

A trícium szerepe és viselkedése a légkörben és a csapadékban: természetes és antropogén hatások

László Elemér¹, Leelőssy Ádám², Hajnal Andor³, Baksa Mátyás¹, Palcsu László¹

¹Izotóp Klimatológiai és Környezetkutató Központ, HUN-REN Atommagkutató Intézet, Debrecen, Bem tér 18/C, (e-mail: laszlo.elemer@atomki.hu)

²ELTE Eötvös Loránd Tudományegyetem, Földrajz- és Földtudományi Intézet, Meteorológiai Tanszék, Budapest, Pázmány Péter sétány 1/A

³Isotoptech Zrt., Debrecen, Bem tér 18/C

DOI: 10.59258/hk.17591



Kivonat

A trícium régóta használt, hasznos nyomjelző izotóp a légköri transzport, a felszíni és a felszín alatti vizek, valamint a globális vízforgalom tanulmányozásához. Az elmúlt évtizedekben a tríciummérések alkalmazása jelentősen megnövekedett a vízkutatásban, hidrológiában, meteorológiában, oceanográfiában. A tanulmány célja, hogy bemutassa a trícium természetes és mesterséges forrásait és nyelőit, valamint kémiai-fizikai formáit a légkörben. Továbbá összefoglaljuk a csapadékban a trícium környezeti szintjét befolyásoló hatásokat: a hidrológiai ciklus különböző fizikai folyamatait, a csapadék mennyiségét, hígulását, a naptevékenységet, a szélességi és szárazföldi hatást. 1963 óta a nukleáris tesztekkel származó magas tríciumkoncentráció a csapadékban jelentősen lecsökkent, majdnem elérve az egyensúlyi szintet. Emiatt a tríciumidősorokban azonosíthatók lettek a naptevékenység által kiváltott mintázatok, amelyeket a légköri folyamatok szintén befolyásolnak.

Kulcsszavak

Trícium (³H), hidrológiai ciklus, légköri folyamatok, antropogén források, radioaktív bomlás.

The role and behaviour of tritium in the atmosphere and precipitation: natural and anthropogenic impacts

Abstract

Tritium has long been known as a useful tracer for the study of air-mass transport, surface and groundwater, and global water circulation. In addition, the use of tritium measurements in various fields has increased significantly in recent decades in water research, hydrology, meteorology and oceanography. The study aims to present the natural and artificial sources and sinks and chemical-physical forms of tritium in the atmosphere. Furthermore, we summarize the effects on the environmental level of tritium in the precipitation, such as the different physical processes of the hydrological cycle, the amount of precipitation, dilution, solar activity, latitude and continental effects. Since 1963, the atmospheric test-ban treaty, bomb tritium concentrations in precipitation have significantly declined, reaching an almost steady-state level. Therefore, solar activity-induced patterns in tritium time series can be identified, which are also significantly influenced by atmospheric processes.

Keywords

Tritium (³H), hydrological cycle, atmospheric processes, anthropogenic sources, radioactive decay.

BEVEZETÉS

A trícium (³H) a hidrogén egy protont és két neutronot tartalmazó instabil izotópja. A kozmogén eredetű trícium a felső légkörben keletkezik oxigénből és nitrogénből, kozmikus sugárzás hatására (Ehhalt és Rohrer 2009, Hapell és társai 2004). A trícium radioaktív izotóp, felezési ideje 12,32 év (~4500 nap) (Lucas és Unterweger 2000). Béta-bomlása során ³He keletkezik. Koncentrációjának kifejezésére a TU (Tritium Unit = tríciumegység) használatos: 1 TU = egy triciált víz (HTO) molekula 10¹⁸ vízmolekulára vonatkoztatva. Ezenkívül használatos még az úgynevezett aktivitáskoncentráció is, Bq/kg mértékegységgel: 1 TU = 0,119 Bq/kg víz esetén.

A trícium radioaktív természetét az 1930-as években már ismerték, de a mérési eszközök akkoriban nem voltak megfelelőek a környezetben való jelenlétének kimutatására (Alvarez és Cornog 1939). A természetes trícium jelenlétét először a légköri hidrogénben detektálták 1948-ban, Hamburg közelében (Faltings és Harteck 1950), majd

felszíni vízből is kimérték (Grosse és társai 1951). Az évtized második felében több kutatócsoport vizsgálta a tríciumot természetes vizekben és borkészletekben, majd a kapott eredményeket hidrológiai vizsgálatokban hasznosították (Begemann és Libby 1957, Kaufman és Libby 1954). Később a méréstechnikát továbbfejlesztették, javították az analitikai pontosságot és növelték a környezeti megfigyelések számát is (Öestlund és Dorsey 1975, Öestlund és Werner 1962).

A csapadék mesterséges radioaktivitásának mérését Magyarországon Szalay Sándor kezdte meg Debrecenben az ötvenes évek elején az Atommagkutató Intézetben (ATOMKI). A kutatók egy végablakos Geiger–Müller β-számlálócsővel vizsgálták a Debrecenben lehullott csapadék aktivitását (Szalay és Berényi 1955). Az Országos Meteorológiai Szolgálatnál 1955-től megszervezték a levegő és a csapadék β-aktivitásának rendszeres mérését (Flórián 1958, Simon 1966). A VITUKI-ban 1970-ben kezdődött hazai felszín alatti vizeink környezeti izotóptartalmának

feltárása. A karszterületek tríciumvizsgálatával és az adatok hidrogeológiai értékelésével Dénes György foglalkozott (Dénes és Deák 1981). Deák József számos tanulmánya tanúsítja, hogy a VITUKI Tricarb laboratóriumában mérték a felszín alatti vizek tríciumkoncentrációját, majd ezt alkalmazták vízkor meghatározásához (Stute és társai 1997), hidrogeológiai kutatásokhoz (Deák 1975, 2006, Deák és társai 1992), vízáramlási sebesség becsléséhez (Fehér és társai 1991, Böhlke 1997). Hazánkban a Magyar Tudományos Akadémia Izotóp Intézetének kutatói 1977-ben kezdték el vizsgálni a csapadék tríciumtartalmát Budapest, Győr, Pécs, Baja és Debrecen térségéből származó mintákból (Kuruczné Csiky 1983), továbbá összehasonlító méréseket végeztek Badacsonyi és Kecskeméti környezetben lehulló csapadék és helyben termelt borok tríciumkoncentráció-értékei között (Kozák és Biró 1984). Tokaji, Pannonhalma, Szekszárd és Villány borvidékeiről származó borok tríciumtartalmának idősorait elemezték (László és társai, 2024). Ezenkívül faévgűrűk cellulózából rekonstruálták a légköri tríciumaktivitást (Kozák 1982, Kozák és Horvatini 1989). A 2000-es évektől kezdődően több évtizedes, folyamatos csapadékgyűjtést, a minták izotópanalitikai mérését és kiértékelését az Atommagkutató Intézetben (ATOMKI) végeznek, amelynek eredményei rangos nemzetközi folyóiratokban jelentek meg (Vodila és társai 2011, Palcsu és társai 2010b, Palcsu és társai 2018, Kern és társai, 2020).

A tanulmány célja, hogy átfogó képet nyújtson a trícium (^3H) természetes és antropogén forrásairól, eloszlásáról és viselkedéséről a légkörben és a csapadékban, különös tekintettel a naptevékenység és a hidrológiai ciklus közötti kapcsolatokra. Kiemelt figyelmet fordítunk a trícium térbeli és időbeli változásainak elemzésére, valamint annak bemutatására, hogy a különböző mérési módszerek – köztük a SARIMAX (Seasonal Autoregressive Integrated Moving Average + exogenous variables) modellezési technika – hogyan segíthetnek a csapadékban lévő trícium szintjének és annak természetes variabilitásának pontos becslésében. A kutatás célja továbbá, hogy hozzájáruljon a globális vízforgalom és a környezeti trícium terjedésének mélyebb megértéséhez, valamint új perspektívákat kínáljon a trícium alkalmazására a meteorológiai és hidrológiai kutatásokban.

A trícium természetes forrásai

A kozmikus sugarak nagyenergiájú töltött részecskékből állnak, amelyek többsége a Naprendszeren kívülről érkezik (galaktikus és extragalaktikus kozmikus sugárzás), továbbá jelen van az alacsonyabb energiájú szoláris kozmikus sugárzás (SCR – Secondary Cosmic Rays) is. A Föld légkörébe eljutott kozmikus eredetű részecskék másodlagos részecskéket produkálnak. A másodlagos neutronok és nuklidok a reakcióik folyamán jól ismert kozmogén izotópokat hoznak létre: a ^{14}C és a ^3H főként $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$, $^{14}\text{N}(n,^3\text{H})^{12}\text{C}$ reakciókban jönnek létre. Az átlagos természetes termelési sebességet körülbelül $2500 \text{ atom}\cdot\text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ -nek becsülték (Craig és Lal 1960, Masarik és Beer 1999). A kozmogén eredetű trícium kétharmada a sztratoszférában, míg egyharmada a troposzférában keletkezik, és kisebb mértékben triciált hidrogén (HT) formában marad

(Happell és társai 2004). A képződött trícium a sztratoszférikus oxigénnel és hidroxidionokkal reagál: $\text{H}^+ + \text{OH}^- \rightarrow \text{HTO}$, és triciált víz (HTO) formájában bekerül a hidrológiai ciklusba. A trícium a geoökológiai rezervoárokban a hidrogénatomok (prócium) egy kis részét helyettesíti. Természetes körülmények között a ^3H atomok egyensúlyi koncentrációban vannak. Ezen egyensúlyi koncentrációk azonban antropogén, ritkábban intenzívebb kozmogén események hatására megváltozhatnak.

Neutronsugárzás nem csak a kozmikus sugárzás hatására képződik, hanem a felszín alatt is, amikor az urán és a tórium spontán hasadásából származó neutronok, az (α, n) reakciók során lítiumgazdag kőzetekben tríciumot képeznek a következőképpen: $^6\text{Li} + n \rightarrow ^3\text{H} + \alpha$. A geogén trícium közvetlenül bekerül a talajvízbe, aminek a koncentrációja az alapkőzet Li-tartalmától és porozitásától függ. A rövid felezési idő és az alacsony képződési sebesség általában kizárja a geogén ^3H jelentős felhalmozódását, bár egyes kőzetekben mérhető mennyiségek lehetnek. A legtöbb víztartó rétegben a geogén ^3H jóval kevesebb, mint 0,1 TU.

A trícium antropogén forrásai

A trícium természetes képződésen kívül antropogén forrásokból is juthat a légkörbe, ezek a nukleáris iparhoz köthetők: nukleáris fegyverek tesztelése, atomerőművek és nukleáris reprocesszáló üzemek. A ^3H környezetbe került mennyisége az IAEA adatai alapján 1945-ben még elhanyagolhatóan alacsony volt (3-5 TU volt a hozzájárulás a környezeti szinthez), azonban a második világháborút követően a hidrogénbombák térhódításával jelentősen emelkedett a szintje, mígnem elérte az 1963-as csúcst („bombacsúcs”), mely csaknem 4000 (más források szerint mintegy 6000) TU-s koncentrációt tett ki az északi félteke kontinentális területein (Calmon-Garnier-Laplace 2010). Az USA és a Szovjetunió 1963-as Atomcsend Egyezménye alapján a két nagyhatalom leállította a nukleáris fegyverek tesztelését a légkörben, a vízfelszín alatt, illetve a világűrben. Ennek hatására a tríciumszint meredek csökkenésnek indult, mígnem az 1980-as évek végére megközelítette a hidegháború előtti szintet. A nukleáris fegyverkísérletek számának jelentős csökkenése miatt az antropogén kibocsátások nagy része mára az atomreaktorokból és reprocesszáló létesítményekből származik.

A másik antropogén forrás az ipari létesítményekhez köthető, amelyek úgynevezett technogén tríciumot bocsátanak ki. Az ipari egységek szintetikus és szerves anyagokkal dolgoznak, amibe belekerülhet a technogén trícium. Ezeket az általában nagymértékben triciált molekulákat vagy részecskéket a gyógyszeripari ágazatok termelik, mint például a Bristol-csatorna és a Cardiff-öböl mellett működő ipari létesítmények (Croudace és társai 2012). Óraipari létesítmények környezetében is megfigyelhetők szennyező források, ahol triciált festékek (Schonhofer és Pock 1995) találhatóak, melyeket a Rhône felső szakaszán üledékes kőzetekben találtak (Jean-Baptiste és társai 2007).

A tríciumtartalom mérési technikái

Folyadékszintillációs technika:

A folyadékszintillációs technika a leggyakrabban használt módszer a tríciumkoncentráció mérésére vízben

vagy más folyadékokban. Ez a módszer a trícium béta-sugárzását használja ki. A mintához folyadékszintillációs szcintillátorokat adnak, amelyek fluoreszkálnak, amikor a tríciumból származó béta-sugárzás hatására gerjesztődnek. A szcintillátorokból származó fényt a detektorok érzékelik. Elektrolitikus dúsítással, vagyis a minta növelésével az érzékenység javítható, így a kimutathatósági határ csökkenthető. A kimutathatósági határ elektrolitikus dúsítás nélkül 2-3 TU, dúsítással elérhető 0,5 TU, de akár 0,1 TU is.

Gázproporcionális számlálási technika:

A gázproporcionális számlálási technika során a mintából kinyerik a hidrogént, és azt reakcióval metánná vagy etánná szintetizálják. Ezután a gáz keverve kerül egy gázproporcionális számlálóba. A trícium béta-sugárzása hatására a gáz fluoreszkál, és a detektorok érzékelik ezt a fluoreszcenciát. Ez a módszer alacsonyabb kimutathatósági határral rendelkezik, mint a folyadékszintillációs technika. A kimutathatósági határ elektrolitikus dúsítás nélkül 3 TU, dúsítással 0,1 TU (Wood és társai 1993).

Nemesgáz-tömegspektrométerrel:

Ebben a módszerben a trícium bomlása során keletkező hélium-3 (^3He) mennyiségét mérjük meg. A vízminta tríciumtartalma héliummá (^3He) bomlik, majd a nemesgáz-tömegspektrométer segítségével határozzák meg a ^3He mennyiségét, ami azonos a trícium mennyiségével. Ez a módszer rendkívül érzékeny, és nagyon alacsony kimutathatósági határral rendelkezik. A kimutathatósági határ ~0,002 TU (Papp és társai 2012).

Ezek a módszerek különböző előnyökkel és korlátozásokkal rendelkeznek, és az alkalmazás céljától, illetve a minta típusától függően választják ki őket. A folyadékszintillációs technika például egyszerű és gyors, de a kimutathatósági határa nem olyan alacsony, mint a többi módszernek. A nemesgáz-tömegspektrométerrel történő mérés sokkal érzékenyebb, de bonyolultabb és drágább is lehet.

A HUN-REN Atommagkutató Intézet Izotópklimatológiai Laboratóriumában (IKER) csapadékminták tríciumkoncentrációjának méréséhez két nemesgáz-tömegspektrométert használunk: Fisons VG-5400 és HelixSFT (Palcsu és társai 2010a, Papp és társai 2012).

A TRÍCIUM FIZIKAI-KÉMIAI FORMÁI

A környezetben a trícium minden hidrogéntartalmú vegyületben jelen van a geoszféra minden részében, beleértve az atmoszférát, a hidroszférát és a litoszférát, a bioszférát és az antroposzférát. A trícium számos fizikai-kémiai formája a szférák között folyamatosan cserélődik.

Trícium a csapadéokban

A trícium domináns formája a HTO (szupernehéz víz vagy triciált víz). Leggyakrabban a HT (tríciumgáz) oxidációjának hatására keletkezik, azaz a tríciumatomok reakcióba lépnek a környező prócium- és oxigénatomokkal, létrehozva a HTO-molekulákat. Potenciálisan az egész hidroszférában megtalálható, mint pl. csapadékvízben, a felszíni és felszín alatti vízben, a tengervízben, az üledékek között és a párolgó vízben (Connan és társai 2015). A HTO főként csapadék formájában, nedves ülepedéssel jut le a földfelszínre, ahol bekerül a felszíni víztestekbe, és az infiltráció útján eléri a felszín alatti vízkészleteket is. Ezért

a HTO-koncentráció mérést gyakran alkalmazzák a felszíni és a felszín alatti vizek szivárgási idejének meghatározásához, valamint az ipari környezetből kibocsátott triciált víz tengerben történő eloszlásának vizsgálatához (Dow és DeWalle 2000, Fiévet és társai 2013). A HTO a növényi szervezetekbe is beépülhet azok vízfelvétele nyomán.

Trícium a levegőnedvességben

A sztratoszféra az a tározó, ahol a természetes ^3H nagy része felhalmozódik (becsült érték 5×10^5 TU – 9×10^5 TU), a kis mennyiségű sztratoszférikus nedvesség (3,5-6 ppm) mellett. Ez a tározó a fő természetes forrása a troposzférikus levegőnedvesség ^3H -koncentrációjának. A sztratoszféra nedvességtartalma nagyságrendekkel több tríciumot tartalmaz, mint a talajszinthez közeli nedvesség, így kis mennyiségű légcserre is jelentősen megnövelheti a keletkező csapadék tríciumkoncentrációját. A vízgőz sztratoszférában becsült tartózkodási ideje 5,4 év, míg a troposzférában 8-10 napra tehető (Ehhalt és Rohrer 2002). A vízgőz talajközeli ^3H -koncentrációja 5–20 TU között változik (Okai és Takashima 1991).

Trícium a légköri hidrogénben

A vízen kívül két másik légköri gáz is tartalmazhat tríciumot: a hidrogén (H_2) és a metán (CH_4). A légköri hidrogénben található trícium egy része kozmogén eredetű. A HT molekulák képződéséhez vezető fő reakció a TO_2 gyök ismétlődő fotodisszociációja, valamint cserereakciója: $\text{T} + \text{H}_2 \rightarrow \text{HT}$ (Harteck 1954). A kozmikus sugarak által termelt tríciumnak csak 0,1%-a létezik HT formájában, és 99,9%-a HTO-ban. A HT-molekulák nagy része 10 és 40 km közötti magasságban képződik. A HT antropogén eredetű forrásai a nukleáris fűtőelemek reprocessálásából, valamint a föld alatti nukleáris kísérletek termékeként juthat a légkörbe. További forrása a fúziós energia kutatásából származik, valamint fényforrások gyártása során termelődik. A HT egyéb potenciális forrásai közé tartozik a H_2 bármely ismert forrása, mint például a fosszilis tüzelőanyagok és a biomassa égetése, valamint a metánból (CH_4) és más szénhidrogénekből történő fotokémiai termelődés.

A légköri HT fő nyelői a talaj általi felvétel és a troposzférában az OH-val való reakció (Novelli 1999), valamint a mikroorganizmusok által lebonyolított HT-oxidáció. Ez a folyamat növeli a talajban lévő tríciumkoncentrációt (Ota és társai 2008), ahonnan később a párolgás révén a légkörbe juthat. A trícium egy része a szerves molekulákba épül be (növényzetbe, a talaj szerves anyagába), ez a növényi anyagcsere-folyamatok során valósul meg (Paul és társai 2016). A felsorolt nyelőknek jelentősnek kell lenniük a HT globális mérlegében, bár ezeket nem becsülték meg. A HT jellemző koncentrációértéke a felszín közelében $5,5 \times 10^5$ – $1,0 \times 10^6$ TU között alakul (Okai és Takashima 1991).

Trícium a légköri metánból

A CH_3T molekulák a légkörben a HT és a CH_4 közötti nukleáris és cserereakciók eredményeként jönnek létre (Bishop és társai 1962, Wolfgang 1961). A légköri trícium mintegy egyharmada triciált metánban raktározódhat. Feltételezik, hogy a metánban található trícium fő forrásai a kutatólaboratóriumok és atomipari intézmények, amelyek technológiája a tríciummal kapcsolatos. A biokémiai reakciók CH_3T molekulái ugyanolyan T/H aránnyal rendelkeznek, mint a környezeti víz. Mivel a légköri HT részt vesz

a biogén metán képződésében, így a folyamat eredményeként a metán tríciumtartalma megnő. A CH_3T jellemző koncentrációértéke a talajszint közelében $3,2 \times 10^4$ - $4,5 \times 10^4$ TU közötti (Okai és Takashima 1991).

Trícium a légköri aeroszol részecskéken

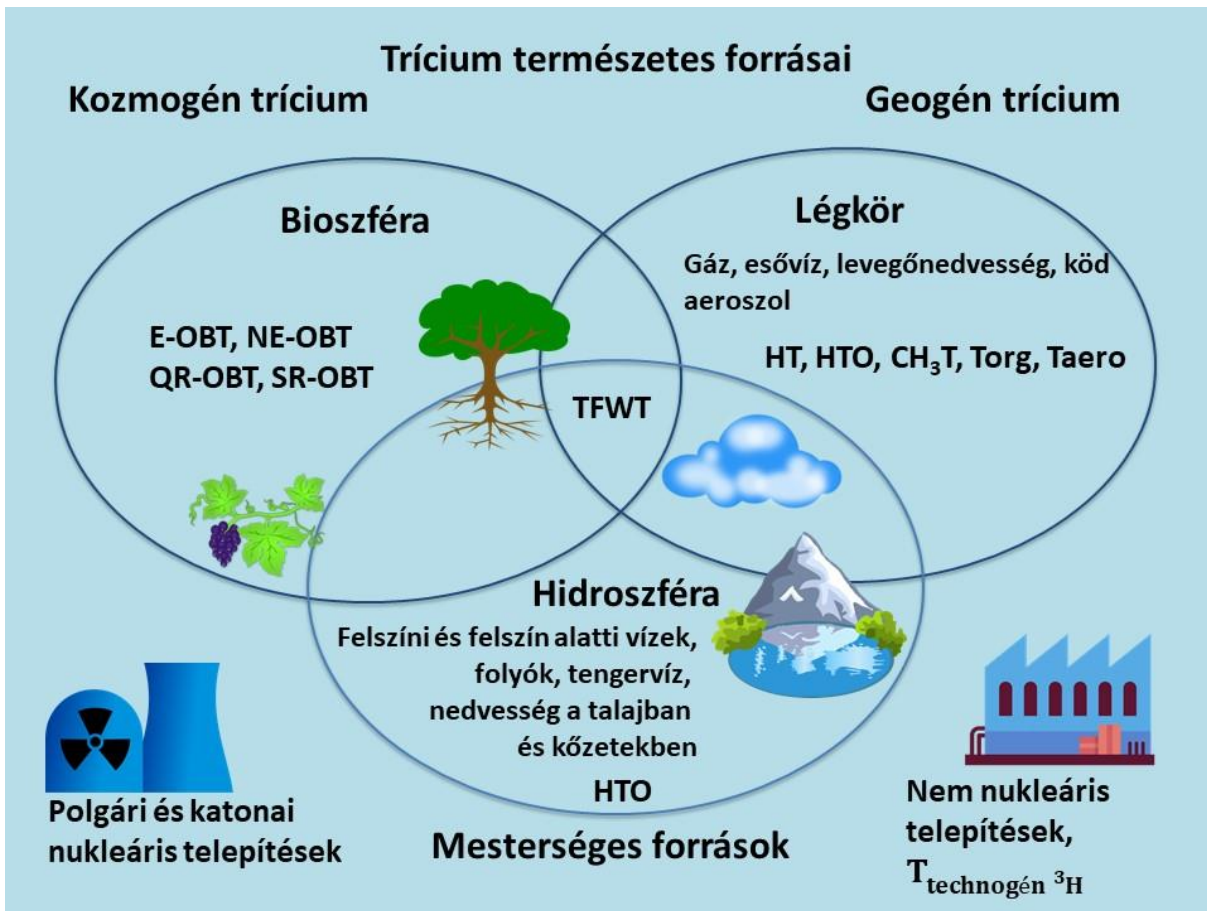
A trícium aeroszolon való megjelenése viszonylag gyengén dokumentált. Ennek mérése akkor lehetséges, ha elkülöníthetők a különböző méretű és eredetű aeroszol részecskék. Ezek a részecskék lehetnek talajrészecskék, baktériumokból álló vagy földi biomassa eredetű részecskék, vagy tríciumot kezelő üzemek által kibocsátott aeroszolak. A triciált aeroszol részecskék vizsgálatával kevés tanulmány foglalkozik, hiszen a mintavételezése és mérése bonyolultabb, mint a többi formájánál (Eyrolle és társai 2018).

Trícium a szerves anyagokban (OBT- organically bound tritium)

Szerves molekulákban a tríciumot erős kovalens kötések kötik a szénatomokhoz. Ezeket a kötések nehéz felbontani. A trícium egy része labilis hidrogénkötések formájában is jelen lehet, amelyek a szerves molekulákban lévő oxigén-, nitrogén- vagy kénatomokhoz kapcsolódnak.

Ezek a kötések könnyebben felbonthatók. A trícium tehát cserélhető, nem cserélhető formában is jelen lehet a szerves anyagokban. A cserélhető forma (E-OBT) gyorsan egyensúlyba kerül a környező vízmolekulákban lévő tríciummal, míg a nem cserélhető forma (NE-OBT) hosszabb ideig megmarad a szerves anyagokban. A trícium koncentrációja és az E-OBT és NE-OBT aránya változhat a környezeti körülményektől és a szerves anyagok jellegétől függően (Baglan és társai 2011, Jean-Baptiste és Fourré 2013).

A növényekben, állatokban és a legtöbb környezeti anyagban a labilis hidrogén (a szerves molekulákban található hidrogén mintegy harmada, amely oxigén-, nitrogén- vagy kénatomokkal van kötve) kvázi-azonnali egyensúlyba kerül a környező vízmolekulák hidrogénjével. Ezt a tulajdonságát széles körben használták fel a szervesen kötött trícium, cserélhető (E-OBT) és nem cserélhető (NE-OBT) formáinak megkülönböztetésére. Általában elfogadott, hogy az E-OBT nagyon gyorsan egyensúlyba kerül a szövethez nem kötött tríciumos vízzel (TFWT), amely maga is egyensúlyban van a környezet vízmolekuláival (víz vagy vízgőz), és kivonható víz gyűjtésével és fagyasztással.



1. ábra. A trícium fizikai-kémiai formái a különböző szférákban (Eyrolle és társai 2018 nyomán)

(HT: triciált hidrogén, HTO: triciált víz, CH_3T : triciált metán, Torg: gáznemű szerves trícium, Taero: Triciált aeroszol, TFWT: szövethez nem kötött tríciumos víz, $T_{\text{Technogén } ^3\text{H}}$: Technogén trícium, E-OBT: cserélhető szerves kötésű trícium, NE-OBT: nem cserélhető szerves kötésű trícium, QR-OBT: gyorsan újrahasznosított szerves kötésű trícium, SR-OBT: lassan újrahasznosított szerves kötésű trícium)

Figure 1. The physicochemical forms of tritium in different spheres (adapted from Eyrolle et al. 2018)

(HT: tritiated hydrogen, HTO: tritiated water, CH_3T : tritiated methane, Torg: gaseous organic tritium, Taero: tritiated aerosol, TFWT: tissue free water tritium, $T_{\text{Technogén } ^3\text{H}}$: Technogenic tritium, E-OBT: exchangeable organically bound tritium, NE-OBT: non-exchangeable organically bound tritium, QR-OBT: quickly recyclable organically bound tritium, SR-OBT: slowly recyclable organically bound tritium)

A CSAPADÉK TRÍCIUMKONCENTRÁCIÓJÁNAK TÉRBELI ÉS IDŐBELI VÁLTOZÁSA

Földrajzi szélességi hatás

Az Egyenlítőtől a magasabb földrajzi szélességek felé haladva nő a trícium koncentrációja. Ezt a Föld mágneses terének alakja határozza meg. A Földnek a napszél által befolyásolt geomágneses tere lehetővé teszi, hogy töltött kozmogén részecskék különböző küszöbenergiával juthassanak a légkörbe az Egyenlítőtől a sarkokig. A geomágneses rigiditás az egységnyi töltés impulzusa. A geomágneses rigiditási levágás a Föld mágneses tere által biztosított geomágneses árnyékolás mértékét írja le, amely védelmet nyújt a magnetoszférán kívülről érkező, töltött részecskéket tartalmazó kozmikus sugárzással szemben. A geomágneses rigiditási levágás értéke az egyenlítői régióban 17 GV (gigavolt), míg a poláris térségben 1 GV (*Gerontidou és társai 2021*). Az azonos mágneses rigiditású részecskék mind ugyanazt az utat követik (ugyanabban a mágneses térben a nagyobb rigiditású részecskék egyenesebb, azaz merevebb utakat követnek). A geomágneses egyenlítőn, ahol a térerővonalak közel párhuzamosak a Föld felszínével, a nem elegendő rigiditású részecskék visszatérítődnek a bolygóközi térbe, mielőtt beléphetnének a légkörbe. A geomágneses egyenlítőtől távolabb, közelebb a geomágneses pólusokhoz a térerővonalak merőlegesebbek a Föld felszínére, ezért párhuzamosabbak a beérkező ionok pályáival. Így sok ion, amely nem tudott bejutni az egyenlítőnél, eljuthat a légkörbe. A mágneses pólusoknál, mivel az erővonalak merőlegesek a Föld felszínére, az ionpályák nem hajlanak el, így bármilyen rigiditású ion elérheti a Föld légkört. Ennek eredményeként a kozmikus töltött részecskék a sarkok környékén nagyobb arányban termelnek kozmogén izotópokat, így a tríciumkoncentráció a pólusokon lesz a legmagasabb, míg az Egyenlítőn a legalacsonyabb.

A 2. ábrán jól látható a trícium koncentrációjának szélességi függése: a 30° szélességi körtől északra a ^3H -koncentráció akár ötszörös is lehet a trópusi régióhoz képest. Ennek fő oka, hogy a Föld geomágneses tere befolyásolja a kozmikus részecskék légkörbe való bejutását. A geomágneses védőpajzs erősebb az Egyenlítő közelében, így ott kevesebb kozmikus sugárzás éri el a légkört, ami alacsonyabb tríciumtermelést eredményez. Ezzel szemben a pólusok közelében gyengébb a geomágneses védelem, így több kozmikus sugárzás éri el a felső légkört, és több trícium keletkezik.

A déli féltekén az éves szezonális ciklus fél évvel eltolódik az északitól, továbbá a csapadékban mérhető trícium-koncentrációk általában alacsonyabbak. Ennek oka egyrészt a déli féltekén kiterjedtebb óceáni területek jelenléte, amelyek nagyobb víztömegükkel hűtjék a légköri vízgőzt, és így alacsonyabb koncentrációjú tríciumot eredményeznek. Másrészt az északi féltekén a 20. században több nukleáris fegyverkísérletet hajtottak végre, és a nukleáris létesítmények is nagyobb mértékben bocsátanak ki tríciumot, ami növeli a technogén eredetű koncentrációt. Az antropogén eredetű izotópok nagy részét az északi szélesség 30°–60° között bocsátják ki. Ez az aránytalan eloszlás is hozzájárul a regionális különbségekhez a trícium légköri koncentrációjában, különösen az északi féltekén.

A két félteke közötti légeserét jelentősen befolyásolja a trópusi összeáramlási zóna (ITCZ – Intertropical Convergence Zone), amely akadályként működik a troposzféra alsó rétegeiben, korlátozva a légtömegek közvetlen horizontális áramlását. Az ITCZ-ben uralkodó intenzív feláramlások miatt a légkör két féltekéjének alsó troposzférikus keveredése korlátozott, ami hatással van a légköri komponensek, például a trícium transzportjára is.

A sztratoszférikus légtömegek keveredése szintén lassú folyamat, amelyet a Brewer-Dobson cirkuláció szabályoz. Ennek eredményeként átlagosan körülbelül két év szükséges ahhoz, hogy a sztratoszféra és a troposzféra között a légköri anyagok, így a trícium koncentrációja is kiegyenlítődjön. A keveredési időt befolyásolják a lokális meteorológiai és dinamikai viszonyok, valamint a trícium sztratoszférában töltött hosszabb tartózkodási ideje.

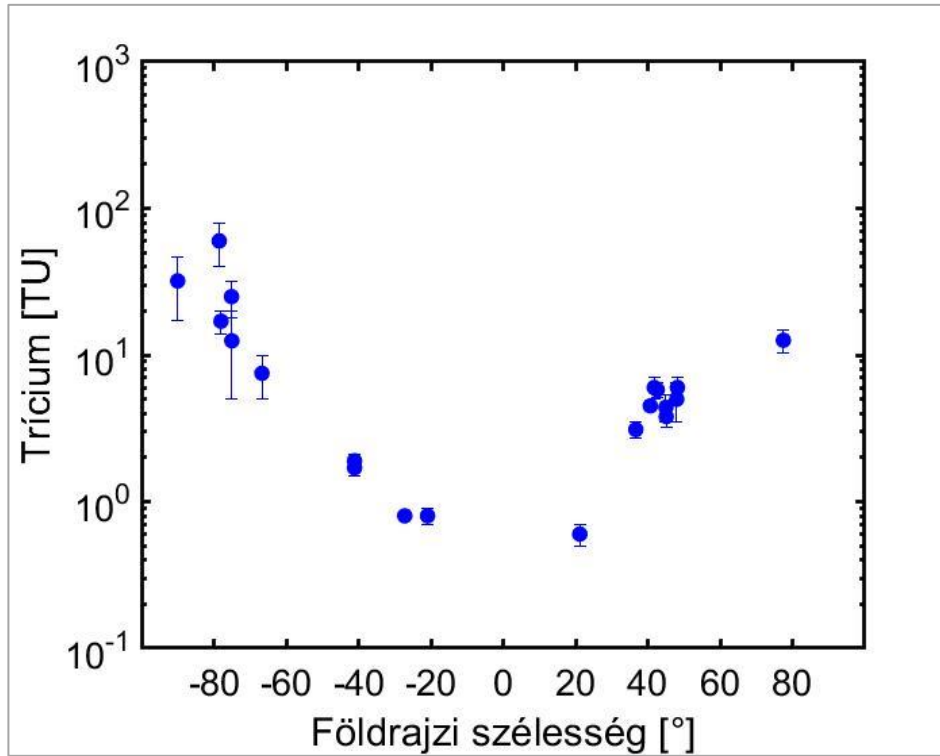
A fentiek következményeként az északi féltekén, különösen a magasabb szélességeken, a trícium koncentrációja szignifikánsan magasabb lehet, mint a déli féltekén. Ez a különbség elsősorban az 1950-es és 1960-as évek nukleáris fegyverkísérleteinek eredménye, amelyek során nagy mennyiségű tríciumot bocsátottak a sztratoszférába, főként az északi féltekén. A hemiszférák közötti lassú transzport miatt a déli féltekére történő átszállítás korlátozott, ami hozzájárul a koncentrációs különbségek fennmaradásához.

Kontinentális hatás

A trícium térbeli eloszlásában jól megfigyelhető a kontinentális hatás, amely szerint a trícium koncentrációja a partvidékektől a kontinens belső területei felé haladva fokozatosan emelkedik. Ennek magyarázata abban rejlik, hogy az óceánok felett általában alacsonyabb a légköri vízgőz tríciumkoncentrációja, mivel az óceánok vizei hígabbak a trícium szempontjából. Az óceánok felett kialakuló ciklonok, amelyek főként tríciumban szegény vizet tartalmaznak, elsősorban a partvidékeken befolyásolják az időjárást. Ahogy ezek a ciklonok elhagyják a partokat, és a kontinens belseje felé haladnak, a csapadékban mért tríciumkoncentráció növekszik. Ennek egyik fő oka, hogy a troposzférában található trícium beépül a levegő vízmolekuláiba, emellett a magas tríciumtartalmú sztratoszférikus levegő is lejut a troposzférába, különösen nagyobb viharok esetén.

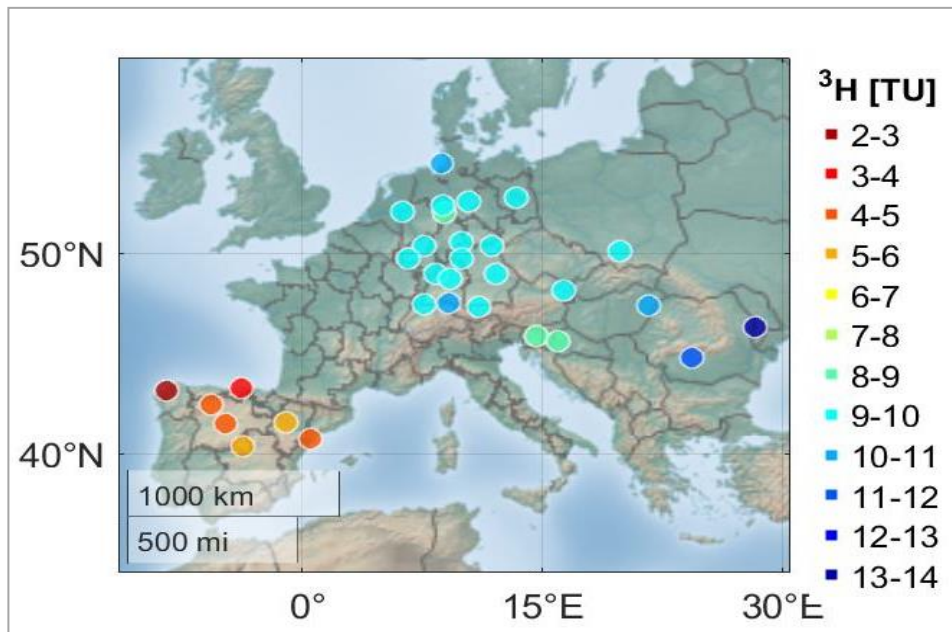
A kontinenseken belül a légköri vízgőz fokozottan cserélődik a felszíni víztestekkel, például folyókkal, tavakkal, amelyek gyakran magasabb tríciumkoncentrációval rendelkeznek, mint az óceánok. Ez a cserefolyamat hozzájárul a kontinens belsejében mért magasabb tríciumértékekhez. A szélességi helyzet és a tengerszint feletti magasság növekedése szintén kedvez a tríciumkoncentráció növekedésének, mivel ezek a tényezők befolyásolják a légköri cirkulációt és a trícium beépülését a csapadékba.

Az olyan partmenti területeken, mint a La Manche csatorna környéke, ahol jelentős technogén tríciumkibocsátás történik (például nukleáris létesítményekből), a csapadékban mért koncentrációk magasabbak lehetnek. Ezek a lokális kibocsátások jelentős hatással lehetnek a regionális tríciumeloszlásra (*Fiévet és társai 2013, Masson és társai 2005*), míg a természetes forrásokból származó trícium eloszlása inkább a földrajzi szélesség, tengerszint feletti magasság és a szárazföldek távolságának függvényében változik.



2. ábra. A csapadéktrícium-koncentráció földrajzi szélességtől való függése a bombacsúcs előtti adatok alapján (Cauquoin és társai 2015)

Figure 2. Latitude dependency of precipitation tritium concentration based on pre-bomb peak data (Cauquoin et al. 2015)



3. ábra. A csapadéktrícium-koncentráció átlagos térbeli eloszlása Európában (Adatok forrása: IAEA/WMO-GNIP adatbázis 2024)
Figure 3. Average spatial distribution of precipitation tritium concentration in Europe (Data Source: IAEA/WMO-GNIP Database 2024)

Szezonális változékonyság

A tríciumkoncentráció évi menete a troposzféra és a sztratoszféra közötti kicserélődési folyamatok erősségét követi, és különösen az északi féltekén figyelhető meg. Két fő mechanizmus játszik szerepet a trícium troposzférába történő keveredésében. Az egyik ilyen mechanizmus a kifejlődő zivatarok során következik be, amikor a zivatarfejek behatolnak a tropopauzába. Ilyenkor a légköri keveredés során a sztratoszférából származó trícium és más izotópok lejutnak a troposzféra, és végül csapadékként a

felszínre kerülnek. Ez a folyamat különösen erős zivataroknál figyelhető meg, amikor a zivatarcellák elérik a magasabb légköri rétegeket.

A másik fontos szezonális mechanizmus az úgynevezett "spring leak" jelenség, amely főként tavasz folyamán jelentkezik az északi féltekén. Ekkor a 30°-60° északi szélességi körök között a tropopauza szakadási felületei alakulnak ki, amelyek elősegítik a magasabb tríciumtartalmú sztratoszférikus levegő keveredését a troposzférikus levegővel.

Bár mind a zivatarok, mind a tropopauza-szakadások egész évben kialakulhatnak, legnagyobb gyakoriságuk tavasszal és kora nyáron jellemző. Ennek következtében a tavaszi és kora nyári időszakban a csapadéokban mért tríciumkoncentrációk jelentősen megnövekednek, míg télen alacsonyabb értékek figyelhetők meg. Ez a jelenség különösen intenzív az északi féltekén, mivel itt nagyobb a szárazföldek kiterjedése, ami erőteljesebb felmelegedéshez és légköri instabilitáshoz vezet. A déli féltekén a hasonló folyamatok kevésbé jelentősek, mivel a szárazföldek kisebb kiterjedésűek, és így a tropopauza-szakadások és zivatarok is ritkábbak.

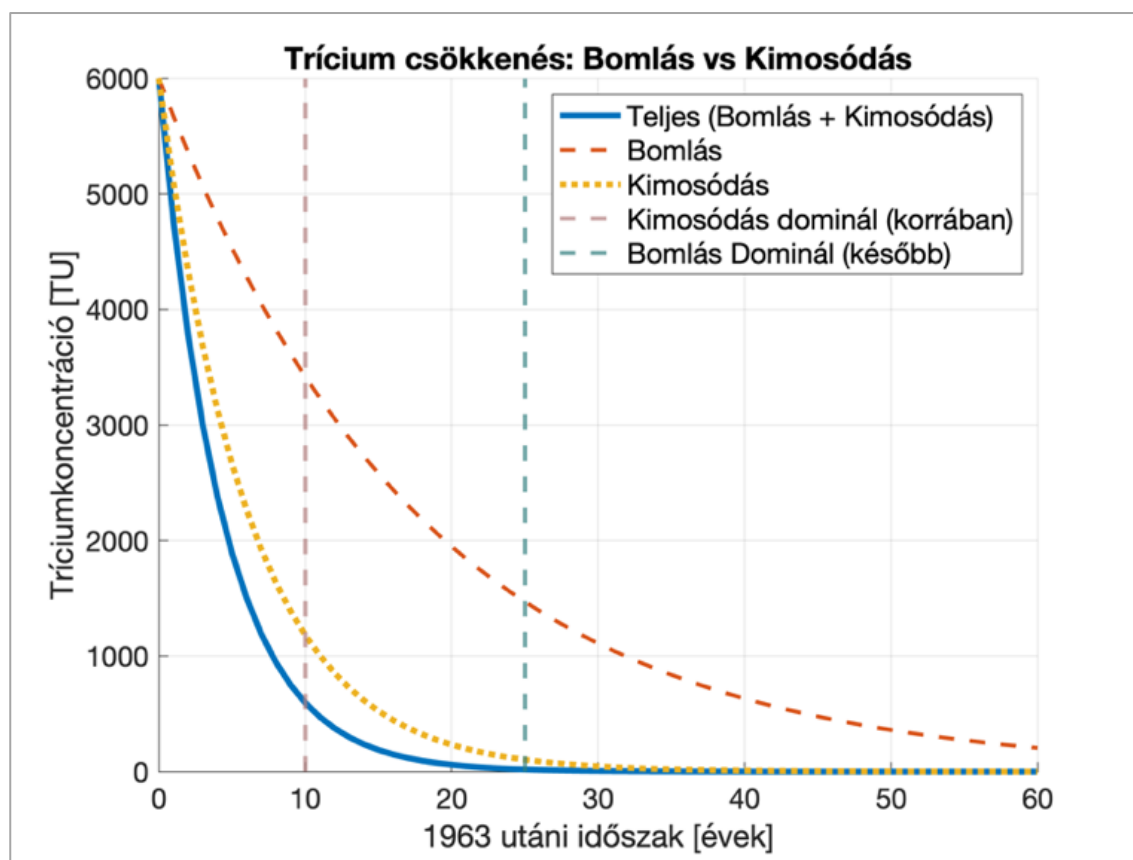
Hosszú távú változások

A tríciumkoncentráció hosszú távú változásait mind a természetes, mind az antropogén források meghatározzák. A 20. század közepén, különösen az 1950-es és 1960-as években a nukleáris fegyverkísérletek jelentős mértékben növelték a légköri trícium szintjét. A csapadéokban mért tríciumkoncentráció ekkor meghaladta a 4000 TU-t, majd a fegyverkísérletek korlátozása után fokozatos csökkenésnek indult (például Ottawa és Bécs mérései alapján). A tríciumkoncentráció gyors csökkenésének két fő oka volt: i) a radioaktív bomlás, mivel a ^3H felezési ideje viszonylag rövid, mindössze 12,32 év; ii) a kimosódás, ami a légköri víz gyors cseréje révén valósul meg (4. ábra).

A trícium bomba csúcs utáni időszakban (az 1960-as évek végétől) mind a trícium radioaktív bomlása, mind a légkörből való kimosódás gyorsasága jelentős szerepet

játszott a trícium koncentráció csökkenésében. Azonban a két folyamat relatív fontossága időben változott, és régióként is eltérhetett. A trícium légköri koncentrációjának gyors csökkenését kezdetben a kimosódás dominálta. Ez főként a csapadék révén történik, amikor a trícium az atmoszférából a felszíni vizekbe és talajba kerül. A légköri víz körforgása a troposzférában gyors: a vízgőz átlagosan 8–10 nap alatt kerül az óceánokba, míg a sztratoszférában a víz akár több évig is tartózkodhat. A hidrológiai ciklus részeként a tríciumot tartalmazó vízgőz lecsapódik és eső formájában le hull, ami különösen intenzív lehetett az első években, amikor a légköri koncentráció kiemelkedően magas volt.

Korábban említettük, hogy a trícium felezési ideje 12,32 év, ami viszonylag rövidnek számít, ennek ellenére is a bomlás kezdetben lassabb hatást gyakorolt a koncentrációra, mint a kimosódás. Ahogy a kimosódás révén csökkent a légkörben lévő trícium mennyisége, a bomlás szerepe relatíve egyre hangsúlyosabbá vált. A bomba csúcs utáni első néhány évben a kimosódás volt a domináns folyamat, mivel a trícium gyorsan távozott a légkörből a csapadék révén. Hosszabb távon, ahogy a légköri és környezeti trícium koncentráció egyensúlyba került, a radioaktív bomlás lett a meghatározó folyamat a trícium további csökkenésében. Ezeket a folyamatokat pontosan nyomon lehet követni a légköri és csapadék trícium mérésekből, amelyek jól dokumentáltak az 1960-as évektől kezdődően (5. ábra).



4. ábra. A trícium csökkenése a bomba csúcs után, elméleti számítás
Figure 4. The decrease of tritium after the bomb peak: theoretical calculation

A 4. ábrán látható, hogy a légköri tríciumkoncentrációjának csökkenése kezdetben a kimosódás (washout, kimosódási ráta 15%) gyorsasága miatt dominál, amit a szagatott vonal mutat. Az első évtizedben a kimosódás felelős a koncentráció nagy részének csökkenéséért. Ahogy az atmoszférából a trícium mennyisége csökken, a radioaktív bomlás (szagatott vonal) szerepe fokozatosan növekszik, és hosszabb időskálán ez lesz a domináns folyamat. Az összesített csökkenést a folytonos vonal mutatja, ami jól szemlélteti, hogyan járul hozzá mindkét folyamat az időbeli változáshoz. Az ábra két szürke vonala szemlélteti azt az időtartamot, amikor egyik vagy másik folyamat dominánsabb.

Bár a globális tríciumszint visszatért a természetes szinthez, egyes régiókban – például Kanada nehézvízes reaktorainál – a helyi kibocsátások továbbra is megemelik a koncentrációt. Ezek a szennyeződések lokális jellegűek, és nem befolyásolják globálisan a légköri trícium szintjét olyan mértékben, mint a korábbi nukleáris fegyverkísérletek.

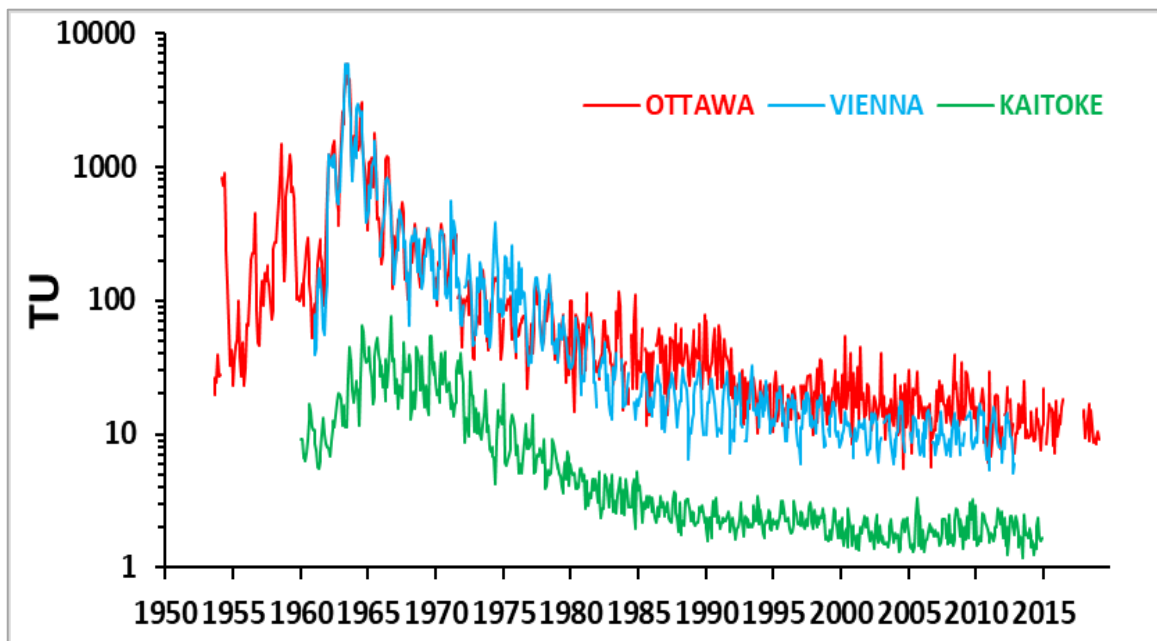
A 2000-es évek elejére azok a csapadégyűjtő helyek, ahol az antropogén kibocsátás minimális, közel egyensúlyi állapotot értek el. Ezek az idősorok jól korrelálnak a naptevékenységgel, különösen a neutronfluxussal (mértékegysége gyakran cpm – counts per minute), amely a napciklusok során változik. Ezen idősorokban kimutatható a 11 éves ciklikusság, amit a neutronmonitor-állomások (Oulu, Hermanus) adatainak a tríciummérésekkel való összevetése bizonyít (Palcsu és társai 2018).

A kutatások ezen eredményei lehetővé tették a trícium-idősorok típusainak azonosítását, és így különbséget lehet tenni a technogén tríciumban gazdag és szegény területek

között (6. ábra). Az előbbi idősorok az antropogén forrásokból származó hatásokat tükrözik, míg az utóbbiak a természetes háttérszintet mutatják. Ezért a természetes eredetű trícium változásainak vizsgálatakor fontos figyelembe venni az adott mérőállomás elhelyezkedését és az esetleges lokális szennyező forrásokat (nukleáris létesítményeket, tárolókat, kísérleti és CANDU reaktorokat). A CANDU egy betűszó, amely a Canadian Deuterium Uranium kifejezést rövidíti. Ez egy Kanada által kifejlesztett nyomott nehézvízes reaktortípus, amely: i) nehézvizet (D₂O) használ moderátorként és hűtőközegként; ii) természetes uránt alkalmaz fűtőanyagként, ezért nincs szüksége dúsított uránra.

Azokon a területeken, ahol a technogén trícium jelenléte elhanyagolható, a tríciumkoncentráció múltbeli és jövőbeli változásai a neutronfluxus alapján viszonylag pontosan modellezhetők. Az ilyen állomások idősorai jól követik a szezonális és hosszú távú változásokat. Azonban a technogén tríciummal terhelt idősoroknál a becslések pontatlanabbak, mivel ezek a források megszakítják a természetes változásokat, és szabálytalan fluktuációkat eredményeznek (László és társai 2020).

Az idősorok alapján különbséget lehet tenni a technogén tríciumban gazdag és szegény területek között. A technogén szennyezéssel nem terhelt területeken a természetes eredetű változások jobban nyomon követhetők, míg a technogén tríciumban gazdag helyeken az antropogén kibocsátások jelentősen módosítják az idősorok természetes mintázatát. Ezért fontos, hogy a tríciummal kapcsolatos vizsgálatok során a megfelelő helyszíneket válasszuk ki, mivel egyes állomások jelentősen terhelték lehetnek nukleáris eredetű szennyezéssel, például nukleáris reaktorok vagy tárolóhelyek közelében.



5. ábra. A csapadékrícium-koncentráció időbeli változása az északi és déli féltekén (Adatok forrása: IAEA/WMO-GNIP adatbázis, 2024)

Figure 5. Temporal variation of precipitation tritium concentration in the Northern and Southern Hemispheres (Data Source: IAEA/WMO-GNIP Database 2024)

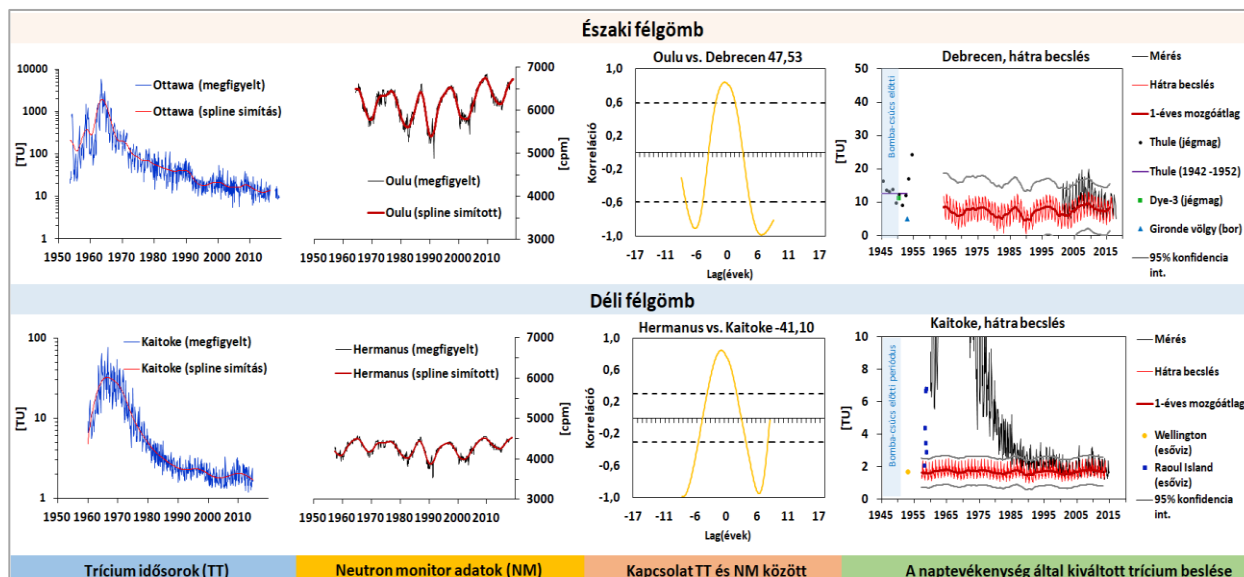
A csapadékrícium természetes szintjének modellezése

Az 1950-es évektől kezdődően a nukleáris fegyverki-sérletek drasztikusan megnövelték a trícium koncentrációját a légkörben, így a természetes tríciumváltozások vizsgálata ebben az időszakban nehezzé vált. Azonban a napfoltszám és a kozmikus sugárzás közötti kapcsolat lehetőséget ad arra, hogy a naptevékenység felhasználásával visszamenőleg becsljük a természetes tríciumtermelést (László és társai 2020). A SARIMAX modellezési módszer alkalmas a csapadékban lévő tríciumkoncentráció természetes változékonyságának becslésére. A modell külső regresszorként a neutronfluxust használja, hogy a naptevékenység alapján becsülje a trícium keletkezését a légkörben. A modell azon a megfigyelésen alapul, hogy a trícium koncentrációja szoros kapcsolatban áll a Nap 11 éves Schwabe-ciklusával: a napminimumok idején, amikor a kozmikus sugárzás fluxusa megnő, a tríciumtermelés is megemelkedik, míg napmaximumok idején a tríciumtermelés csökken.

A modell előrejelzései jól illeszkednek a történelmi tríciumadatokhoz, beleértve a bortríciumméréseket is, amelyek az 1940-es és 1960-as évekből származnak. Ezek a

bortríciummérések fontos adatként szolgálnak a csapadék tríciumszintjének rekonstrukciójához. A modell alapján a természetes tríciumszintek az 1950-es évek előtt viszonylag stabilak lehettek, és a napciklusok által vezérelt ingadozások okozták a legnagyobb változásokat.

A statisztikai modell segítségével egészen 1920-ig visszamenőleg becsültük a természetes tríciumkoncentrációt, ami fontos referenciaértéket jelent az 1950-es évek előtti természetes tríciumszintek meghatározásához. Ez a hátrabecslési képesség nagyban segíti a modern és történelmi tríciumadatok értelmezését, különösen a nukleáris tesztek előtti korszakban. A modell egyértelműen segít elkülöníteni a természetes forrásokból származó tríciumot az antropogén eredetű tríciumtól. Ez különösen hasznos lehet a nukleáris tevékenység által érintett régiókban, ahol a modern tríciumforrások megzavarhatják a természetes trendeket. A módszer számos tudományterületen alkalmazható, beleértve az éghajlati rekonstrukciókat, a kozmogén izotópok vizsgálatát, valamint a hidrológiai és környezeti kutatásokat. A trícium természetes változásainak ismerete lehetővé teszi a múltbéli környezeti viszonyok pontosabb rekonstrukcióját, illetve az éghajlati változások elemzését.



6. ábra. A csapadékrícium és neutronfluxus időbeli változása és a közöttük lévő kapcsolat az északi és a déli féltekén, valamint a naptevékenység által kiváltott trícium becslése (László és társai 2020)

Figure 6. Temporal variation and relationship between precipitation tritium and neutron flux in the Northern and Southern Hemispheres, with estimated tritium induced by solar activity (László et al. 2020)

ÖSSZEGRZÉS

A trícium rendkívül sokoldalúan van jelen a környezetben, különböző fizikai-kémiai formákban, amelyek az atmoszféra, a hidroszféra, a bioszféra és a litoszféra különböző részeiben fordulnak elő. A legelterjedtebb formája a triciált víz (HTO), amely a vízciklus különböző elemeiben található meg, például a csapadéokban, a talajvízben és az óceánokban. Mivel a HTO a környezetben széles körben előfordul, ez teszi a tríciumot egyedülálló nyomjelzővé a vízciklus vizsgálataiban. A trícium segítségével nyomon követhetők a felszíni és felszín alatti vízkészletek mozgásai, valamint a csapadékból származó víz infiltrációs folyamatai.

A trícium jelentősége különösen nőtt az utóbbi évtizedekben, mivel egyre szélesebb körben alkalmazzák a légköri folyamatok, a felszín és a légkör közötti kölcsönhatások kutatásában. A sztratoszféra és a troposzféra közötti kapcsolat tanulmányozása fontos információkat nyújt a légkör keveredési folyamatairól és a globális klímaváltozás hatásairól. Emellett a trícium használata lehetőséget ad a különböző csapadéktípusok, például a konvektív és réteges felhőzetből származó csapadék elkülönítésére. Ez kulcsfontosságú eszköz lehet a regionális éghajlati és hidrológiai modellek pontosításában és a vízkészletek fenntartható kezelésében.

A kutatás egyik fontos eredménye a SARIMAX modellezési módszer alkalmazása, amely a naptevékenység és a neutronfluxus alapján képes becsléni a csapadékban található trícium szintjét. A modell segítségével sikerült számszerűsíteni a 11 éves napciklusok hatását a trícium keletkezésére. Az eredmények rámutatnak, hogy a trícium természetes szintje jól korrelál a naptevékenységgel, ami lehetőséget nyújt a múltbéli környezeti változások rekonstrukciójára.

A tanulmány hozzájárul a globális vízforgalom és a környezeti trícium terjedésének jobb megértéséhez, és fontos következtetéseket von le a trícium alkalmazásáról a környezetkutatásban. A kutatás különösen hasznos lehet a hidrológiai és meteorológiai modellezésben, a vízkészletek fenntartható kezelésében, valamint a klímaváltozás hatásainak vizsgálatában.

KÖSZÖNETNYILVÁNÍTÁS

A publikáció az MTA Bolyai János Kutatási Ösztöndíj, az Innovációs és Technológiai Minisztérium ÚNKP-23-5 kódszámú Új Nemzeti Kiválóság Programja, valamint a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Alap (2020-2.1.1-ED-2021-00172) szakmai támogatásával készült.

IRODALOMJEGYZÉK

Alvarez, L.W., Cornog, R. (1939). Helium and hydrogen of mass 3 [3]. *Physical Review*, 56(6), p. 613. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.56.613>

Baglan, N., Alanic, G., Le Meignen, R., Pointurier, F. (2011). A follow-up of the decrease of non-exchangeable organically bound tritium levels in the surroundings of a nuclear research center. *Journal of Environmental Radioactivity*, 102(7), pp. 695-702. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2011.03.014>

Begemann, F., Libby, W.F. (1957). Continental water balance, ground water inventory and storage times, surface ocean mixing rates and worldwide water circulation patterns from cosmic-ray and bomb tritium. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 12(4), pp. 277-296. [https://doi.org/10.1016/0016-7037\(57\)90040-6](https://doi.org/10.1016/0016-7037(57)90040-6)

Bishop, K.F., Delafield, H.J., Eggleton, A.E.J., Peabody, C.O., Taylor, B.T. (1962). The tritium content of atmospheric methane. In *Tritium in the Physical and Biological Sciences* (pp. 1-9). Vienna: International Atomic Energy Agency (IAEA).

Böhlke, J.K., Révész, K., Busenberg, E., Deák, J., Deseo, É., Stute, M. (1997). Groundwater Record of Halocarbon Transport by the Danube River. *Environmental Science and Technology*, 33, pp. 3293-3299. <https://doi.org/10.1021/es970336h>

Cauquoin, A., Jean-Baptiste, P., Risi, C., Fourré, É., Stenni, B., Landais, A. (2015). The global distribution of natural tritium in precipitation simulated with an Atmospheric General Circulation Model and comparison with observations. *Earth and Planetary Science Letters*, 427, pp. 160-170. <https://doi.org/10.1016/j.epsl.2015.06.043>

Connan, O., Maro, D., Hébert, D., Solier, L., Caldeira Ideas, P., Laguionie, P., St-Amant, N. (2015). In situ measurements of tritium evapotranspiration (³H-ET) flux over grass and soil using the gradient and eddy covariance experimental methods and the FAO-56 model. *Journal of Environmental Radioactivity*, 148, pp. 1-9. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.06.004>

Craig, H., Lal, D. (1960). The production rate of natural tritium. *Institution of Oceanography, University of California, La Jolla*, 8(1), pp. 86-105. <https://doi.org/10.3402/tellusa.v13i1.9430>

Croudace, I.W., Warwick, P.E., Morris, J.E. (2012). Evidence for the preservation of technogenic tritiated organic compounds in an estuarine sedimentary environment. *Environmental Science and Technology*, 46(11), pp. 5704-5712. <https://doi.org/10.1021/es204247f>

Deák, J. (1975). Use of environmental isotopes to investigate the connection between surface and subsurface waters in the Nagykunság region, Hungary. *Isotope Techniques in Groundwater Hydrology*, pp. 157-167. IAEA, Vienna

Deák J., Hertelendi E., Süveges M., Barkóczi Zs. (1992). Parti szűrészű kutak vizének eredete trícium koncentrációjuk és oxigén izotóparányaik felhasználásával *Hidrológiai Közlemények*, 72. évf. 4. szám, pp. 204-210

Deák J. (2006). A Duna-Tisza köze rétegvíz áramlási rendszerének izotóp-hidrogeológiai vizsgálata. Doktori (PhD) értekezés, ELTE, ELTE TTK Geofizika Tanszék, Budapest

Dénes Gy., Deák J. (1981). Felszín alatti vizek környezeti izotóp vizsgálata. *VITUKI témajelentés*, 721/1/22., Budapest

Dow, C.L., DeWalle, D.R. (2000). Trends in evaporation and Bowen ratio on urbanizing watersheds in Eastern United States. *Water Resources Research*, 36(7), 1835. <https://doi.org/10.1029/2000WR900062>

Ehhalt, D.H., Rohrer, F. (2002). Tritiated water vapor in the stratosphere: Vertical profiles and residence time. *T And D*, 107, pp. 1-15. <https://doi.org/10.1029/2001JD001343>

Ehhalt, D.H., Rohrer, F. (2009). The tropospheric cycle of H₂: A critical review. *Tellus, Series B: Chemical and Physical Meteorology*, 61(3), pp. 500-535. <https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2009.00416.x>

Eyrolle, F., Ducros, L., Le Dizès, S., Beaugelin-Seiller, K., Charmasson, S., Boyer, P., Cossonnet, C. (2018). An updated review on tritium in the environment. *Journal of Environmental Radioactivity*, 181, pp. 128-137. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.11.001>

Faltings, V., Harteck, P. (1950). Der Tritiumgehalt der Atmosphäre. *Zeitschrift Fur Naturforschung - Section A Journal of Physical Sciences*, 5(8), pp. 438-439. <https://doi.org/10.1515/zna-1950-0804>

Fehér, J., van Genuchten, M.Th., Deák, J. (1992). Estimating long-term water flow rates in the vadose zone using tritium measurements. *Scientific colloquium on „Porous or fractured unsaturated media: transport and behavior” Monte Verita, Ascona, Switzerland*

Fiévet, B., Pommier, J., Voiseux, C., Bailly Du Bois, P., Laguionie, P., Cossonnet, C., Solier, L. (2013). Transfer of tritium released into the marine environment by French nuclear facilities bordering the English Channel. *Environmental Science and Technology*, 47(12), pp. 6696-6703. <https://doi.org/10.1021/es400896t>

Flórián, E. (1958). A légköri radioaktivitás mérésének egyes eredményei. *Időjárás*, 62(5), pp. 266-274.

Gerontidou, M., Katzourakis, N., Mavromichalaki, H., Yanke, V., Eroshenko, E. (2021). World grid of cosmic ray

vertical cut-off rigidity for the last decade. *Advances in Space Research*, 67(7). pp. 2231-2240. <https://doi.org/10.1016/j.asr.2021.01.011>

Grosse, A.V., Johnston, W.M., Wolfgang, R.L., Libby, W.F. (1951). Tritium in nature. *Science*, 113(2923). pp. 1-2. <https://doi.org/10.1126/science.113.2923.1>

Happell, J.D., Östlund, G., Mason, A.S. (2004). A history of atmospheric tritium gas (HT) 1950-2002. *Tellus, Series B: Chemical and Physical Meteorology*, 56(3). pp. 183-193.

<https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2004.00103.x>

Harteck, P. (1954). The relative abundance of HT and HTO in the atmosphere. *The Journal of Chemical Physics*, 22(10). pp. 1746-1751. <https://doi.org/10.1063/1.1739888>

IAEA/WMO (2024). Global Network of Isotopes in Precipitation. The GNIP Database. Accessible at: <http://www.iaea.org/water>.

Jean-Baptiste, P., Baumier, D., Fourré, E., Dapoigny, A., Clavel, B. (2007). The distribution of tritium in the terrestrial and aquatic environments of the Creys-Malville nuclear power plant (2002-2005). *Journal of Environmental Radioactivity*, 94(2). pp. 107-118. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2007.01.010>

Jean-Baptiste, P., Fourré, E. (2013). The distribution of tritium between water and suspended matter in a laboratory experiment exposing sediment to tritiated water. *Journal of Environmental Radioactivity*, 116. pp. 193-196. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2012.11.004>

Kaufman, S., Libby, W.F. (1954). The natural distribution of tritium. *Physical Review*, 93(6). pp. 1337-1344. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.93.1337>

Kern, Z., Erdelyi, D., Vreča, P., Krajcar Bronić, I., Forizs, I., Kandu, T., Štrok, M., Palcsu, L., Suveges, M., Czuppon, G., Kohan, B., Hatvani, I.G. (2020). Isoscape of amount-weighted annual mean precipitation tritium (^3H) activity from 1976 to 2017 for the Adriatic-Pannonian Region - AP ^3H _v1 database. *Earth System Science Data*, 12(3). pp. 2061-2073.

Kozák, K. (1982). Analysis of tritium in tree rings. *Acta Physica Academiae Scientiarum Hungaricae*, 52(3-4), 429-434. <https://doi.org/10.1007/BF03158878>

Kozák, K., Biró, T. (1984). Reconstruction of environmental tritium levels from wine analysis. *Health Physics*, 46(1). pp. 193-203. <https://doi.org/10.1097/00004032-198401000-00017>

Kozák, K., Horvatini, N. (1989). Institute of Isotopes of the Hungarian Academy of Sciences. *Journal of Environmental Radioactivity*, 31(3). pp. 766-770.

Kuruczné Csiky I. (1983). A csapadék trícium-koncentrációja Magyarországon. *Időjárás*, 87(2). pp. 77-82.

László, E., Palcsu, L., Leelőssy, Á. (2020). Estimation of the solar-induced natural variability of the tritium concentration of precipitation in the northern and southern hemisphere. *Atmospheric Environment*, 233, 117605. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2020.117605>

László, E., Zsigrai Gy., Novák, T., Palcsu, L., (2024). A cosmic signature in wine. In: 7th International Congress on Water, Waste and Energy Management. p. 068, 1 p.

Lucas, L.L., Unterweger, M.P. (2000). Comprehensive review and critical evaluation of the half-life of tritium. *Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology*, 105(4). pp. 541-549. <https://doi.org/10.6028/jres.105.043>

Masarik, J., Beer, J. (1999). Simulation of particle fluxes and cosmogenic nuclide production in the Earth's atmosphere. *Journal of Geophysical Research*, 104(D10). pp. 12099-12111. <https://doi.org/10.1029/1998JD200091>

Masson, M., Siclet, F., Fournier, M., Maigret, A., Gontier, G., Bailly du Bois, P. (2005). Tritium along the French coast of the English Channel. *Radioprotection*. <https://doi.org/10.1051/radiopro:2005s1-091>

Novelli, P.C. (1999). Molecular hydrogen in the troposphere: Global distribution and budget. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 104(D23). pp. 30427-30444. <https://doi.org/10.1029/1999JD900788>

Öestlund, H.G., Dorsey, H.G. (1975). Rapid electrolytic enrichment and hydrogen gas proportional counting of tritium. In *Low-radioactivity Measurements and Applications: Proc. Int. Conf. High Tatras. Bratislava*.

Öestlund, H.G., Werner, E. (1962). The electrolytic enrichment of tritium and deuterium for natural tritium measurements. In *Tritium in the Physical and Biological Sciences* (pp. 95-104). Vienna: International Atomic Energy Agency.

Okai, T., Takashima, Y. (1991). Tritium concentrations in atmospheric water vapor, hydrogen and hydrocarbons in Fukuoka. *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation, Part 42(4)*. pp. 389-393. [https://doi.org/10.1016/0883-2889\(91\)90143-O](https://doi.org/10.1016/0883-2889(91)90143-O)

Ota, M., Yamazawa, H., Moriizumi, J., Iida, T. (2008). Measurement and modeling of the oxidation rate of hydrogen isotopic gases by soil. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 45(sup6), 185-190. <https://doi.org/10.1080/00223131.2008.10876004>

Palcsu, L., Major, Z., Köllő, Z., Papp, L. (2010a). Using an ultrapure ^4He spike in tritium measurements of environmental water samples by the ^3He -ingrowth method. *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, 24(5). pp. 698-704. <https://doi.org/10.1002/rcm.4431>

Palcsu, L., Molnár, M., Major, Z., Svingor, E., Veres, M., Barnabás, I., Kapitány, S. (2010b). Detection of tritium and alpha decaying radionuclides in L/ILW by measurements of helium isotopes. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 286(2). pp. 483-487. <https://doi.org/10.1007/s10967-010-0741-z>

Palcsu, L., Morgenstern, U., Sültenfuss, J., Koltai, G., László, E., Temovski, M., Major, Z., Nagy, J. T., Papp, L., Varlam, C., Faurescu, I., Túri, M., Rinyu, L., Czuppon, G., Bottyán, E., Jull, A.J.T. (2018). Modulation of cosmogenic tritium in meteoric precipitation by the 11-year cycle of solar magnetic field activity. *Scientific Reports*, 8(1), 12813. <https://doi.org/10.1038/s41598-018-31208-9>

Papp, L., Palcsu, L., Major, Z., Rinyu, L., Tóth, I. (2012). A mass spectrometric line for tritium analysis of water and noble gas measurements from different water amounts in the range of microlitres and millilitres. *Isotopes in Environmental and Health Studies*, 48(4). pp. 494-511. <https://doi.org/10.1080/10256016.2012.679935>

Paul, A., Hatté, C., Pastor, L., Thiry, Y., Siclet, F., Balesdent, J. (2016). Hydrogen dynamics in soil organic matter as determined by ^{13}C and ^2H labeling experiments. *Biogeosciences*, 13(24). pp. 6587-6598. <https://doi.org/10.5194/bg-13-6587-2016>

Schonhofer, F., Pock, K. (1995). Incorporation of tritium from wrist watches. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 197(1). pp. 195-202. <https://doi.org/10.1007/BF02040231>

Simon A. (1966). A légkör mesterséges eredetű béta-radioaktivitása Budapesten 1961-65-ben. *Időjárás*, 70(5). pp. 261-265.

Szalay, A., Berényi, D. (1955). Unusual radioactivity observed in the atmospheric precipitation in Debrecen (Hungary) between Apr. 22-Dec. 31, 1952. *Acta Physica Academiae Scientiarum Hungaricae*. <https://doi.org/10.1007/BF03156247>

Stute, M., Deák, J., Révész, K., Böhlke, J.K., Deseö, E., Weppernig, R., Schlosser, P. (1997). Tritium/ ^3H Dating of

River Infiltration: An Example from the Danube in the Szigetköz Area, Hungary. *Ground Water*, 35(5). pp. 905-911. <https://doi.org/10.1111/j.1745-6584.1997.tb00160.x>

Vodila, G., Palcsu, L., Futó, I., Szántó, Zs. (2011). A 9-year record of stable isotope ratios of precipitation in Eastern Hungary: Implications on isotope hydrology and regional palaeoclimatology. *Journal of Hydrology*, 400(1-2). pp. 144-153. <https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2011.01.030>

Wolfgang, R.L. (1961). Origin of high tritium content of atmospheric methane, hydrogen and stratospheric water. *Nature*, 192(4809). pp. 1279-1280. <https://doi.org/10.1038/1921279a0>

Wood, M.J., Mcelroy, R.G.C., Surette, R.A., Brown, R.M. (1993). Tritium sampling and measurement. *Health Physics*, 65(6). pp. 593-599. <https://doi.org/10.1097/00004032-199312000-00002>

A SZERZŐK



LÁSZLÓ ELEMÉR meteorológus és hidrológus (ELTE TTK, 2018, 2024), a HUN-REN Atommagkutató Intézet, Izotópklimatológiai és Környezetkutató Központ tudományos munkatársa. Érdeklődési területei: a csapadéki izotópok meteorológiai alkalmazásai, izotóphidrológia, borok izotópbélyegének meghatározása, légköri modellezés. Egy NKFIH-pályázat vezetője.



LEELŐSSY ÁDÁM meteorológus (ELTE TTK, 2011), az ELTE Meteorológiai Tanszékének egyetemi adjunktusa. Érdeklődési terület: légszennyezés-meteorológia, légköri terjedési modellek, légköri radioaktivitás, számítógépes modellek használata pollenszennyezettség becslésére.



HAJNAL ANDOR geográfus, geológus (SZTE TTK, 2010). Isotoptech Zrt. tudományos munkatársa. Érdeklődési területek: hidrológiai modellezés, környezeti monitoring.



BAKSA MÁTYÁS meteorológus és hidrológus (ELTE TTK, 2021, 2023). A Közép-dunántúli Vízügyi Igazgatóság Vízrajzi és Adattári Osztályának Hidrológiai Értékelőcsoportjában dolgozott monitoring referens beosztásban. Debreceni Egyetem Fizikai Tudományok Doktori Iskolában PhD-hallgató, valamint tudományos segédmunkatárs a HUN-REN Atommagkutató Intézet Környezet-analitikai Kutatócsoportjában. Kutatási területe: izotópklimatológia, izotóphidrológia.



PALCSU LÁSZLÓ fizikus (ELTE TTK, 1998), tudományos főmunkatárs, az Izotópklimatológiai és Környezetkutató Központ vezetője. Érdeklődési területei: a kozmogén trícium és a Napciklus kapcsolata, jégvétegek korolása, izotóphidrológia, paleoklíma-rekonstrukció. Egy OTKA-pályázat vezetője.