור לרקמות הצמח ארוך לאין שיעור מזה של הטרטיום המצוי בצמח במים חופשיים (סימוך 10).

#### 5.2 האינטראקציה של מי-טריטיום ( $T_2O$ , HTO) עם הצמחיה

Koranda ו-Anspaugh (סימוך 17) מציעים מודל בו ריכוז הטרטיום במי-הצמח  $C_v^0$ , פרופורציוני לריכוז הממוצע של טריטיום בלחות האטמוספירה ( $\bar{C}$ ).

כדי לקבל את הריכוז הממוצע של טריטיום במי-הצמח יש לחלק את הריכוז הממוצע של טריטיום בלחות האטמוספירה בלחות האוויר (H):

$$C_v^0 = 0.5 \frac{\bar{C}}{H}$$

קבוע הפרופורציה שנמצא על-סמך מדידות ניסיוניות הוא 0.5.

עיקר המודל הוא בכך שריכוז הטריטיום במי-הצמח אינו יכול להיות גבוה מאשר  $\bar{C}/H$  כתוצאה מחשיפה לאוויר בעל אקטיביות  $\bar{C}$ .

Be10t (סימוך 18) פיתח מודל ניסיוני המתאר מעבר של אדים של מי-טריטיום לעלה וממנו כבעיה של דיפוזיה דרך הפיוניות של משטח העלה. המודל נחקר בעזרת ניסיונות שנעשו בתנאים מטאורולוגיים ופיזיולוגיים שונים שבהם נחשפו עלי גפן לרמה קבועה של אדים של מי-טריטיום.

כאשר ריכוז הטריטיום באוויר הוא אפס, ריכוזו במי העלה מבוטא כירידה אקספוננציאלית עם מחצית חיים של:

$$T_{1/2} = 0.693 \frac{\alpha \mu \tau}{\rho}$$

היחס בין ריכוז הטריטיום במי-העלה (C) לבין ריכוזו בלחות האוויר ( $C_a$ ) כתלות בזמן החשיפה נתון על-ידי:

$$\frac{C}{C_a} = \alpha E \cdot \left( 1 - e^{-kt} \right)$$

כאשר:

E - הלחות היחסית באטמוספירה;

$\alpha$  - העבר של היחסים האיזוטופיים (T/H) בנוזל ובאדים ( $\alpha = 1.1$ );

t - הזמן שחלף (sec);

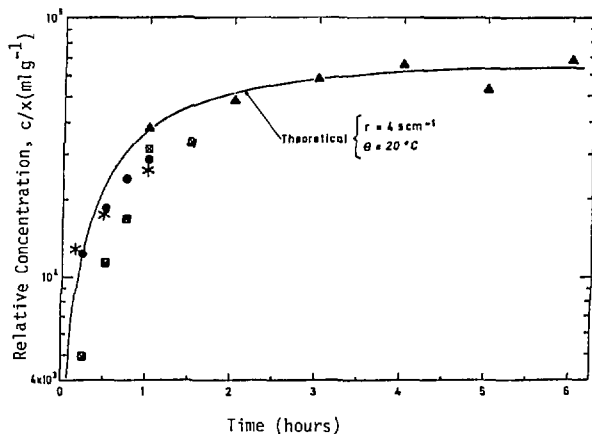
x - התנגדות העלווה ( $\text{sec}\cdot\text{cm}^{-1}$ ).

$\mu$  - כמות המים ליחידת שטח של עלה ( $\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ );

$\rho$  - צפיפות אדי המים באוויר הרווי ( $\text{g}\cdot\text{ml}^{-3}$ );

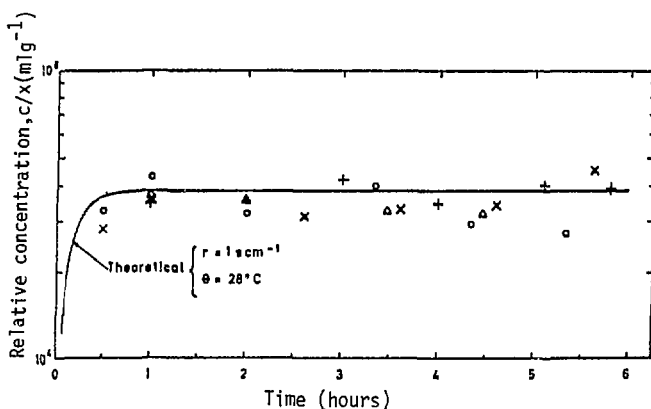
$\kappa$  - קצב האלימנציה ( $\text{sec}^{-1}$ ) נתון על-ידי:  $\kappa = \rho/\alpha\mu x$

נעשו ניסיונות שצטרתם היתה לעמוד על הקשר בין קליטה ואיבוד מי-טרטיום ועל מאפייני העלה כגון התנגדות הפיוניות וממפרטורה. לפיכך, בוצעו ניסיונות עם אותם התנאים, בקיץ כאשר תהליך החילוף גבוה מאוד ובסתיו כאשר הוא קטן מאוד. בניסוי נחשפו 15 עצי גפן לרמה קבועה של אדים של מי-טרטיום למספר שעות. הסידרה הראשונה של הניסויים בוצעה בסתיו (ספטמבר). התנגדות הפיוניות נמדדה ונמצאה כ- $3.5 \pm 0.7 \text{ sec}\cdot\text{cm}^{-1}$ . הטמפרטורה נעה בין  $17 \pm 21^\circ \text{C}$ . כציר 4 ניתן היחס  $c/x$  ( $\text{ml}\cdot\text{g}^{-1}$ ) המבטא את ריכוז הטרטיום במי העלה ביחס לריכוזו באטמוספירה כתלות בזמן שחלף מתחילת החשיפה.



ציר 4 ריכוז הטרטיום במי העלה ביחס לריכוזו באטמוספירה כתלות בזמן שחלף מתחילת החשיפה (כחודש ספטמבר) (סימון 18).

הסיררה השנייה של הניסויים (ציור 5) בוצעה בקיץ (יוני) של אותה השנה. התנגדות הפיוניות הייתה  $1.5 \pm 0.5 \text{ sec} \cdot \text{cm}^{-1}$ , קטנה מאשר בסיררה הראשונה. הטמפרטורה נעה בסביבות  $31^\circ\text{C}$ . כלומר, הניסיונות נערכו בטמפרטורה גבוהה והתנגדות פיוניות נמוכה. ניתן לראות כי רמת הפלטו מושגת תוך פחות מ-30 דקות, והדיפוזיה של הטריטיום דרך הפיוניות הינו הצעד המגביל את קצב תנועת הטריטיום מהאוויר לעלי הצמח, אפילו כאשר הפיוניות פתוחות.

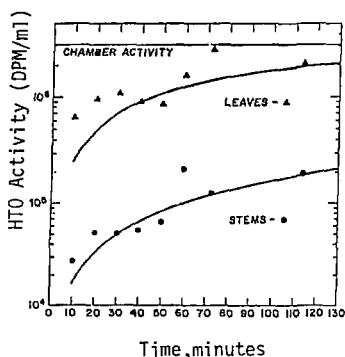


ציור 5 ריכוז הטריטיום במי העלה ביחס לריכוזו באטמוספירה כחלות בזמן שחלף מזמן החשיפה (בחודש יוני) (סימוך 18).

Dinner (סימוך 19) חשף צמחי עגבניה ללחות אטמוספירה שהכילה  $\text{HTO}$ . קצב הקליטה בעלים היה מהיר מאוד, עוקב בקירוב אחר ריכוז ה- $\text{HTO}$  באטמוספירת התא, בעוד שהקליטה של הפירות הירוקים התקדמה באיטיות. ריכוז הטריטיום שהתקבל במי-הצמח, בשיווי-משקל, היה כ-50% מריכוז הטריטיום בלחות המים שבאטמוספירת התא. שיווי-משקל גבוה יותר (78%) הושג בריקמת עלים שבהם יחס שטח הפנים לנפח גדול יותר. תוצאות אלה מצויות בהתאמה טובה עם קצבי הקליטה שנמצאו עבור עלים של צמחים אחרים על-ידי Kline (סימוך 20) ו-Mcfarlane (סימוך 21).

Dinner גם מצא כי היחס בין האקטיביות הספציפית של טריטיום הקשור אורגנית בצמחיה לאקטיביות המצויה במי-הצמח הינו 3.2 בקירוב. לדבריו אינפורמציה זו נמצאה על-ידי חוקרים נוספים ועדיין לא הוסברה רייה. לכן זמן החשיפה הדרוש בכדי להגיע לשווי משקל הוא ארוך מאוד עבור פירות בהשוואה לעלים. כלומר, קצב הקליטה של הטריטיום על-ידי הפרי הוא נמוך מזה של העלים. האמור לעיל משקף את יעילות שיחלוף הגז האופיינית לעלווה בהשוואה לתכונות שומרות המים של הפרי.

Kline (סימוך 20) מצא כי המים בעלי דשא מכילים יותר טריטיום מאשר המים בגזעי עצים לאחר אותה תקופה של חשיפה. לדבריו רינמיקת השיחלוף של העלים עם האטמוספירה גבוהה מזו של הגזעים עם האטמוספירה (ציור 6).

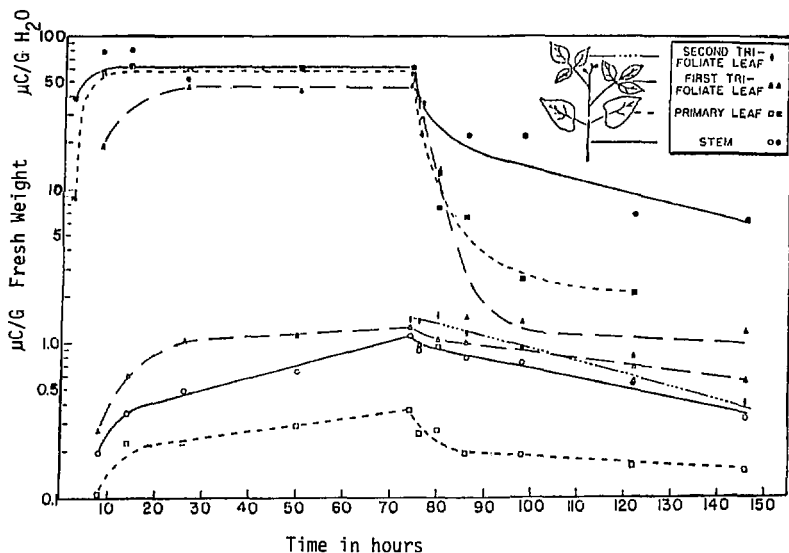


ציור 6

קליטה של ארי  $\text{HTO}$  בעלי רשא ובגזעים מאטמוספירה המכילה טריטיום (סימוך 20).



Cline (סימוך 22) גירל צמחי שעועית בתמיסת נוטריאנט שהכילה HTO ברמה של  $100 \mu\text{Ci/ml}$ . לאחר כ-12 שעות של חשיפה לתמיסה, ריכוז הטריטיום של כל הרוגמאות במי-הצמח הגיע לשיווי-משקל השווה ל-45+65% של ריכוז הטריטיום שהיה בתמיסה (ציור 7).



ציור 7 קליטה והחזקה של טריטיום במי-הצמח ובריקמה בחשיפה לטריטיום אוקסיר. טריטיום אוקסיר נכח בתמיסת הנוטריאנט ברמה של  $100 \mu\text{C/ml}$  במשך 70 שעות ובזמן זה לא ניתנה תוספת של טריטיום לצמחים (סימוך 22).

Waisel ו- Vaadia (סימוך 23) חשפו ענפים עליונים של חמניות לאדים של מי-טריטיום במשך חצי שעה. ריקמת המים של העלים הכילה 49.6 ו-44% של ריכוז הטריטיום שהיה באטמוספירה.

Koranda ו-Martin (סימוך 10) חשפו עמונה חלקים של צמחים שונים לאדים של מי-טריטיום, לזמנים של שעה או מחצית השעה ומצאו כי היחס בין ריכוז הטריטיום במי-הצמח לזה שבאטמוספירה נע בין  $0.17 \pm 0.49$ . לא נצפתה כל עליה ביחס, כאשר זמן החשיפה גדל ממחצית השעה לשעה לגבי אותם החלקים, כלומר הריכוזים הינם בשווי-משקל (ראה טבלה 11). התוצאות מראות כי הקליטה של מי-טריטיום המצויים באטמוספירה, על-ידי העלים, הינה תהליך מהיר. קבוע הקליטה ניתן על-ידי:

$$\text{קבוע הקליטה} = \frac{pCi/ml \text{ טריטיום בריקמת המים של הצמח לאחר חשיפה במשך זמן } t_0}{pCi/ml \text{ טריטיום באדים שכתא החשיפה}}$$

טבלה 11 קבוע הקליטה של הצמח בחשיפה לאדים של מי-טריטיום (סימוך 10).

קבוע הקליטה	זמן החשיפה בדקות	הצמח
0.17	60	אורן שחור (Black Pine)
0.19 ; 0.21	30	שיבולת שועל (Oats)
0.26	30	אספסת מצויה (Burclover)
0.23	60	
0.27	30	תירס (Corn)
0.29	60	מקור החסידה הגזור (Cranebill)
0.39	60	שעורה (Wild Barley)
0.45	30	(Fiddleneck)
0.42	60	
0.49	30	תמניה

הסדר של רוגמאות הצמח בטבלה הינו מהיבש לרטוב. כלומר, הצמח בעל הקצב הגבוה ביותר של מטכוליזם של מים יתן את הקצב הגבוה ביותר של קליטת ארים של מי-טרטיום, ומחצית החיים של הטריטיום בעלים שלו תהיה הקצרה ביותר. מהטבלה נובע:

- (א) קבוע הקליטה הוא גדול יותר עבור צמחים שלהם קצב שיחלוף מים מהיר יותר;  
 (ב) מרגע הפסקת החשיפה של צמח לאווירת טריטיום הוא מאבד מהאקטיביות שלו לסביבה. קצב איבוד האקטיביות גדול ככל שמהיר יותר קצב שיחלוף המים בין הצמח לסביבה.  
 (ג) הקליטה של ארים של מי-טרטיום גבוהה ביותר בחמניות ונמוכה ביותר באורן שחור שהוא למעשה העץ היחיד בסדרה.

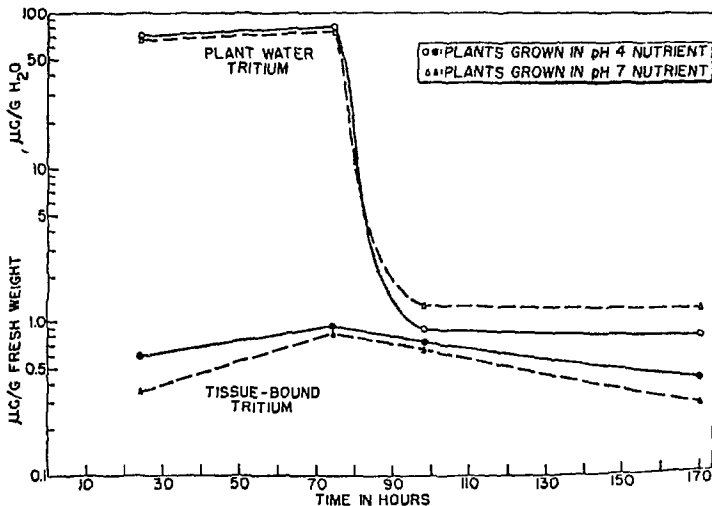
### 5.3 האינטראקציה של טריטיום גזי ( $T_2$ , HT) עם הצמחיה

בניגוד למחקר הנרחב הרן בקליטה של מי-טרטיום על-ידי צמחים, הקליטה של טריטיום גזי על-ידי מערכות אקולוגיות קיבלה תשומת לב מועטה. Cline (סימון 22) ערך ניסוי עם צמח שעועית, אשר חלק מעליו נחשף לאווירת טריטיום גזי באקטיביות של  $200 \mu\text{Ci}/\text{m}^3$ . התברר כי העלים שנחשפו הכילו רמה גבוהה של מי-טרטיום לאחר החשיפה ביחס לשאר חלקי הצמח שלא נחשפו (טבלה 12, מתוך סימון 22).  
 טבלה 12 טריטיום ברקמות הצמח כתוצאה מחשיפה של עלה לטריטיום גזי במשך חמש שעות.

טריטיום הקשור אורגנית ( $\mu\text{Ci}/\text{g}$ )		טריטיום במי-הצמח ( $\mu\text{Ci}/\text{g}$ )		ריקמת הצמח
הרצה II	הרצה I	הרצה II	הרצה I	
0.004	0.01	170	560	ענפים ועלים מעל העלה שנחשף
0.002	0.002	40	270	ענפים ועלים מתחת לעלה שנחשף
0.079	0.039	7600	11000	העלה שנחשף
0.017	0.015	50	170	שורשים

מטבלה 12 עולים שלושה מימצאים משמעותיים במיוחד:

- (א) הכמות הגדולה ביותר של הטריטיום נמצאת בתוך העלה שנחשף או על פניו. כמו-כן ברור כי גז המימן המתחמצן למי-טריטיום אינו מתחלק לכל אורך הצמח ומרבית ההפיכה למי-טריטיום מתרחשת בתוך העלה החשוף או על פניו.
- (ב) החימצון למי-טריטיום מתרחש ברובו בעלה שנחשף ופחות בשאר חלקי הצמח.
- (ג) כמות הטריטיום הקשורה אורגנית קטנה מאוד בהשוואה לזו המצוייה במי-ריקמת הצמח. כצורך 8 מוצגת ההשפעה של ה-pH על הקליטה והפיקסציה של טריטיום במי-הצמח ובריקמה.



ציר 8 השפעת ה-pH על הקליטה והפיקסציה של טריטיום במי-הצמח ובריקמה. טריטיום אוקסיד נכח בתמיסת הנוטריאנט ברמה של  $100 \mu\text{Ci}/\text{ml}$  במשך 70 שעות ובזמן זה לא ניתנה כל תוספת של טריטיום לצמחים (סימון 22).

Murphy (סימון 6) ו-Garland (סימון 24), חשפו קבוצות של מחטי אורן למשך רקה אחת לריכוזים שונים של  $\text{HT}$  בכרי לברוק את קצב הקליטה. התברר כי קצב קליטת הטריטיום מוגבל בריכוזים גבוהים. לעומת זאת, בריכוזים נמוכים של טריטיום, ההתנגדות הפנימית של העלה היא נמוכה, ולכן קצב הקליטה של הטריטיום לעלה הינו גבוה יותר. עקב המסיסת הנמוכה של  $\text{HT}$ , קצב קליטתו איטי יותר מקצב הקליטה של  $\text{HTO}$ , אפילו בריכוזים נמוכים.

## 6 האינטראקציה של מי-טריטיום וטריטיום גז עם הקרקע

### 6.1 האינטראקציה של מי-טריטיום עם הקרקע

התנועה של מי-טריטיום בקרקע מושפעת משלושה גורמים בולטים:

(א) התכונות הפיזיקליות של הקרקע:

צפיפות החומר ואפשרות החלחול של הקרקע יקבעו את קצב החרייה של מי-הטריטיום ואת כמות הטריטיום ששעבור דרך פני הקרקע.

אדמות המכילות הרבה טיט יעכבו חרירת מים לעומת אדמות סופגות.

(ב) חוספות מים לקרקע:

Corey ו-Horton (סימוך 25) הראו כי שיכבת מי-הטריטיום בעמורת מעבר המכילה קרקע רוויה במים, הועתקה כאשר הוסיפו מים לעמורה. כלומר, הוספת המים לשטח פני-הקרקע גורמת לשיכבת מי-הטריטיום לנוע מעלה או מטה כתגובה למפל הלחץ מים-קרקע.

(ג) נוכחות מים בקרקע קורם לחשיפה לטריטיום:

לכאורה נראה כי נפח המים המצוי באדמה, לפני כניסת הטריטיום, ניתן למיהול. למעשה, הערבוב עם פרופיל האדמה אינו מושלם, ולכן שיכבת מי-הטריטיום נותרה יחסית בוררת ונעה בהשפעת משקעים או השקיה.

קליטת מי-טריטיום על-ידי הקרקע מתנהגת לפי אותם עקרונות של קליטת מים (סימוך 6). הריכוזים הגבוהים של מי-טריטיום שנמצאו בקרקע לאחר שיחרור HT מראים כי הקרקע גורמת להפיכה משמעותית של HT למי-טריטיום. נוכחות של מיקרואורגניזמים בקרקע מזרזת את קצב חימצון ה-HT למי-טריטיום.

בשנים 1974 ו-1975 כ-99% מכמות הטריטיום ששחרר באופן מבוקר לאטמוספירה מה-Savannah River Plant היחה בצורת HT (סימוכין 18, 26). ריכוז הטריטיום הגבוה ביותר שנמצא היה  $9000 \text{ pCi/ml}$  במי-הקרקע שבסביבת הכור. מדידות שנעשו לאחר השיחרור הראו כי שיכבת מי-הטריטיום נוצרה על שטח פני הקרקע והועתקה כלפי מטה בהשפעת הגשם.

בשנים 1974 ו-1975 שחרר טריטיום באופן מבוקר בצורת HT לאטמוספירה

ב-Savannah River Plant (סימוכין 18, 26).

ריכוז הטריטיום הגבוה ביותר שנמצא בסביבת הכור היה במי-הקרקע בהשוואה לצמחיה. המנגנון שהוצע, לפיכך, הוא ש- $HTT$  הופך למי-טריטיום על-פני השטח של הקרקע. כאשר בוחנים את התפלגות מי-הטריטיום כקרקע מוצאים כי הריכוז הגבוה ביותר של מי-טריטיום לאחר שחרור  $HTT$  יהיה בשטח הפנים של הקרקע. שיכבת מי-הטריטיום נוצרת על שטח פני-הקרקע, נכנסת אל תוך הקרקע על-ידי דיפוזיה ומועקת בהשפעת הגשם. לכן, הריכוז הנמוך ביותר של מי-טריטיום יימצא בשיכבת הקרקע העמוקה ביותר והוא תוצאה של שיכבת מים בעלת ריכוז טריטיום נמוך שהתקרמה בהשפעת חילחול מי-הגשם (טבלה 13).

טבלה 13 התפלגות מי-טריטיום כתלות בעומק הקרקע (סימון 6).

העומק (cm)	הריכוז (pCi/ml)
0±8	150
8±15	92
15±23	76
23±30	61

## 6.2 האינטראקציה של טריטיום גזי עם הקרקע

הטריטיום הגזי המצוי באטמוספירה חוזר לקרקע על-ידי תהליך דיפוזיה ומתחמצן למי-טריטיום על-ידי מיקרואורגניזמים (סימון 21). תהליך זה מתרחש בסוגים שונים של קרקע (סימון 27) ובתחום רחב של תנאים סביבתיים (סימוכין 24, 28).

Murphy (סימון 29) סיכם את תוצאות המדידות של מי-טריטיום שנחשבו עקב שיחרור של טריטיום בשני אירועים.

באירוע אחד שוחררו  $479 \text{ kCi}$  של  $HT$  ובשני  $33 \text{ kCi}$  של  $HTO$ . מן התוצאות המוצגות בטבלה 14 ניתן להסיק כי כאשר משוחרר  $HT$ , המקום הטוב ביותר לגילוי הוא על-פני הקרקע (בצורת  $HTO$ ) ובקרקע, ואילו כאשר משוחרר  $HTO$ , הריכוזים הגבוהים ביותר יימצאו בעלווה.

טבלה 14 האקטיביות של HTO בעלווה ובקרקע עקב שחרור HT ו-HTO בשני אירועים (סימוך 29).

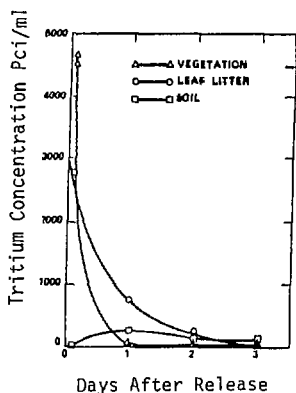
הריכוז המרבי (pCi/ml)			הכמות וצורת השיחרור
בעלווה	בקרקע	בשטח פני-הקרקע	
135	9000	7200	479 kCi HT
5200	2800	20	33 kCi HTO

Sweet ועמיתיו (סימוך 30) פרטו את התנאים שבהם התרחשו שני האירועים הללו (טבלה 15).

טבלה 15 התנאים שבהם השתחרר טריטיום.

תנאי השיחרור	התאריך	
	2/5/1974	27/3/1981
הכמות והסוג של הטריטיום המשוחרר	479 kCi HT	33 kCi HTO
אחוז ה-HT	99.4	0.3
הזמן באתר המרידה	9:30 a.m.	10:25 a.m.
טמפרטורת האוויר	17 °C	18 °C
צפיפות אדי המים באוויר	12 gr/m <sup>3</sup>	7 gr/m <sup>3</sup>
מהירות הרוח	2 m/sec	4 m/sec
היציבות האטמוספירית	C	C
הימים שחלפו מאז שירד גשם	4	8

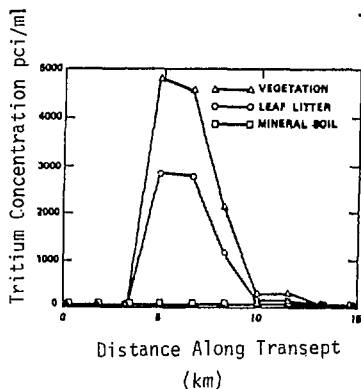
שיחרור הטריטיום שארע במרץ 1981 והכיל 33 kCi של HTO, החל בשעה 9:45 לפני הצהרים והסתיים לאחר 90 דקות. הענן התקדם עם הרוח במהירות של 4 m/sec והגיע לאתר המרידה בשעה 10:25 לפני הצהרים. תנאי היציבות המטאורולוגיים בזמן השיחרור היו מסוג C לפי הסיווג של פסקוויל. נאספו דוגמאות של מחטי אורן, עלי שלכת ועל שני הסנטימטרים העליונים של הקרקע, לאורך ציר הרוח. רוגמאות הצמחיה והארמה יובשו בהקפאה בוואקואום ונמדדו. בציור 9 מוצגים ריכוזי HTO בצמחיה, בעלי השלכת ובקרקע שעתיים לאחר שיחרורו.



### ציר 9

ריכוז  $\text{HTO}$  בצמחיה  
בעלי השלכת ובקרקע  
שעתיים לאחר שיחרור  $\text{HTO}$  (סימוך 30).

כפי שניתן לראות, שעתיים לאחר השיחרור מוצאים ריכוזים גבוהים של  $\text{HTO}$  בצמחיה ובעלי השלכת ואילו יקרקע הריכוזים נמוכים. המקסימה בריכוזים נמצאת במרחק של כ-6 ק"מ מהמקור. ציר 10 מראה שינוי בתכולת הטריטיום במחטי האורן בעלי השלכת ובארמה, שלושה ימים לאחר החשיפה לאדי  $\text{HTO}$ , בנקודות שבהם נמצאו השיאים שבציר 9. רמת הטריטיום ההתחלתית במחטי האורן ובעלי השלכת היתה  $5000 \text{ pci/ml}$ . במחטי האורן הרמה ירדה לרקע לאחר 24 שעות. בעלי השלכת רמת הטריטיום ירדה לאט אבל הגיעה לרמת הרקע לאחר 3 ימים. לעומת זאת עלתה הרמה בארמה למקסימום לאחר 24 שעות ואחר כך ירדה לאט. לאחר 3 ימים נשארו רמות טריטיום גבוהות מהרקע רק בארמה.



### ציר 10

שינוי בתכולת הטריטיום במחטי האורן, בעלי השלכת ובארמה שלושה ימים לאחר החשיפה לאדי  $\text{HTO}$ , בנקודות שבהם נמצאו השיאים שבציר 9 (סימוך 30).

בטבלה 16 מוצגים הערכים המרביים של אקטיביות ה- $\text{HTO}$  שנמדדו באוויר, במחטי האורן, בעלי השלכת ובקרקע, בשני האירועים.



טבלה 16 אקטיביות מי-טרטיום המרבית ביום השיחרור.

הדוגמה	אקטיביות בתאריכים	
	2/5/1974	27/3/1981
אוויר	100 mCi/m <sup>3</sup>	2.0 mCi/m <sup>3</sup>
מחטי אורן	135 pCi/ml	4900 pCi/ml
עלי שלכת	לא נמדד	2700 pCi/m <sup>2</sup>
קרקע	7200 pCi/ml	* 40 pCi/ml

\* נמדד רקע באקטיביות ספציפית של מי-הקרקע ונמצא כ-20 pCi/ml.

כפי שניתן לראות, כאשר משוחרר טרטיום כ-HTO לאטמוספירה יתקבלו ריכוזים גבוהים של מי-טרטיום במחטי האורן ובעלי השלכת. לעומת זאת, כאשר משוחרר טרטיום כ-HT לאטמוספירה יתקבלו ריכוזים גבוהים של מי-טרטיום בקרקע. בטבלה 17 מוצג השינוי באקטיביות במחטי האורן כחלות בזמן לאחר השיחרור.

טבלה 17 אקטיביות מי-טרטיום במחטי האורן לאחר שני השיחרורים.

מספר הימים לאחר השיחרור	האקטיביות ב-pCi/ml במי-הצמח בשנים	
	1974	1981
0	135	4900
1	100	40
8	730	25
29	75	לא נמדד

ניתן לסכם את השוני בתנועת הטריטיום בסביבה לאחר שיחרור אדים של מי-טריטיום (מרס 1981) לעומת תנועת הטריטיום הנובעת משיחרור HT (מאי 1974) בתנאים מטאורולוגיים דומים:

#### לאחר שיחרור HTO:

(א) נמצאו רמות טריטיום גבוהות בדוגמאות של מחטי האורך ועלי שלכת שנלקחו מיד לאחר השיחרור (ציור 9) בהשוואה לרמות הטריטיום שנמצאו בקרקע.

(ב) רמות הטריטיום ההתחלתיות במחטי האורך ובעלי השלכת היו  $5000 \text{ pCi}/1$  (ציור 10) אך הן ירדו במהירות. במחטי האורך הרמה ירדה לרמת הרקע 24 שעות לאחר השיחרור, בעלי השלכת הרמה ירדה לאט יותר אך הגיעה לרמת הרקע 3 ימים לאחר השיחרור. לעומת זאת בקרקע הרמה עלתה מרמה התחלתית למקסימום 24 שעות לאחר השיחרור ולאחר מכן ירדה באיטיות. שלושה ימים לאחר השיחרור, נשארו רמות טריטיום גבוהות מהרקע רק בקרקע. 3 שבועות לאחר השיחרור נלקחו דוגמאות של  $5 \text{ cm}$  קרקע עד לעומק של  $75 \text{ cm}$  מפני הקרקע. לא נמצאו רמות טריטיום מעל לרמת הרקע.

#### לאחר שיחרור HT:

(א) במחטי האורך נמצאו רמות טריטיום קטנות בהשוואה לרמות שנמצאו לאחר שיחרור HTO. אקטיביות מי-טריטיום מעל הרקע הנורמלי נמדדה במחטי האורך 30 ימים לאחר השיחרור.

(ב) בקרקע נמצאה שיכבה של מי-טריטיום בעומק  $35 \text{ cm}$ , כאשר האקטיביות המקסימלית היתה  $350, 56 \text{ pCi}/\text{ml}$  ימים לאחר השיחרור.

(ג) האקטיביות בעלי השלכת לא נמדדה.

7 סיכום

טריטיום עלול להשתחרר ממתקנים לסביבה בעיקר כטריטיום גזי ( $HT$ ,  $T_2$ ) או כטריטיום מימי ( $T_2O$ ,  $HTO$ ). הטריטיום הגזי מתחמצן ומשחלף לטריטיום מימי בתנאים אטמוספיריים רגילים בקצב 0.2% עד 3% ליום. קצב החימצון יכול להיות מהיר יותר בנוכחות זרזים מתאימים כמו זרזים מתכתיים או מיקרואורגניזמים. הקינטיקה של מי-טריטיום בסביבה זהה לזו של מים רגילים. מי-טריטיום באטמוספירה נקלטים בצמח ררך העלים, הגבעול והגזע. חלק מהמים נקלטים על-ידי הריקמה המימית של הצמח ונפלטים בתהליכי ההזעה והאידוי הרגילים. החלק האחר של המים משתתף בתהליך הפוטוסינתזה, נקשר למוליקולות אורגניות הממוקמות בכל חלקי הצמח ועובר קיבוע אורגני. זמן השהיה של הטריטיום הקשור אורגנית ארוך בהשוואה לזה של הטריטיום הקשור מימית. בתנאי שיווי-משקל, היחס בין ריכוז הטריטיום המצוי בריקמה המימית של הצמח לבין הטריטיום המצוי באטמוספירה מגיע לכ-50%. שיווי-משקל זה גבוה יותר, עבור ריקמת עלים בעלת יחס שטח פנים לנפח גדול יותר ותכונות חילוף גזים מהירות יותר.

תנועה של מי-טריטיום המשוחרר לאטמוספירה תהיה שונה באופן משמעותי מהתנועה של טריטיום גזי. מי-טריטיום יקלטו על-ידי צמחיה ופסולת של עלים המצויים על-פני הקרקע. הוא מתאייד במהירות ודועך תוך  $1+2$  ימים. טריטיום גזי ייקלט על-ידי הקרקע ויהפוך על-ידי תהליכים מיקרוביים למי-טריטיום. התאיידות של מי-טריטיום מהקרקע נמוכה בהשוואה להתאיידות מהצמחיה, לפיכך יתקבלו ריכוזים מרורים גם חודש לאחר האירוע.

תנועה של מי-טריטיום בקרקע מושפעת מהתכונות הפיסיקליות של הקרקע כמו: צפיפות, סוג הקרקע וכו', מתוספות מים לקרקע עקב משקעים או השקיה ומנוכחות מים בקרקע קודם לחשיפה לטריטיום.

הקליטה של מי-טריטיום על-ידי הקרקע מתנהגת לפי אותם עקרונות של קליטת מים. הריכוז הגבוה ביותר של מי-טריטיום שנקלט על-ידי הקרקע יימצא בשיכבה הגבוהה ביותר של הקרקע והריכוז הנמוך ביותר של מי-טריטיום יימצא בשיכבת הקרקע העמוקה ביותר. טריטיום גזי המצוי באטמוספירה חוזר לקרקע על-ידי תהליך של דיפוזיה ומתחמצן למי-טריטיום על-ידי מיקרואורגניזמים. הריכוז הגבוה ביותר יימצא על-פני הקרקע עם מתרחש החימצון.

Referencesסימוכין

1. A.A. Moghissi and M.W. Carter, (eds.), *Tritium*, Messenger Graphics, Phoenix, Arizona 1973.
2. *Behaviour of Tritium in the Environment*, Proceedings of the International Symposium held in San Francisco, 16-20 October 1978, IAEA, Vienna, 1979.
3. *Proceedings: Tritium Technology in Fission, Fusion and Isotopic Applications*, American Nuclear Society, National Topical Meeting held in Dayton Ohio, April 29 - May 1 1980.
4. D.C. Bogen and G.A. Welford, "Fallout tritium distribution in the environment", *Health Physics*, 30, 203-206 (1976).
5. D.C. Bogen, G.A. Welford and C.G. White, *Tritium Distribution in Man and His Environment*, IAEA-SM-232/75, pp. 567-574, 1978.
6. C.E. Murphy, Jr. and M.M. Pengergast, "Environmental transport and cycling of tritium in the vicinity of atmospheric releases", in: *Behaviour of Tritium in the Environment*, Vienna: IAEA, pp. 361-372, 1979.
7. S. Strack, L.A. König, *Determination of Organically Bound Tritium in Environmental Samples by Application of the Oxidizing Plasma Technique*, KfK 3249 Dezember 1981 (Kernforschungszentrum Karlsruhe).
8. R.M. Brown, *Environmental Tritium in Trees*, IAEA-SM-232/44 pp. 405-418, 1979.
9. P.J. Papagiannakopoulos and C.E. Easterly, *Conversion of Tritium Gas to Tritiated Water*, Oakridge National Lab., TN (USA) May 1979, ORNL/TM-6699, UNCLAS.
10. J.J. Koranda and J.R. Martin, "The movement of tritium in ecological systems", in *Tritium*, edited by A.A. Moghissi and M.W. Carter, Messenger Graphics, Phoenix, Arizona, 1973.
11. C.E. Easterly and J.F. Phillips, "Tritium conversion and its influence on personal protection at a fusion reactor", in *Proceedings Tritium Technology in Fission, Fusion, and Isotopic Applications*, American Nuclear Society, National Topical Meeting held in Dayton Ohio, April 29 - May 1 1980.

12. L.M. Dorfman and B.A. Hemmer, "Ion-Pair yield of the tritium-oxygen reaction", *Journal of Chemical Physics*, 22, 1555-1558 (1954).
13. J.Y. Yang and L.H. Gevantman, "Tritium  $\beta$ -radiation induced isotopic exchange with water vapor *J. Phys. Chem.* 68, 3115-3119 (1964).
14. J.D. Eakins and W.P. Hutchinson, "The Radiological Razard from the conversion of tritium to tritiated water in air by metal catalystrs", in *Tritium*, edited by A.A. Moghissi and M.W. Carter, Messenger Graphics, Phoenix, Arizona, 1973.
15. G.J. Casaletto, L.H. Gevantman and J.B. Nash, *The Self-Radiation Oxidation of Tritium in Oxygen and Air* USNRDL-TR-565, Naval Radiol. Def. Lab., San Francisco, 1962.
16. L.F. Belovodskii, V.K. Gaevoi, V.I. Grishmanovskii, and N.V. Nefedov, "Oxidation of tritium in air under the action of intrinsic radiation", *Soviet Journal of Atomic Energy* 38, 379-381 (1975).
17. L.R. Anspaugh, J.J. Koranda, W.L. Robinson and J.R. Martin, "The dose to man via food-chain transfer resulting from exposure to tritiated water vapor", in *Tritium*, edited by A.A. Moghissi and M.W. Carter Nessenger Graphics, Phoenix, Arizona, 1973.
18. Y. Belot, D.Gauthier, H. Camus and C. Caput, "Prediction of the flux of tritiated water from air to plant leaves", *Health Physics* 37, 575-583 (1979).
19. P.J. Dinner, D.J. Gorman and F.S. Spencer, "Tritium dynamics in vegetables: experimental results", published in: *Proceedings: Tritium Technology in Fission, Fusion and Isotopic Applications*, American Nuclear Society, National Topical Meeting held in Dayton Ohio, April 29-May 1 1980.
20. J.R. Kline and M.L. Stewart, "Tritium uptake and loss in grass vegetation which has been exposed to an atmospheric source of tritiated water", *Health Physics* 26, 567-573 (1974).
21. J. C. McFarlane, R.D. Rogers, and D.V. Bradley, Jr. "Environmental tritium oxidation in surface soil", *Env. Sci. Technol.* 12, 590-593 (1978).

13. Pomroy C., Noel, L. (1981): "Retention of uranium thorax burdens in fuel fabricators", *Health Phys.* 41:393-400.
14. Schieferdecker, H., Dilger, H. and Doerfel, H. (1985): "Inhalation of U aerosols from  $UO_2$  fuel element fabrication", *Health Phys.* 48(1):29-48.
15. Stradling, G.N., Stather, J.W., and Gray, S.A. et al. (1987): "Metabolism of uranium in the rat after inhalation of two industrial forms of ore concentrate: The implications for occupational exposure", *Human Toxicol.* 6:385-393.
16. Lippmann, M. (1958): "Correlation of Urine Data and Medical Findings with Environmental Exposure to Uranium Compounds", in Symposium on Occupational Health Experience and Practice in the Uranium Industry, New York, USA, Oct. 15-17, 1958, HASL-58, pp. 103-115.
17. Thind, K.S. (1987): "A comparison of ICRP publication 30 lung model-based predictions with measured bioassay data for airborne natural  $UO_2$  exposure", *Health Physics* 53(1):59-66.
18. Ellender, M. (1987): "The clearance of uranium after deposition of the nitrate and bicarbonate in different regions of the rat lung", *Human Toxicol.* 6:479-482.
19. De Rey, B.M., Lanfranchi, H.E., and Cabrini, R.L. (1983): "Percutaneous absorption of uranium compounds", *Environ. Res.* 30:480-491.
20. Orcutt, J.A. (1949): "The Toxicology of Compounds of Uranium Following Applications to the Skin", in Voegtlin, C., Hodge, H.C. (eds.): Pharmacology and Toxicology of Uranium Compounds, McGraw-Hill, 1st edit., pp. 377-414, 1949.
21. De Rey, B.M., Lanfranchi H.E., and Cabrini, R.L. (1984): "Deposition pattern and toxicity of subcutaneously implanted uranium dioxide in rats", *Health Phys.* 46(3):688-692.
22. Damon, E.G., Eidson, A.F., Hobbs, C.H. and Hahn, F.F. (1986): "Effects of acclimation to caging on nephrotoxic response of rats to uranium", *Lab. Animal Sci.* 24-27.
23. Wrenn, M.E. et al. (1985): "Metabolism of ingested U and Ra", *Health. Phys.* 48(5):601-633.
24. Butterworth, A. (1958): "Human Data on Uranium Exposure", in Symposium on Occupational Health Experience and Practice in the Uranium Industry, New York, Oct. 15-17, 1958, HASL-58, pp. 41-46.

