



RÉPUBLIQUE
FRANÇAISE

*Liberté
Égalité
Fraternité*

IRSN

INSTITUT DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE



Evolution du fractionnement gaz/particules des iodes radioactifs en fonction de la distance au point d'émission

Olivier Masson (IRSN/PSE-ENV/SERPEN/LEREN)

Crédit photo O. Masson

RAPPELS

- En cas d'accident nucléaire, l'iode présent dans l'installation et/ou qui peut être rejeté dans l'environnement, existe sous différentes formes physico-chimiques



Par souci de simplification (et parce que cela peut correspondre à une réalité)

- les différentes espèces gazeuses organiques \Rightarrow CH_3I
- les différentes espèces gazeuses inorganiques \Rightarrow I_2
- les espèces particulaires \Rightarrow aérosol de $1\ \mu\text{m}$

- Répartition au niveau du re... (scenario de l'accident) (e.g., maintien de l'intégrité de la ligne de filtration des aérosols, de la voie iode pour les formes inorganiques, explosion ou pas...)

- Cette répartition évolue sous l'influence de UV, O_3 , NO_x , aérosols, COV, etc

- **Influence directe** \rightarrow dose par inhalation (coefficients de dose = $F(\text{forme inhalée} + \text{diamètre aérosol})$)
- **Influence indirecte** \rightarrow dose par ingestion de denrées contaminées par les dépôts : les vitesses de dépôt sec des formes d'iode sont très différentes et conditionnent le niveau de contamination en iode de l'environnement

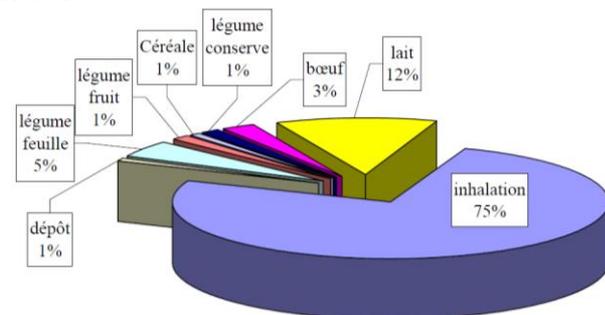
\rightarrow Une estimation dosimétrique plus réaliste par inhalation et ingestion \Rightarrow de connaître plus précisément la répartition des différentes formes d'iode dans l'atmosphère

C'est l'objectif du projet SPECIOSA, en cours à l'IRSN !

ENJEUX SANITAIRES ET DOSIMÉTRIQUES

■ Ingestion d'aliments contaminés en ^{131}I = voie la plus pénalisante sauf si :

- Interdiction de consommation (+/- le cas au Japon ou en Angleterre)
- ^{131}I majoritairement sous forme organique dans l'air
- Hors saison végétation, stabulation du bétail
- Difficile de ne pas respirer !



➢ Guetat P, Armand P, Monfort M, et al., 2004. Rapport CEA R-6065

■ Négliger la fraction gazeuse (en moyenne 2/3 de l'iode total) → dose inhalation ÷ 5 (coefficients de dose ~ 2 X + élevés pour l'iode gazeux que pour l'iode particulaire)

■ Connaître la répartition détaillée des formes gazeuses (organique et inorganique) est un plus pour l'évaluation dosimétrique et pour l'estimation des dépôts

V_d (cm/s)	Iode particulaire (1 μm)	Iode gazeux inorganique	Iode gazeux organique
	0,2 à 0,5	1 à 2	0,001 à 0,01

■ Modèles (dispersion atmosphérique et dépôt) utilisés en situation d'urgence :

- soit considèrent l'iode sous seule forme (I_2 notamment car coeff. dose >, V_d > et W_r >),
- soit appliquent une distribution arbitraire (exemple 50% Org./ 25% Inorg./ 25% aérosol)
- soit estiment une répartition d'après un scénario donné (Cf. diapo suivante)

MAIS... répartition entre les différentes formes d'iode = constante au cours du transport !

EXEMPLES DE DISTRIBUTION EN IODE – FOCUS SUR LES SÉQUENCES EXPLOSIVES

Essais nucléaires

Aérosol
Total Gas

Essai sur tour H=100m 22 kt
16/10/64



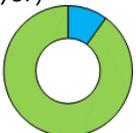
➤ Hull AP (1966) Health Phys., 12, 1317-1325

Essai sub-surface
2/07/62



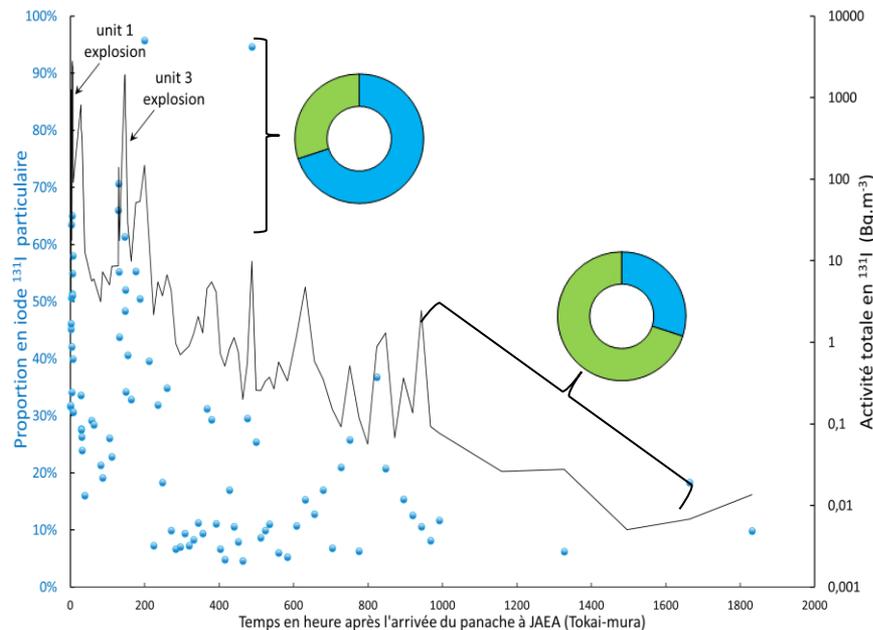
➤ Seal MS, Foutain EL (1964) July 6, 1962 SWRHL-2r

Essai souterrain profond
(2/08/87)



➤ Bjurman B et al., (1990) J. Environ. Radioact. 11, 1-14

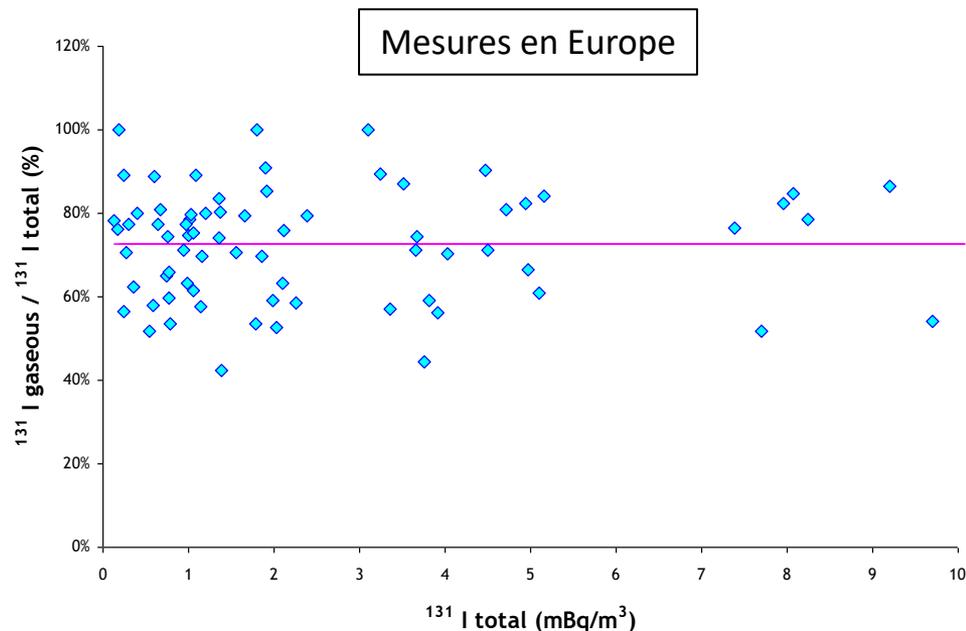
Fukushima
(prélèvements à JAEA, Tokai-mura)



➤ Ohkura T et al., (2012) JAEA-Data/Code 2012-010

- Si production importante d'aérosols ⇒ proportion élevée d'iode sous forme particulaire
- Retour rapide à une proportion minoritaire d'iode particulaire

CAS DE L'ACCIDENT DE FUKUSHIMA



➤ Masson O. et al. (2011). Environ. Sci. Technol., 45, 7670–7677

Au cours du transport Japon → Europe 40 % de l'¹³¹I gazeux aurait été converti en ¹³¹I particulaire

➤ Achim P, Monfort M, et al., (2014) Pure Appl. Geophys. 171, (3-5), 645–667

- en moyenne, l'iode reste majoritairement (~ 80%) sous forme gazeuse
- la fraction organique est ≥ fraction inorganique

Mesures aux USA → Idem (80%)

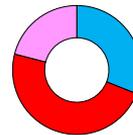
➤ Thakur P et al., (2012). J. Environ. Monit. 14, 1317–1324

Mesures plus détaillées en Europe

Neuherberg, Allemagne



Bilthoven, Pays-Bas



AEROSOL

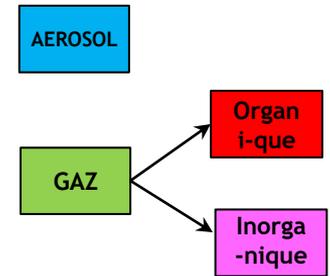
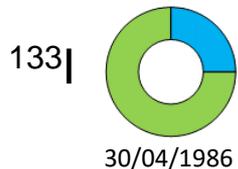
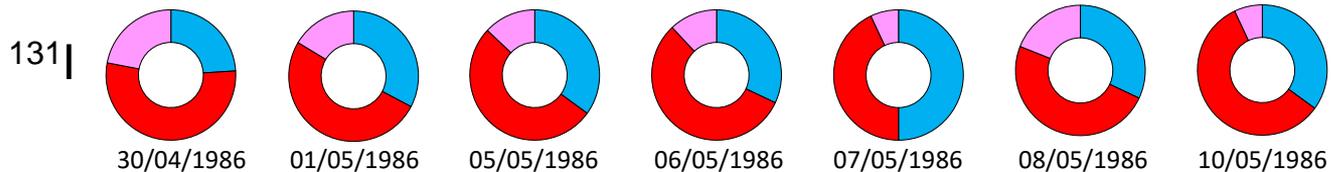
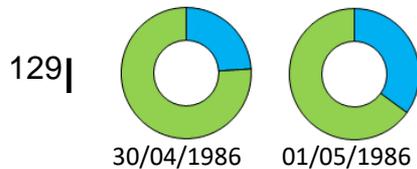
Organique

Inorganique

CAS DE L'ACCIDENT DE TCHERNOBYL

Prélèvements réalisés à Vilnius

➤ Nedveckaitė T, Filistovic V (1993) J. Radioanal. Nucl. Chem. 174, 1, 43-47

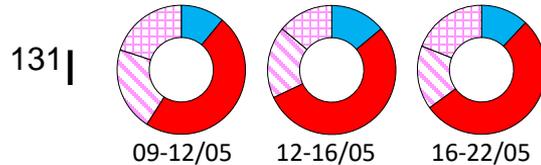


- ^{131}I est majoritairement (50 à 80%) sous forme gazeuse
- l'iode organique est de loin la forme gazeuse prépondérante
- Proportion d'iode particulaire sensible au dépôt humide

CAS DE L'ACCIDENT DE TCHERNOBYL

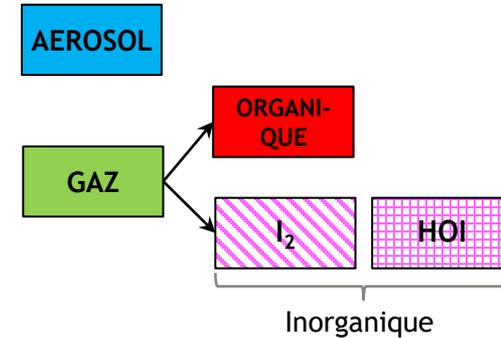
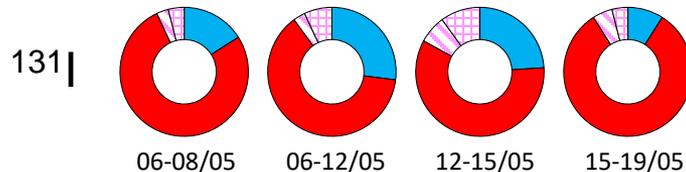
Prélèvements réalisés à Paris dans le mois suivant l'accident

➤ Caput C., Belot Y., Guenot J., Gauthier D (1988) IV Symposium International de Radioécologie de Cadarache



Prélèvements réalisés à Tokai-mura, 7 jours après le 26 avril 86

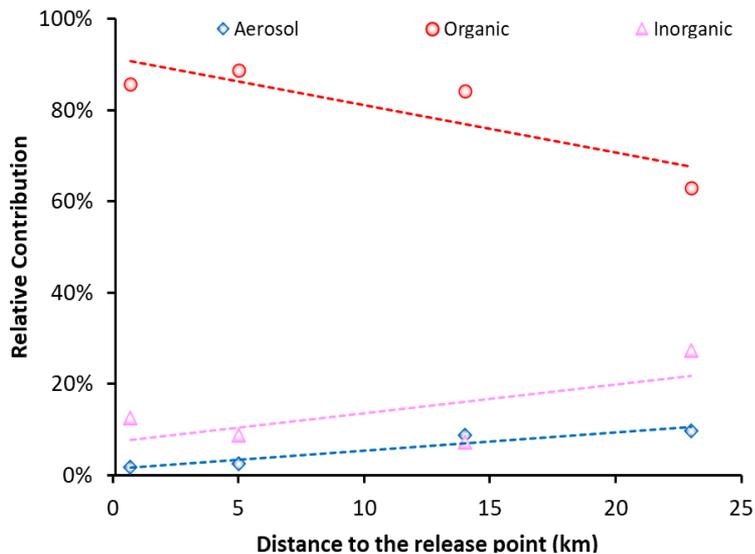
➤ Noguchi H., Murata M (1988) 7 (1), 65-74.



- l'iode est majoritairement (75 à 90%) sous forme gazeuse
- l'iode organique est de loin la forme prépondérante
- HOI ≠ I₂ (pas de coeff. de dose pour HOI, mais important pour expliquer I inorganique en proportion significative)

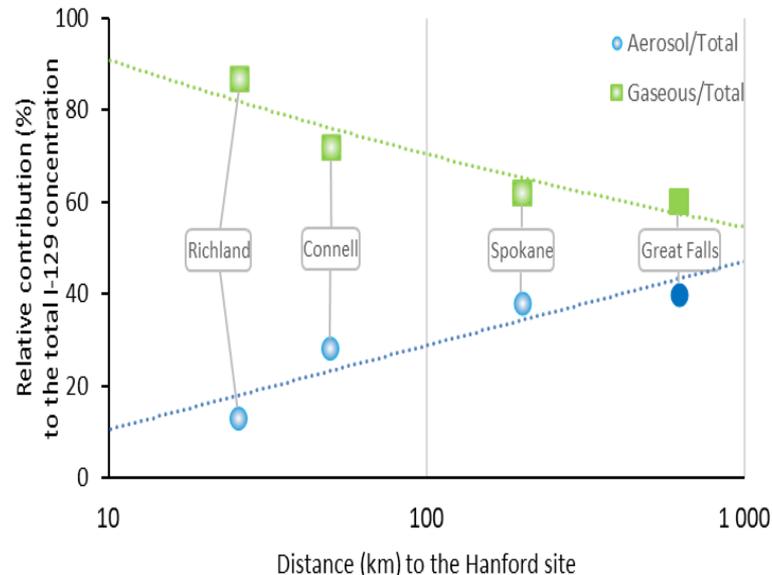
RETRAITEMENT DE COMBUSTIBLE (FONCTIONNEMENT NORMAL)

Rejet d'¹²⁹I sous forme organique
usine pilote de retraitement WAK, Karlsruhe



➤ Wershofen H, Aumann DC (1989) J. Environ. Radioact., 10, 141-156.

Rejet d'¹²⁹I sous forme inorganique
usines de retraitement T et B, Hanford



➤ Brauer FP, Rieck HG jr, Hooper RL (1973). Physical behavior of radioactive contaminants in the atmosphere. Proc. of a joint IAEA/WMO symposium

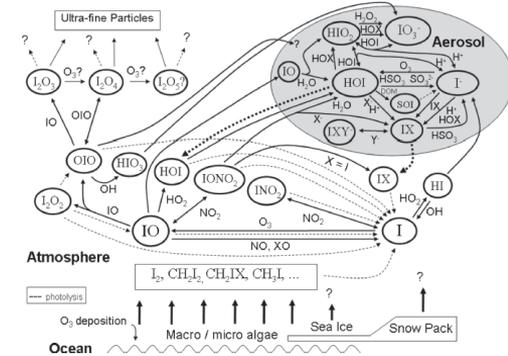
A 8 km du site d'Hanford: 85% d'iode gazeux (42% organique, 43% inorganique) et 15% d'aérosol,

➤ Ludwick JD (1964) Hanford Radiological Sciences Research and Development Annual Report for 1963. Gamertsfelder CC and Green JK, Eds. HW-81746.

QUESTIONS

Pourquoi et comment varie la répartition atmosphérique des formes d'iode ?

- ▶ volatil et réactif (plusieurs degrés d'oxydation)
- ▶ chimie complexe (~250 réactions en phase gazeuse)
- ▶ rôle de la photolyse et des réactions d'oxydation
 - $I_2 + h\nu \rightarrow I + I$ (temps demi-vie = qq 10^{aines} de secondes)
 - $CH_3I + h\nu \rightarrow CH_3 + I$ (emps de demi-vie = qq jours)
- ▶ Interactions phase liquide/gaz peu connues (adsorption, absorption, désorption sur/à partir des gouttes)
- ▶ Importance du cycle jour/nuit \Rightarrow distributions \neq pour un rejet d'iode de jour ou de nuit (importance si rejet de type bouffée)
- ▶ Différentiation en termes de dépôt



▶ Saiz-Lopez et al. (2011) Atmospheric Chemistry of iodine. Chem. Rev., 112, 1773–1804

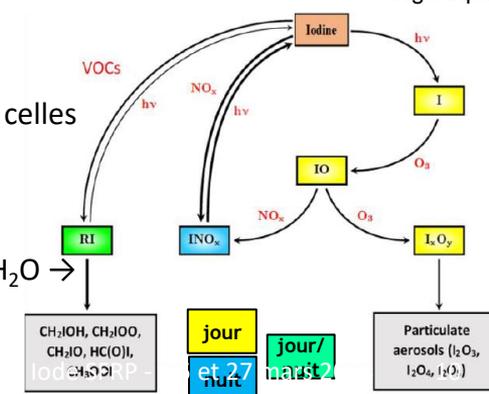
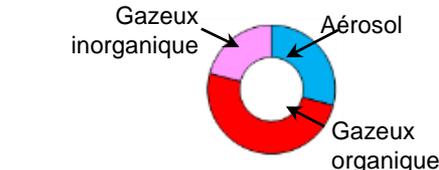
D'où vient l'iode particulaire?

- production d'iodures métalliques multicomposants (CsI, AgI, CdI₂, ...) \Rightarrow aérosols microniques
- réactions avec oxydants (O₃, NO_x) \Rightarrow aérosols ultra-fins (I_xO_y)
- adsorption d'iode gazeux sur des aérosols ambiants
- formation d'iode particulaire par nucléation de l'iode gazeux

↳ d'autant la fraction gazeuse

D'où vient l'iode gazeux inorganique?

- production nocturne d'I inorganique via des intermédiaires réactionnels et réactions \Leftrightarrow à celles de jour
- I₂ peut échapper momentanément à la photolyse si adsorbé sur aérosol
- temps de vie de I₂ \rightarrow équilibre entre production et décomposition
- présence d'autres composés inorganiques comme HOI (temps demi-vie = 0,5 à 1 jour) : $I_2 + H_2O \rightarrow HOI + HI$



D'où vient l'iode gazeux organique?

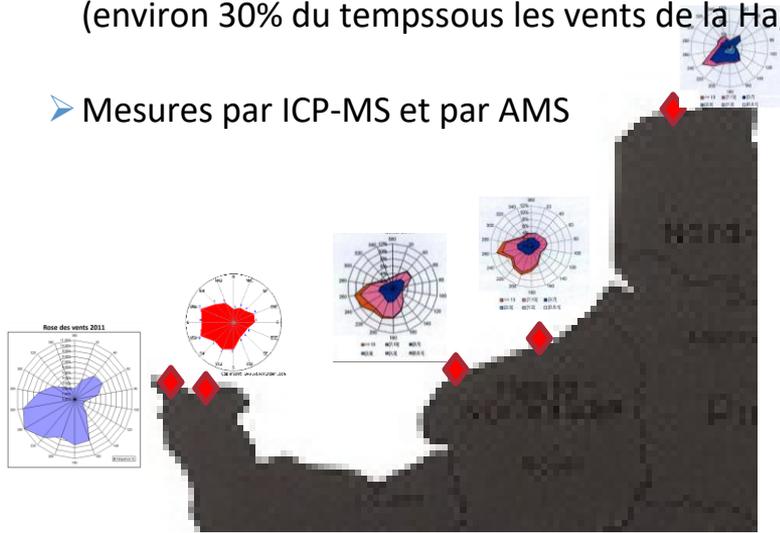
- Volatilisation iodures si pH acide

EXPERIMENTATIONS DE TERRAIN

Site de la Hague

- Prélèvements haut débit d'aérosols et des deux formes gazeuses d'¹²⁹I dans différentes configurations (échantillons composites)
- + marée basse, émission d'embruns, pluie ...
- A différentes distances sous les vents de la Hague (PTILH, Cherbourg et le long des côtes de la Manche (environ 30% du temps sous les vents de la Hague)
- Mesures par ICP-MS et par AMS

Usine	Conditions de photolyse		Conditions oxydantes	
			O ₃ ↗	O ₃ ↘
Fonctionnement	X	X	X	X
Arrêt	X	X	X	X



Collecte d'aérosols Collecte iodés gazeux

Prélèvements pilotés par signal sonde ⁸⁵Kr

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES



- Evolution rapide de la répartition de l'iode entre ses différentes formes
- Rôle prédominant de la photolyse
- Développement des outils de vérification expérimentale



- Interactions liquide/gaz à quantifier
- Importance des autres espèces inorganiques (HOI, HI...)
- Formation d'iode particulaire par nucléation d'iode gazeux
- Cinétique d'évolution à quantifier précisément
- Prise en compte de la distribution de l'iode dans les outils prévisionnels de crise (évaluation dosimétrique / inhalation et dépôt)



Projet Speciosa

- Acquisition de données expérimentales sur le rôle de la photolyse dans l'évolution jour / nuit de la distribution des formes organiques, inorganiques et particulaires de l'iode
- Première campagne de terrain autour de la Hague en avril
- Travaux de laboratoire sur interaction gaz/gouttes et gouttelettes

Remerciements:

AC Grégoire
L. Bosland
L. Cantrel
P. Nerisson
M. Chebbi
C. Monsanglant
P. Laguionie
D. Hebert
O. Connan
D. Quélo
P. Paulat
J. Faramond
M. Terme

Merci pour votre attention

Crédit photo O. Masson

Questions ? →  olivier.masson@irsn.fr

- En plus de la connaissance de la répartition entre phase gazeuse (totale) et phase aérosol, l'évaluation précise de la dose par inhalation requiert la distinction entre les espèces gazeuses I_2 et ICH_3 .

131I En raison de sa courte période radioactive, ^{131}I décroît rapidement en délivrant une dose de radiation importante à la thyroïde dans un délai court

		Adulte		Enfant 1 à 2 ans	
DPUI inhalation		Coefficient de dose à la thyroïde			
$^{131}I_2$	Sv/Bq	3,90 E-07		3,20 E-06	
$^{131}ICH_3$	Sv/Bq	3,10 E-07	x 2,3	2,50 E-06	x 2,3
^{131}I aérosol 1 μm (F)	Sv/Bq	1,50 E-07	x 2,1	1,40 E-06	x 1,8

129I En raison de sa longue période radioactive, la dose de radiation induite par inhalation / ingestion de ^{129}I est faible car celui-ci est éliminé de l'organisme avant d'avoir pu décroître

		Adulte		Enfant 1 à 2 ans	
DPUI inhalation		Efficace (CIPR 119)	Thyroïde	Efficace (CIPR 119)	Thyroïde
$^{129}I_2$	Sv/Bq	9,60 E-08	3,90 E-07	1,60 E-07	3,20 E-06
$^{129}ICH_3$	Sv/Bq	7,40 E-08	3,10 E-07	1,30 E-07	2,50 E-06
^{129}I aérosol 1 μm (F)	Sv/Bq	3,70 E-08	1,50 E-07	7,20 E-08	1,40 E-06

Source: CIPR 60 et 119

☐ Comparaison inhalation / ingestion

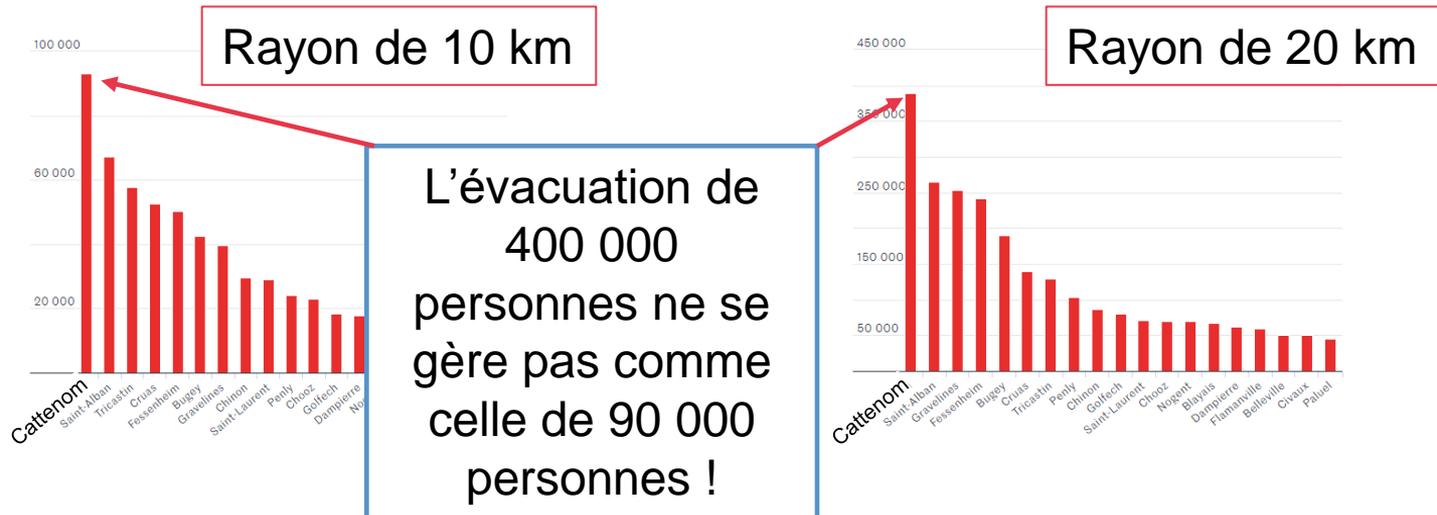
		Coefficients de dose Equivalente (Sv/Bq) à la thyroïde pour les membres du public					
¹³¹ I	Solubilité	0 - 1 an	1 an	5 ans	10 ans	15 ans	Adulte
Inhalation Aérosol 1 µm	F	1,4 E-06	1,4 E-06	7,3 E-07	3,7 E-07	2,2 E-07	1,5 E-07
	M	3,2 E-07	2,1 E-07	1,1 E-07	5,5 E-08	3,4 E-08	2,2 E-08
	S	2,3 E-08	1,2 E-08	5,9 E-09	3,0 E-09	1,7 E-09	1,1 E-09
Inhalation Gaz (I ₂)		3,3 E-06	3,2 E-06	1,9 E-06	9,5 E-07	6,2 E-07	3,9 E-07
Inhalation Gaz (ICH ₃)		2,6 E-06	2,5 E-06	1,5 E-06	7,4 E-07	4,8 E-07	3,1 E-07
Ingestion		3,7 E-06	3,6 E-06	2,1 E-06	1,0 E-06	4,3 E-07	4,3 E-07

Source: CIPR 68 et 72

➤ Conséquences de la non prise en compte de la répartition (spéciation) de l'iode = f(distance ou du temps)

■ Pour l'inhalation

- Erreur d'un facteur 2 en + ou en moins sur la dose par inhalation si on suppose tout l'iode sous une seule forme plutôt qu'une autre
- $\approx X2$ en + ou en - sur la distance par rapport à une situation équilibrée où chacune des formes = 1/3
- \Rightarrow Si X2 sur la distance alors X 4 à 5 sur la population à prendre en charge en cas de dépassement des seuils de dose



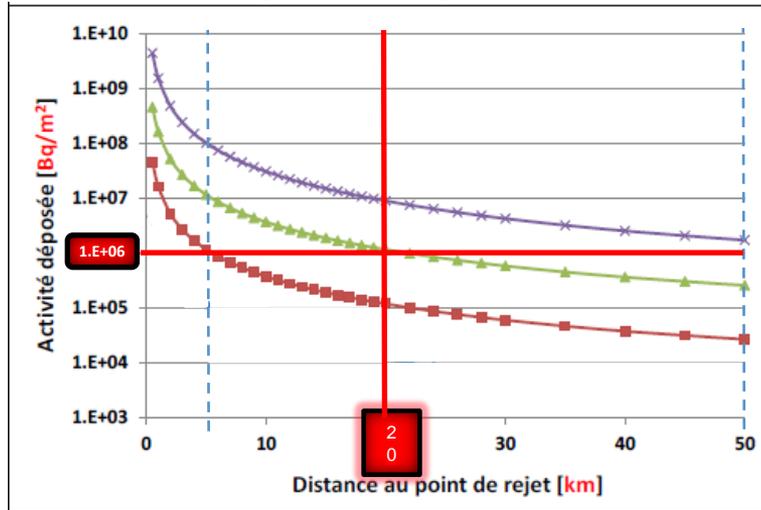
Pour l'ingestion

Chacune des espèces d'iode se dépose avec une vitesse (V_d) différente

CH_3I	→	→	$V_d = 0,0001 \text{ cm/s}$
Aérosol	→	→	$V_d = 0,001 \text{ cm/s}$
$\text{I}_2 \text{ } 1\mu\text{m}$	→	→	$V_d = 0,01 \text{ à } 0,5 \text{ cm/s}$
	→	→	$V_d = 0,1 \text{ à } 1 \text{ cm/s}$

Ces ordres de grandeur donnés à titre indicatif varient aussi avec les surfaces de dépôt

Rejet de 100 PBq d' ^{131}I (*)



Quelo D, Grégoire AC et al., 2017

La spéciation de l'iode a un très fort impact sur les dépôts : X 100 à X 1000 selon l'espèce pour une même distance

- si tout l'iode est sous forme I_2 (courbe violette):
→ le dépôt sera de 10 MBq/m² à 20 km et encore > 1 MBq/m² à 50 km
- si tout l'iode est sous forme aérosol (courbe verte):
→ le dépôt sera > 1 MBq/m² jusqu'à 20 km
- si l'iode est sous forme CH_3I (courbe rouge):
→ le dépôt sera > 1 MBq/m² jusqu'à 5 km et environ 0,1 MBq/m² à 20 km

* Ordre de grandeur du TS postulé pour un accident grave survenant sur un REP en France

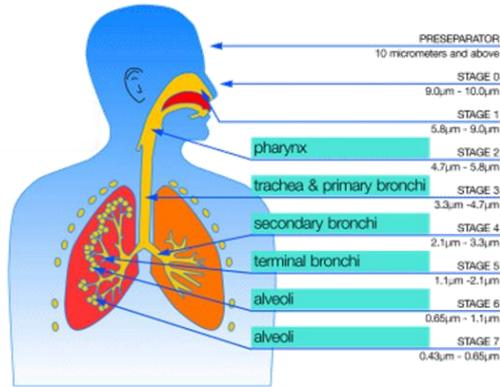
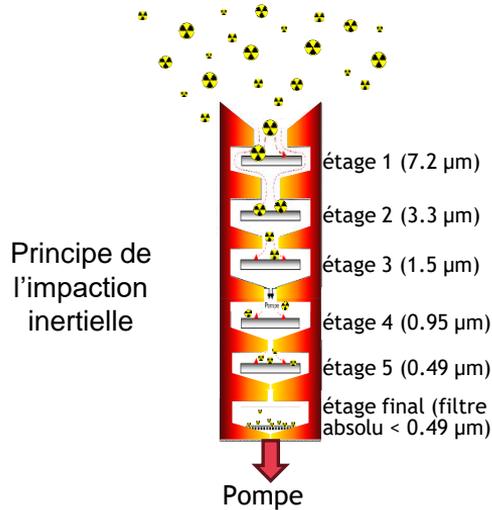
Mise à l'abri: dose efficace ≥ 10 mSv

Evacuation : dose efficace ≥ 50 mSv

Administration d'iode stable: dose équivalente à la thyroïde ≥ 50 mSv

Dispositifs de tri granulométrique et de collecte d'aérosols

Un (ou plusieurs) impacteur(s) « cascade » comportant plusieurs étages de tri granulométrique, chacun ayant à un diamètre de coupure différent + 1 filtre absolu



Tisch / Sierra

68 m³/h, 5 étages 0,49→7,2 μm
 35 m³/h, 6 étages 0,41→10,2 μm



Andersen

1,7 m³/h, 8 étages 0,3→15 μm

Berner

1,9 m³/h, 14 étages 0,03→8 μm

Type E-LPI

1,8 m³/h, 14 étages 0,006→10 μm
 (Impaction inertielle + charge et détection électrique des aérosols)

l
a
b
o
r
a
t
o
i
r
e

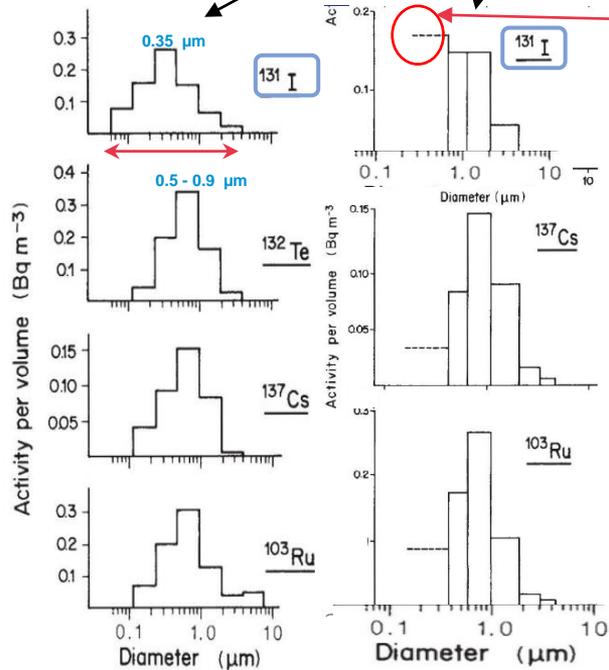


Etudes environnementales

- Impacteurs « haut débit » privilégiés → LD plus basses
- **MAIS** au détriment de la caractérisation des tailles nanométriques (cas de l'iode uniquement)

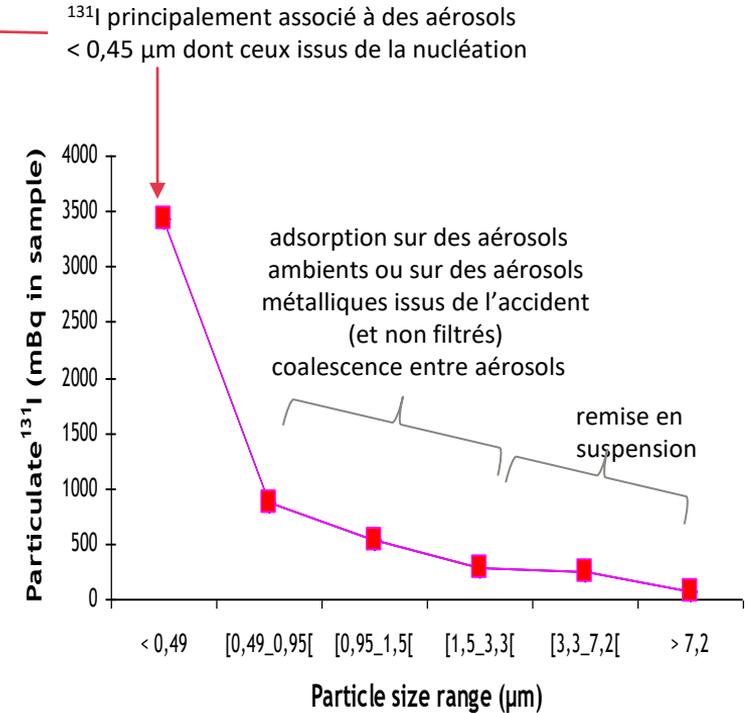
EXEMPLES DE DISTRIBUTIONS GRANULOMÉTRIQUES EN ^{131}I

Tchernobyl
(prélèvements à Zurich et Spiez, Suisse)



➤ Jost DT, et al., (1986) Nature, 324, 22-23

Fukushima
(prélèvements IRSN, Cadarache)



➤ Masson O, et al. (2013) Environ. Sci. Technol., 47, 10995-11003

RAPPELS

Même si l'essentiel de l'iode rejeté peut être sous forme gazeuse (excepté phases d'explosion) conversion partielle en aérosols pendant le transport de la masse d'air, par nucléation (→ nano-aérosols) ou adsorption sur des aérosols ambiants (→ micro-aérosols)

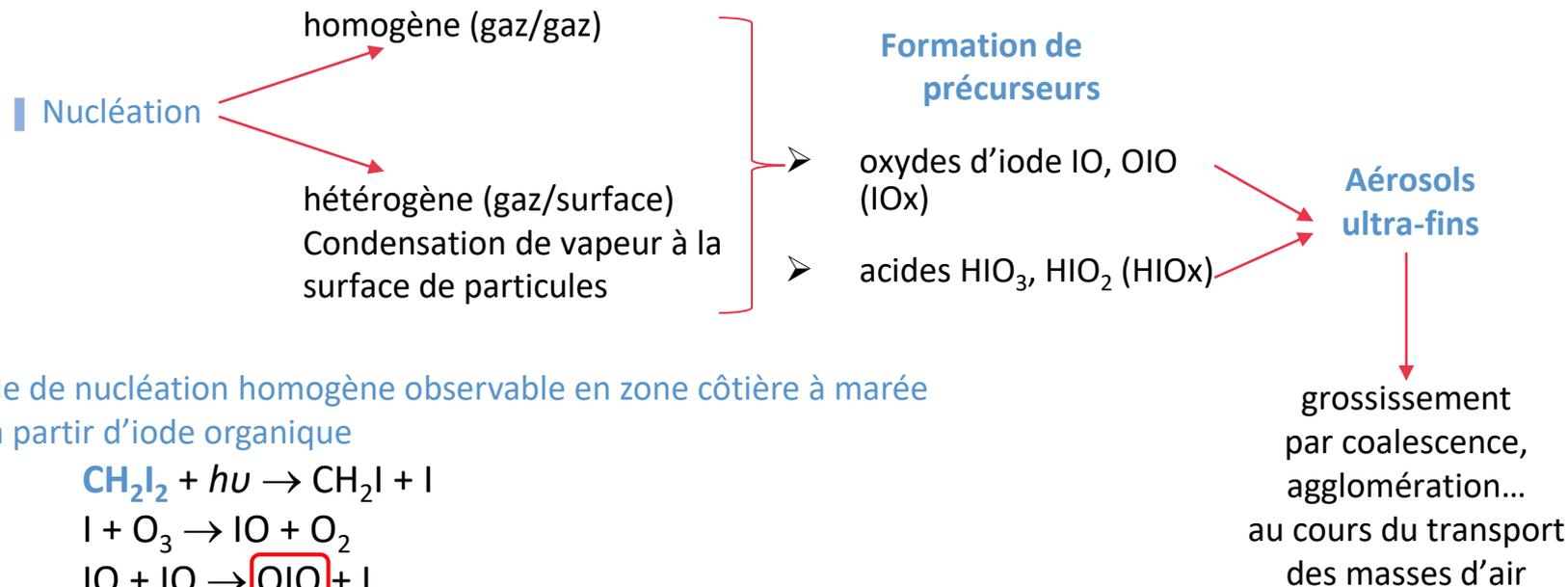
⇒ Conversion de 40 % d' ^{131}I gazeux en ^{131}I particulaire entre Japon et Europe

➤ Achim P, Monfort M, Le Petit G et al., (2014) Pure Appl. Geophys. 171, (3-5), 645–667

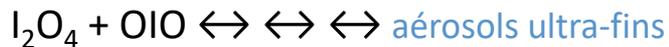
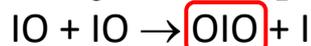
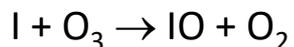
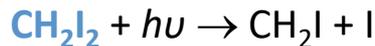
Distribution en taille → DAMA (Diamètre Aérodynamique Médian en Activité) et écart-type de distribution (hypothèse d'une distribution log-normale)

Lieu	Evènement	DAMA ^{131}I (μm)	Commentaires
Helsinki, Finlande	Tchernobyl	0,33; 0,36; 0,57	Impacteur basse pression
Aachen, Allemagne	Tchernobyl		

MÉCANISMES DE TRANSFERT DE L'IODE GAZEUX VERS L'IODE PARTICULAIRE



Exemple de nucléation homogène observable en zone côtière à marée basse à partir d'iode organique



Adsorption (autres interactions entre l'iode gazeux (I₂, CH₃I) et les aérosols) → **Aérosols de taille micrométrique**

CONCLUSIONS



- Démonstration de l'existence d'une fraction d'iode sous forme nanométrique issue des mécanismes de nucléation (conversion gaz → particule) et d'adsorption
- Une part significative voire l'essentiel de l'iode particulaire correspond à la fraction la plus fine des aérosols
- Diminution de la valeur du DAMA / autres RN moins volatils ou réfractaires
- Cette fraction n'est généralement pas accessible aux impacteurs « haut débit »
 - Biais instrumental quasi systématique dans les études avec impacteurs « haut-débit »
 - DAMA déterminés le plus souvent par extrapolation, i.e., en dehors du domaine accessible à ces appareils
 - La détermination du DAMA suppose une loi de distribution log-normale. Si distribution bi-modale nécessite la détermination de 2 DAMA



- Evaluation dosimétrique à corriger si le diamètre à considérer est $< 0,15 \mu\text{m}$

PERSPECTIVES



Développement d'un dispositif de tri + collecte à large spectre et haut débit (Brevet IRSN en cours)



Première utilisation prévue au 2^{ème} trimestre 2024 dans l'environnement de l'usine Orano de La Hague en complément des mesures d'iode gazeux organique et inorganique à l'aide des adsorbants (Cf. présentation d'hier de M. Chebbi)



Application possible aux descendants du radon et à d'autres composés volatils / semi-volatils

Remerciements

AC Grégoire

L. Bosland

L. Cantrel

P. Nerisson

M. Chebbi

C. Monsanglant

P. Laguionie

D. Hebert

O. Connan

D. Quélo

P. Paulat

J. Faramond

M. Terme



Credit: W. Perry Conway/Corbis