

IRSN

INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Journées techniques SFRP
"Air & Radioactivité"

Prélèvement et mesure des iodes dans l'atmosphère



❑ Fonctionnement normal:

- CNPE (tests des pièges à l'¹³¹I),
- Installations de retraitement (¹²⁹I),
- laboratoires radio-pharmaceutiques (¹²³I, ¹²⁴I, ¹²⁵I, ¹³¹I)

❑ **Rejet accidentel:** 2^{ème} en activité après les Xe (Fukushima: 120 PBq ¹³¹I + 42 PBq ¹³³I + 8GBq ¹²⁹I)

❑ Prédominance des formes gazeuses (I₂ et ICH₃) devant la forme aérosol

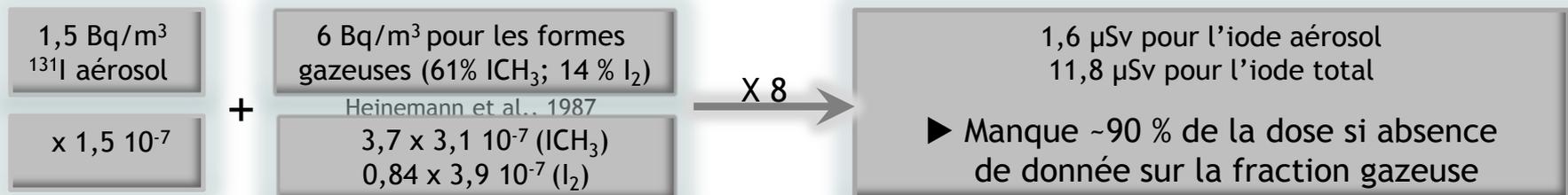
❑ En situation d'accident 90% dose inhalation due à ¹³¹I



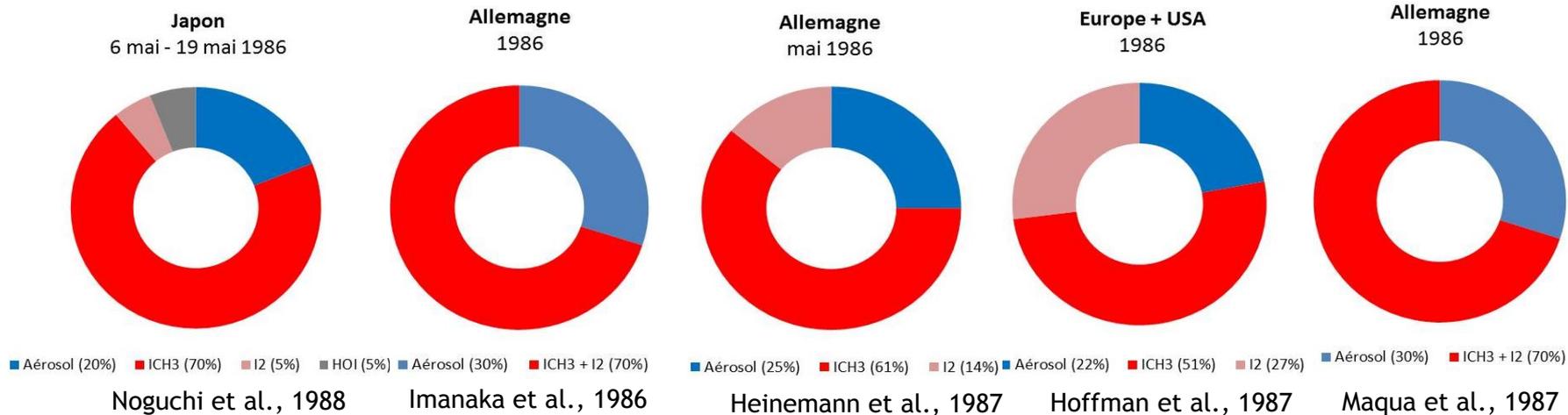
Coefficients de dose efficace à la thyroïde (Sv/Bq inhalé)	Adulte		Enfant 1 à 2 ans	
¹³¹ I aérosol 1 µm (F)	1,50 E-07		1,40 E-06	
¹³¹ I ₂	3,90 E-07	x 2,6	3,20 E-06	x 2,3
¹³¹ ICH ₃	3,10 E-07	x 2,1	2,50 E-06	x 1,8



A.N.: Cas d'un adulte exposé 8 heures (1m³/h)

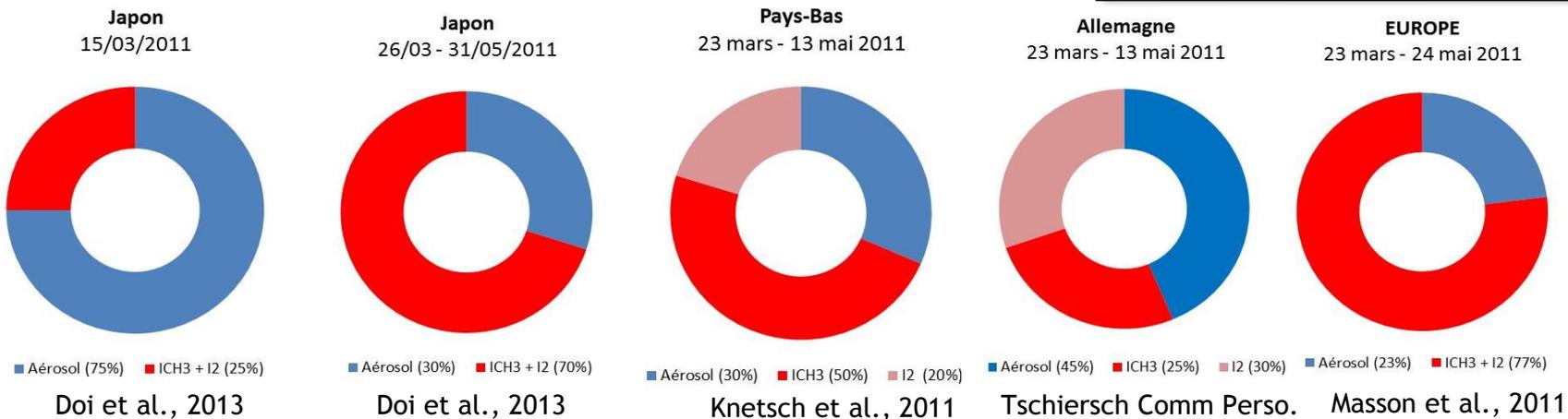


Tchernobyl



Fukushima

Valeurs max: 2,7 mBq/m³ (aérosol)
 (France) 7,0 mBq/m³ (gaz)



➤ Prédominance des formes gazeuses (X 3,5 à X5)
(sauf possiblement à échelle locale/régionale autour de l'installation)



AEROSOLS: Uniquement à partir de collecte à très grand débit (100 – 900 m³/h)

- ❑ Avril 2010: Suède, Allemagne,
- ❑ Mars, octobre/novembre 2011: +¹²⁵I, un peu partout en Europe (origine Budapest),
- ❑ Février 2012: plusieurs pays Européens,
- ❑ Juin 2013: région parisienne (possible fuite depuis un hôpital parisien)
- ❑ Décembre 2013: ¹³¹I en Norvège et Finlande,
- ❑ Octobre 2014: ¹³¹I Pays-Bas,
- ❑ Mars, Mai 2015: ¹³¹I en Suède, Finlande, Norvège, Pologne, Russie, France
- ❑ Février 2016: Finlande
- ❑ Décembre 2016: Est de la France
- ❑ Janvier 2017: Nord de la Norvège, Finlande et Ouest de la Russie

➤ 0,3 µBq/m³ < Niveaux ¹³¹I particulaire < 65 µBq/m³



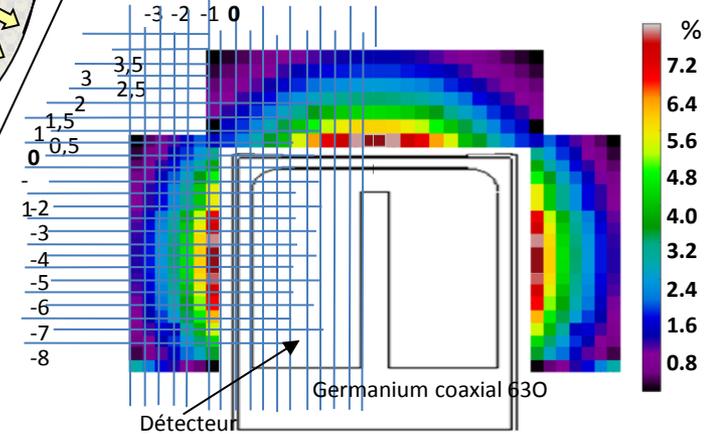
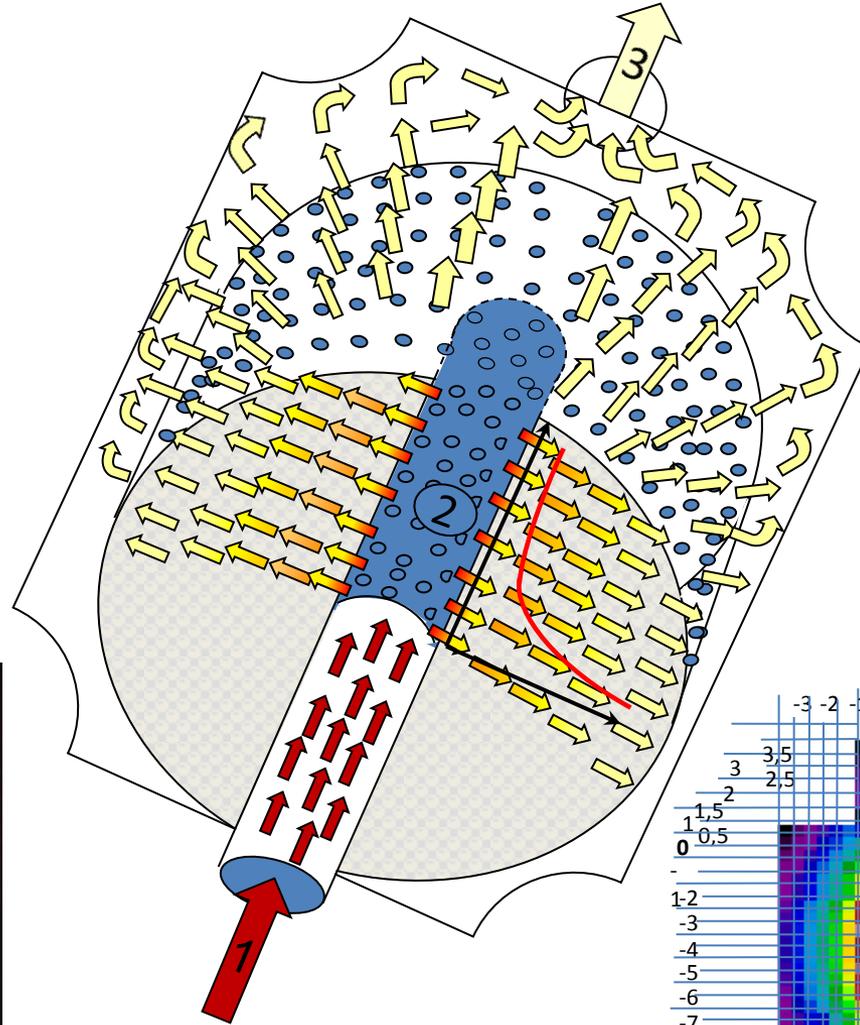
GAZ: à partir de collecte uniquement à bas débit

➤ 1 µBq/m³ < Niveaux ¹³¹I gazeux attendus < 230 µBq/m³
 mais aucune mesure en gaz > seuils de décision !!

- ❑ Inatteignable avec les dispositifs actuels (300 < LD < 500 µBq/m³)
- ❑ Traces détectées en France mais quid pour les populations vivant à proximité des points d'émission à l'étranger ?
- ❑ Défaut d'information

DÉVELOPPEMENT D'UN PIÈGE GAZEUX GRAND DÉBIT

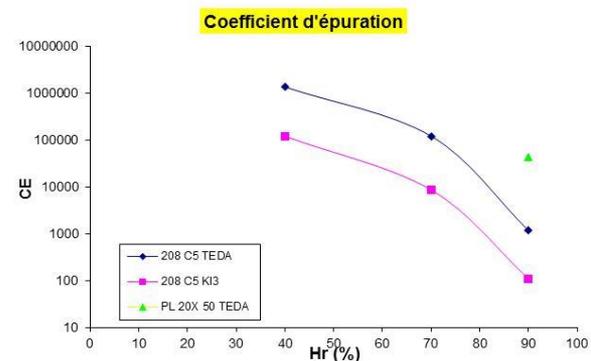
Brevet IRSN FR1462352



- ✓ Débit élevé (jusqu'à 100 m³/h)
- ✓ Optimisation du piégeage
- ✓ Optimisation de la détection
- ✓ Géométrie conventionnelle

Rendement de détection (%) dans les 3 premiers cm de l'élément adsorbant

- Fraction aérosol:
 - Progrès considérables sur le prélèvement d'aérosols: Débit (plusieurs 10^{aines} à plusieurs 100^{aines} de m^3/h), efficacité de filtration, réchauffeur au contact du filtre
- Fraction gazeuse:
 - Prélèvements spécifiques sur adsorbants (charbons ou zéolites),
 - Peu d'améliorations sur le prélèvement de l'iode gazeux: faible débit (3 à $5 \text{ m}^3/\text{h}$),
 - Problème de représentativité du prélèvement
 - Interférents : vapeur d'eau, radon, thoron, xénon
 - Globalement en Europe seulement 30 % des sites de collecte d'aérosols étaient munis d'un piège à iode gazeux pendant Fukushima



Réseau OPERA-Air



9 stations aérosol
très grand débit
**Bruit de fond
dans l'environnement**

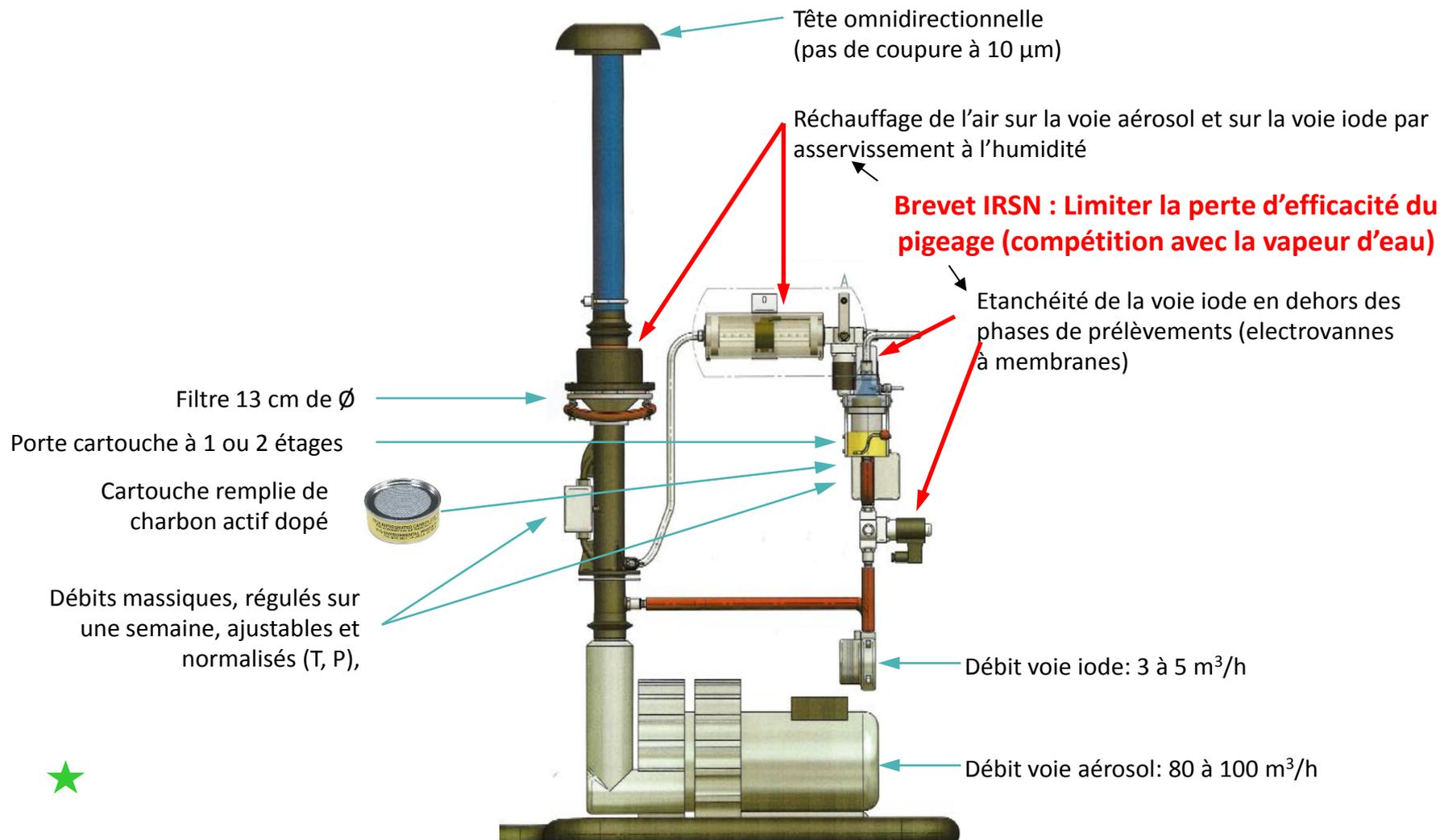


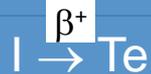
35 stations aérosol + iode
moyen débit
**Environnement proche
des installations**



20 stations aérosol + iode
bas débit
**Autonomes et transportables
en situations de crise**

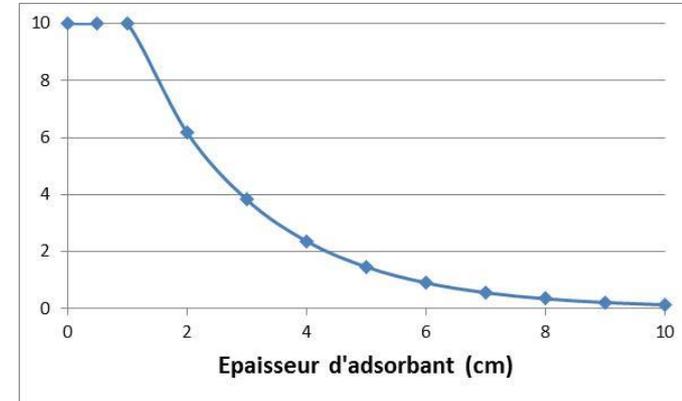
- Suite au rejet incidentel d' ^{131}I à Fleurus (2008, 45 GBq), il a été reproché à l'exploitant l'absence de dispositif permettant de diminuer l'humidité relative à l'amont du piège.





□ ^{131}I (γ 364,5 keV, 81%; β 190 à 606 keV ; T= 8,02 j)

- Pic bien résolu; pas d'interférent majeur à proximité,
- Concentration non homogène (\neq étalon homogène)
→ Comptage 50% face A, 50% face B
- Différents profils fonction de la quantité d'iode piégée
 - Homogénéiser le contenu de la géométrie



□ ^{129}I (pic à 29,7 keV (57 %) ou 39,6 keV (moins sensible à l'auto-atténuation mais moins intense 7% ; T= 15,7 10^6 ans)

- Gamma de très basses énergies (domaine des X) → corrections d'auto-atténuation,
- Nécessite des précautions en termes de correction, échantillon par échantillon (mesure préalable de transmission)
 - Fonction des profils de concentrations possibles au sein d'un adsorbant
 - Nécessaire même pour une densité / épaisseur d'adsorbant relativement faible

□ ^{132}I (668 keV; 99%, 2,3 h)

- Rôle du père (^{132}Te) dans le niveau en ^{132}I
- Nécessite 2 mesures à 1 ou 2 périodes d'intervalle pour confirmer l'origine (difficilement envisageable en situation de crise)

□ Autres points particuliers

- Teneur élevée en ^{40}K des charbons ↗ Fond Compton à 1460 keV
- Niveaux faibles → mesure par AMS, NAA

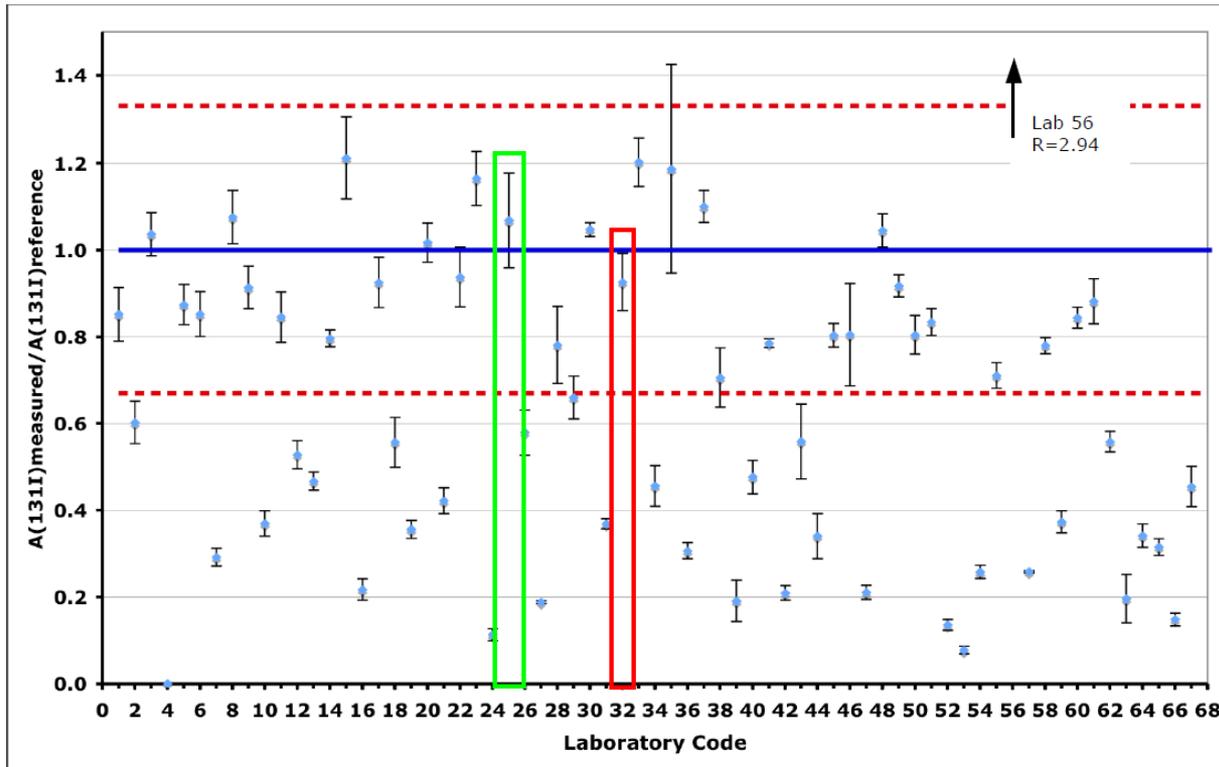
Même la mesure de l'iode sur un filtre peut poser des problèmes !



EUROPEAN COMMISSION
 DIRECTORATE-GENERAL
 JOINT RESEARCH CENTRE
 Directorate G - Safety & Security (Karlsruhe)
 Standards for Nuclear Safety, Security and Safeguards

- 1 labo sur 2 en dehors des clous
- 1 majorité de valeurs sous-estimées
- Problème de volatilité de l'iode déposé sur les filtres
- Perte en iode si comptage sans les enveloppes
- Malgré ces problèmes, les deux labo de l'IRSN (STEME) se classent parmi les premiers

Nuclide: ^{131}I



❑ Les iodes radioactifs concentrent:

- des enjeux considérables en termes de radioprotection,
- une complexité liée à la physico-chimie et à l'évolution / aux interactions des différentes espèces d'iode avec les matrices présentes dans l'environnement,
- un champ de méconnaissances et d'incertitudes encore (trop) important vis à vis :
 - de sa spéciation gaz / aérosol, notamment en champ proche,
 - de la spéciation des espèces gazeuses (I_2 et CH_3),
 - des vitesses de dépôt (notamment I_2),
 - du comportement de l'iode dans l'atmosphère (réactivité chimique, photolyse, oxydation)

❑ Le prélèvement des iodes radioactifs pose encore problème:

- sous-représentativité numérique de stations "gaz" face aux enjeux,
- limitation du débit de prélèvement (fraction gazeuse) → LD trop basses pour les situations autres qu'accidentelles,
- représentativité des prélèvements:
 - compétition iode / vapeur d'eau et autres gaz radioactifs
 - distribution inhomogène au sein de l'adsorbant

❑ La mesure des iodes nécessite

- Corrections d'auto-atténuation pour ^{129}I (filtre et cartouche)
- Homogénéisation de l'adsorbant Pour ^{131}I

❑ La surveillance des iodes

- Corrections d'auto-atténuation pour ^{129}I (filtre et cartouche)

- ❑ A court terme (2017): Déploiement du piège à iode gazeux à grand débit et fonctionnement en mode dormant
- ❑ A moyen terme: Spéciation des formes gazeuses (grand débit)
- ❑ A plus long terme: Spéciation de la forme HOI (en // avec la connaissance des coefficients de dose)
- ❑ Amélioration des connaissances
 - Cinétique de sorption gaz → aérosol
 - Evolution du rapport gaz / particule entre le point d'émission et à distance
 - Distribution en taille de l'iode sur la fraction fine de l'aérosol (0,1 μm)
 - Evolution de la distribution en taille de l'iode particulaire au cours du temps
 - Possibilité de désorption/évaporation/ré-émission après dépôt

Merci pour votre attention



Credit: W. Perry Conway/Corbis

□ Famille des halogènes

- réactivité chimique (Cl, Br; CH₄, COV, O₃, NOx)
- plusieurs états d'oxydation (-1 à +7)

□ Réactions

- radiolyse (dans les installations),
- photolyse (≠ jour / nuit)
- photo-oxydation (O₂, O₃)

□ Solubilité I₂ relativement faible dans l'eau (formation d'iodures I⁻, d'iodates IO₃⁻),

□ Grande volatilité

- I₂ solide se sublime à T° ambiante; fond à 113,7°C; bout à 184,4°C.
- ICH₃: point d'ébullition: 42,4°C

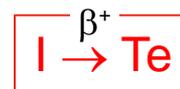
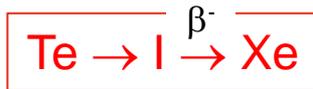
□ Présent sous forme de gaz et d'aérosols dans les rejets et dans l'environnement



TABLEAU PÉRIODIQUE DES ÉLÉMENTS
http://www.periodni.com/fr/

Copyright © 2012 DeGruyter

38 isotopes (de ^{108}I à ^{145}I , seul ^{127}I est stable)



...

^{123}I (T = 13,2 heures)

^{124}I (T = 4,18 jours)

^{125}I (T = 59,4 jours)

^{129}I (T = $15,7 \cdot 10^6$ ans; 6,37 GBq/g)

^{131}I (T = 8,04 jours; 4,6 PBq/g)

^{132}I (T = 2,3 heures)

^{133}I (T = 20,8 heures; 42 PBq/g)

^{134}I (T = 52,6 min.)

^{135}I (T = 6,61 heures)

...

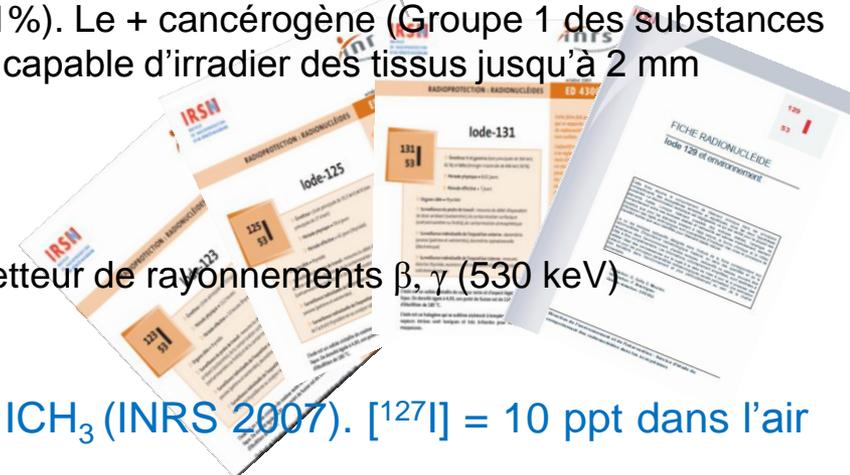
^{127}I VLE = 1 mg/m^3 pour I_2 et 12 mg/m^3 pour ICH_3 (INRS 2007). $[\text{I}^{127}] = 10 \text{ ppt}$ dans l'air ambiant

PF émetteur de rayonnements β , γ (35 keV)

PF de U, Th, Pu + produit de spallation du xénon en haute atmosphère + fission spontanée de noyaux lourds; émetteur de rayonnements β , γ -X (notamment γ à 29,7 keV, 57%)

PF de ^{235}U et ^{239}Pu , émetteur de rayonnements β (190 à 606 keV), γ -X (364,5 keV, 81%). Le + cancérogène (Groupe 1 des substances CMR), capable d'irradier des tissus jusqu'à 2 mm

PF émetteur de rayonnements β , γ (530 keV)



□ Dans les installations

- I_2 + autres PF → formation d'aérosols de taille micronique de Csl, CdI_2 , AgI, InI, FeI_2 et d'aérosols secondaires nanométriques issus de la nucléation

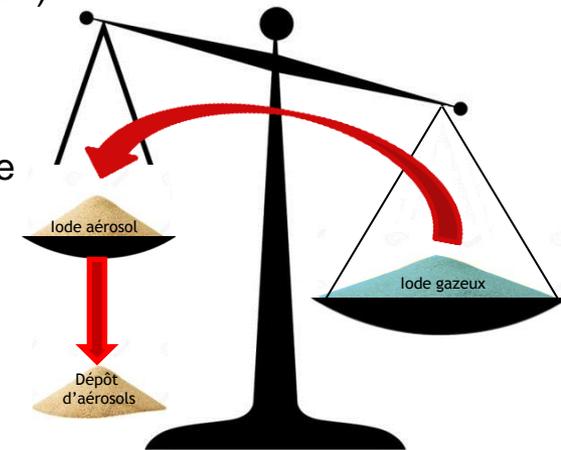
□ Dans l'environnement (atmosphère)

- I_2 + O_3 → oxydes d'iode (aérosols)
- I_2 + aérosols naturels (poussières minérales, carbonées, volcaniques, sels marins,...) → iode particulaire par adsorption

➤ Au cours du transport des masses d'air

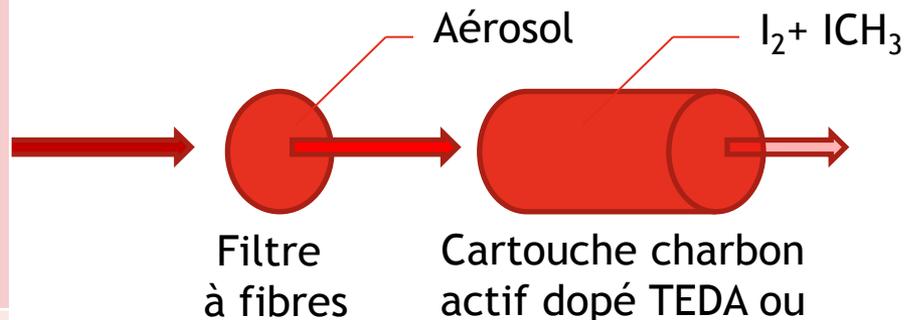
- Alimentation graduelle de la phase aérosol (en + des aérosols d'iode déjà présents dans les rejets)
 - par adsorption d'iode gazeux (cinétique d'adsorption +/- lente)
 - par conversion gaz → particule (condensation et nucléation)
- Déperdition de la phase aérosol (dépôts sec et humide)
- A noter également dépôt d'iode gazeux et possibilité de ré-émission d'iode gazeux à partir des dépôts et de la biomasse

Gaz/Aérosol ~ constant (3 et 5)

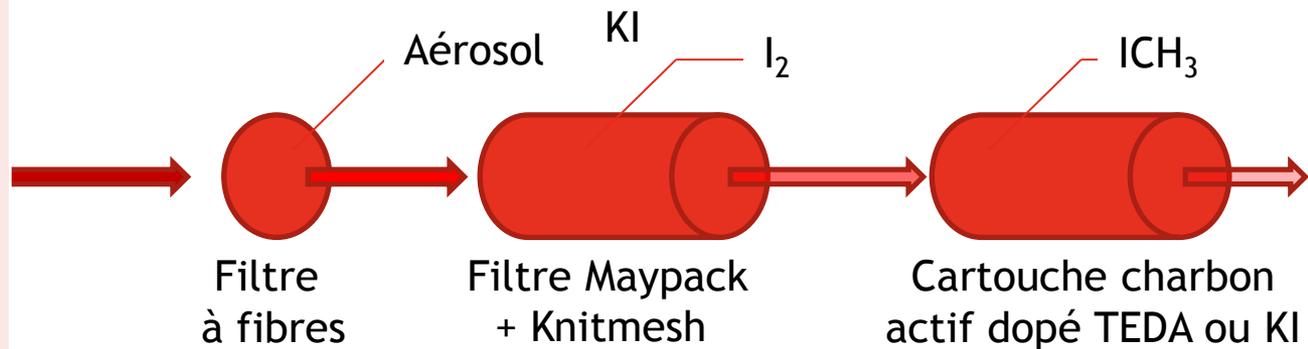


NIVEAUX DE SPÉCIATION

AEROSOL / GAZ



AEROSOL / I_2 / ICH_3



AEROSOL / I_2 / HOI / ICH_3

