



IRSN
INSTITUT DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE



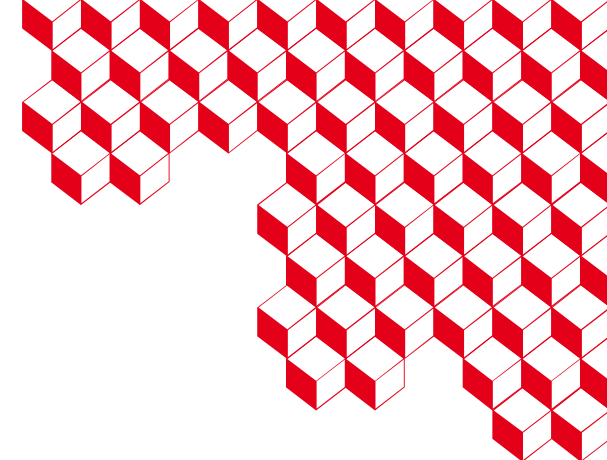
**RÉPUBLIQUE
FRANÇAISE**

*Liberté
Égalité
Fraternité*

MEMBRE DE

ETSON

LECEV
Laboratoire d'Équipementologie pour le Comptage
des Équipements et de la Ventilation



Du prélèvement à la mesure des iodes, une métrologie à géométrie variable

Céline Monsanglant-Louvet ⁽¹⁾, Yvan Losset ⁽²⁾, Audrey BACCHETTA ⁽³⁾, Véronique LABED ⁽⁴⁾
et les participants du sous-groupe IODE du GT31 de la CETAMA
L'équipe PERSEE

(1) Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), PSN-RES/SCA, F-91400, Saclay, France

(2) CEA/DAM/CVA, 21120 Is-sur-Tille, France

(3) EDF DIPNN, CNPE de Chinon, BP 23, 37420 Avoine, France

(4) CEA, DES, ISEC, DMRC, CETAMA Univ. Montpellier, Marcoule, France

Isotopes de l'iode :

38 isotopes de ^{108}I à ^{145}I
un seul isotope stable ^{127}I

Chimie

1 ppb $\text{I}_2 = 11,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$

1 ppb $\text{CH}_3\text{I} = 6,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$

Apports journaliers (OMS)
150 μg

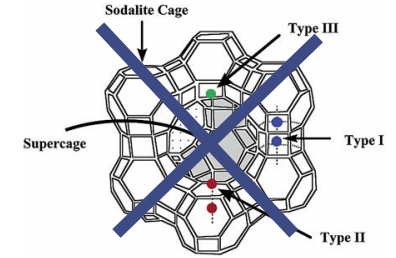
Radiochimie

1 ppb $^{131}\text{I}_2 = 52 \text{ GBq}/\text{m}^3$

1 ppb $\text{CH}_3^{131}\text{I} = 26 \text{ GBq}/\text{m}^3$

1 $\text{Bq}/\text{m}^3 \text{ }^{131}\text{I}_2 = 1,9 \times 10^{-11} \text{ ppb}$

1 $\text{Bq}/\text{m}^3 \text{ CH}_3^{131}\text{I} = 3,9 \times 10^{-11} \text{ ppb}$



Le GT 31 de la CETAMA

Analyse des radionucléides dans l'environnement

Sous-groupe « Mesures de l'iode pour la surveillance de l'environnement »

Démarrage du sous-groupe en 2019

Suite à la diffusion du guide sur le mesurage des aérosols dans les filtres [1]

→ Préparation d'un guide sur la mesure de l'iode en installation et dans l'environnement

→ Lancement d'une enquête auprès des laboratoires d'analyses et de surveillance

→ Présentations des pratiques de chacun lors des réunions de sous-groupe



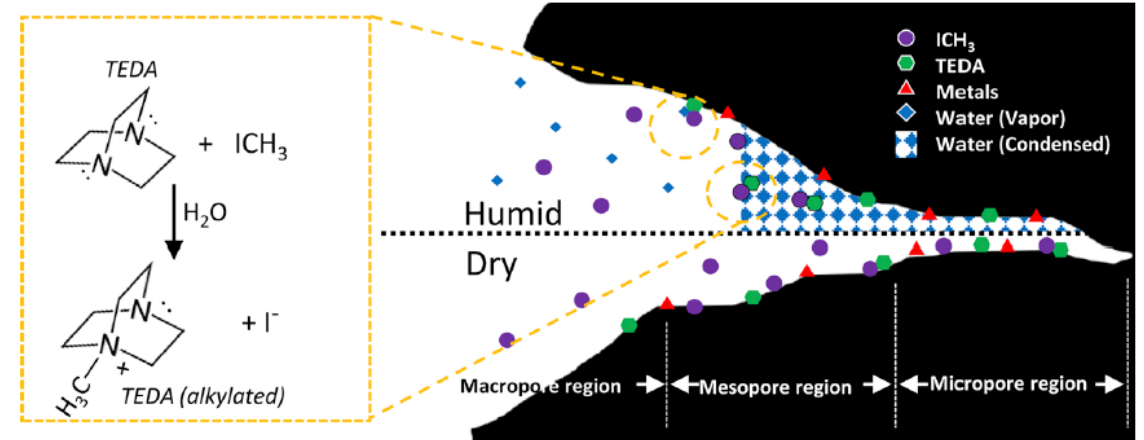
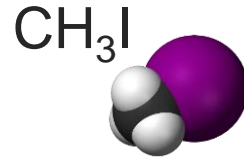
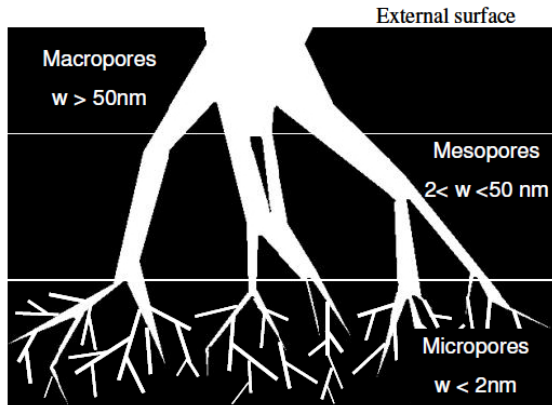
IRSN
INSTITUT DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE





1 ■ Le piégeage de l'iode

3 mécanismes de rétention pour CH₃¹³¹⁺¹²⁷I

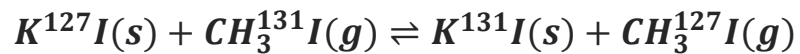


1. Physisorption¹

- Mécanisme dépendant de l'accessibilité des micropores
- CH₃I : diamètre cinétique 0,5-0,6 nm

3. Echange isotopique avec KI³

- Peu d'études sur le mécanisme d'échange isotopique

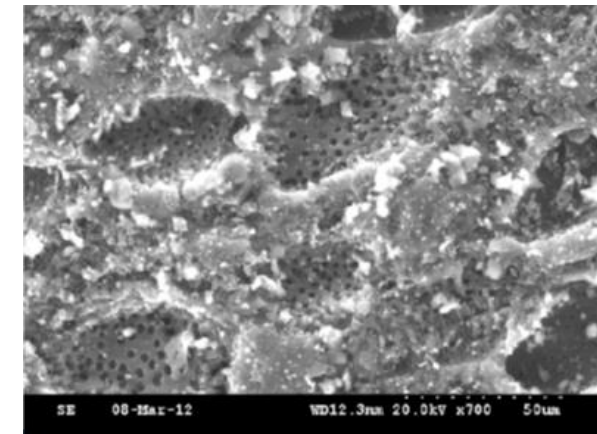


2. Chimisorption de C₆H₁₂N₂ (TEDA)²

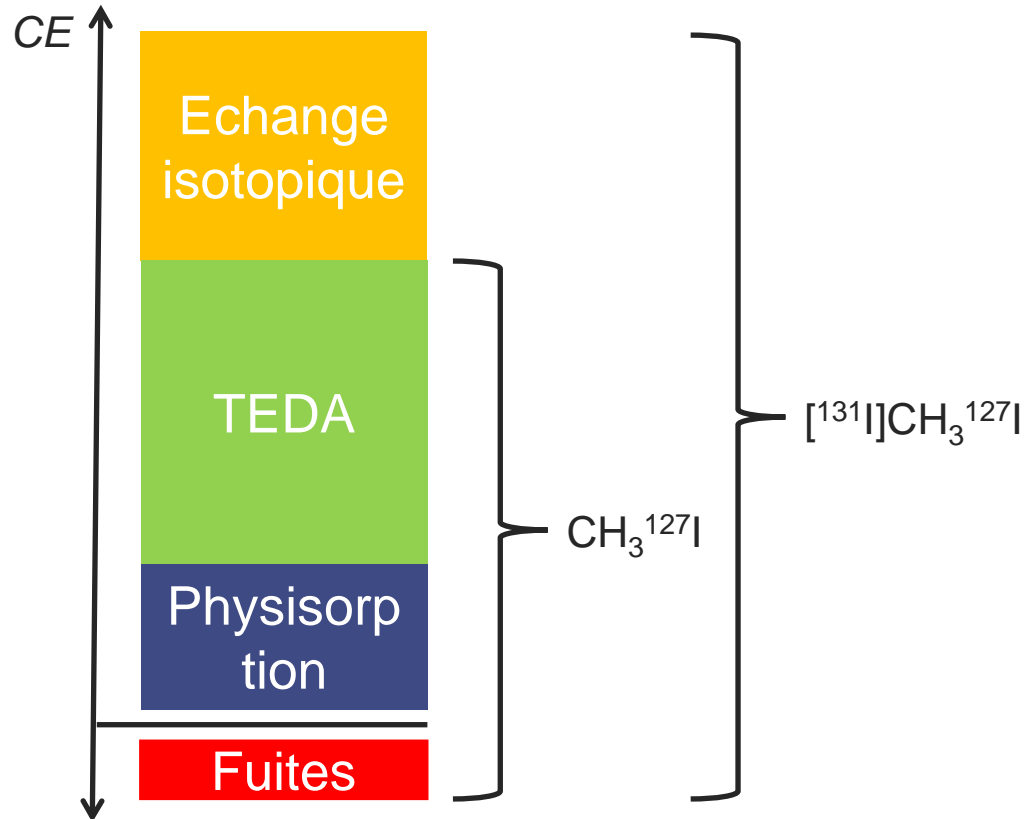
- Beaucoup d'études expérimentales (statique, dynamique) et simulation
- Réaction dépendante de l'humidité relative

Surfaces spécifiques : 900 - 1200 m²/g

Contribution forte de la microporosité (> 90%)



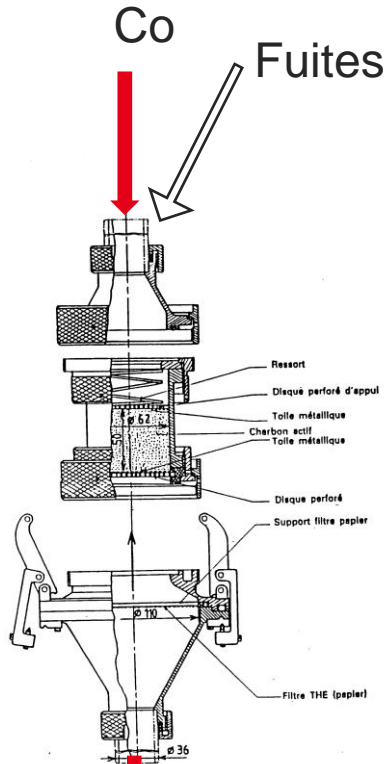
Mécanismes de rétention de l'iode dans les charbons actifs classiques



Les principaux paramètres influençant le piégeage de l'iode sur les charbons actifs

- Les paramètres liés aux caractéristiques de l'adsorbant :
 - Base
 - Imprégnation
 - Granulométrie
 - Surface spécifique
 - Taille des pores
 - Conditionnement
- Les paramètres liés aux caractéristiques de l'iode gazeux à piéger :
 - Formes chimiques (I_2 ou ICH_3)
 - Concentration volumique dans l'effluent
 - Concentration massique sur le piège (dimensionnement du piège)
- Les paramètres liés aux caractéristiques de l'effluent :
 - Température
 - Humidité relative
 - Temps de séjour (lié à la vitesse de passage et à l'épaisseur)
 - Composition
- Les paramètres de vieillissement :
 - Vieillessement statique
 - Vieillessement dynamique
 - Fréquence de renouvellement

Rendement de prélèvement



Colmatage, temps de prélèvement, temps de séjour,

Coefficient d'épuration Facteur de décontamination "Efficacité" Decontamination factor	Perméance Penetration	Rétention Removal efficiency Retention "Efficiency"
CE	$P = 100/CE$	$\eta = 100 - P = 100(1 - 1/CE)$
100 000	0,001 %	99,999 %
10 000	0,01 %	99,99 %
1 000	0,1 %	99,9 %
100	1 %	99 %
10	10 %	90 %
1	100 %	0 %

$$CE = Co/C$$

$$\eta(\%) = 100 \times \left(1 - \frac{1}{CE}\right)$$

Débitmètre

Température, pression, étalonnage ?

Pompe de prélèvement $\implies \Delta P ?$

Courbe de percée

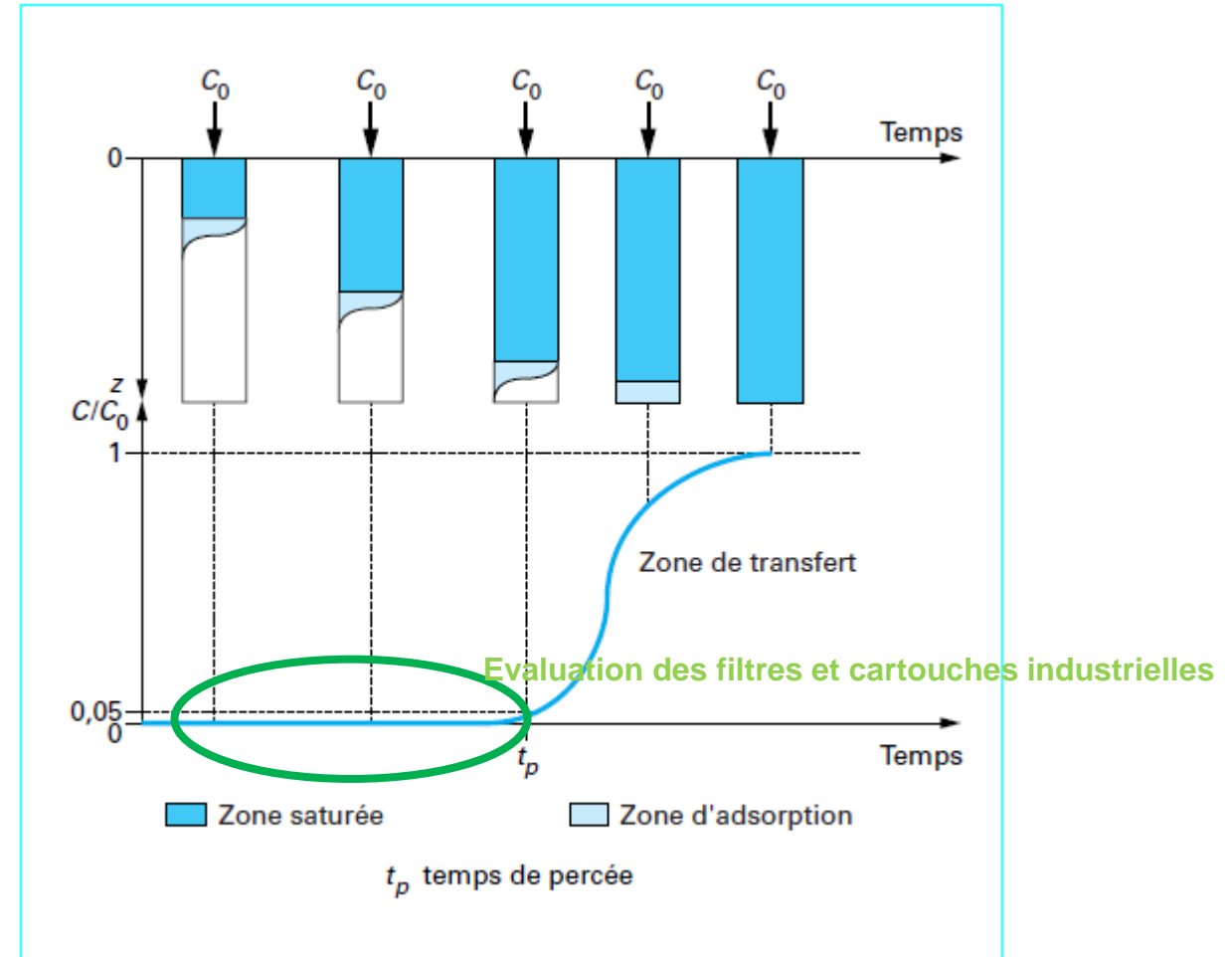
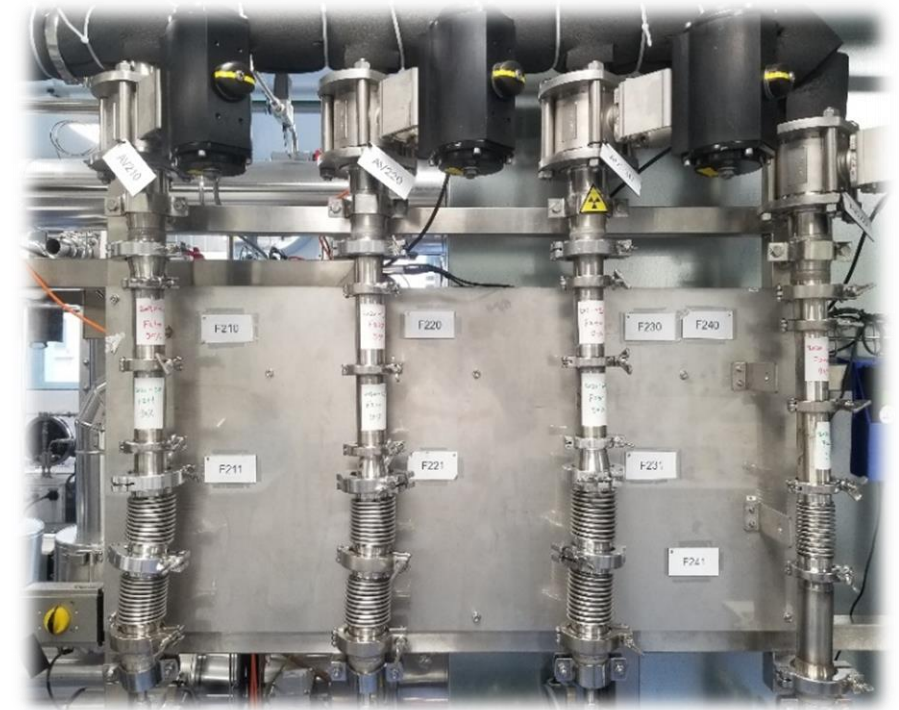
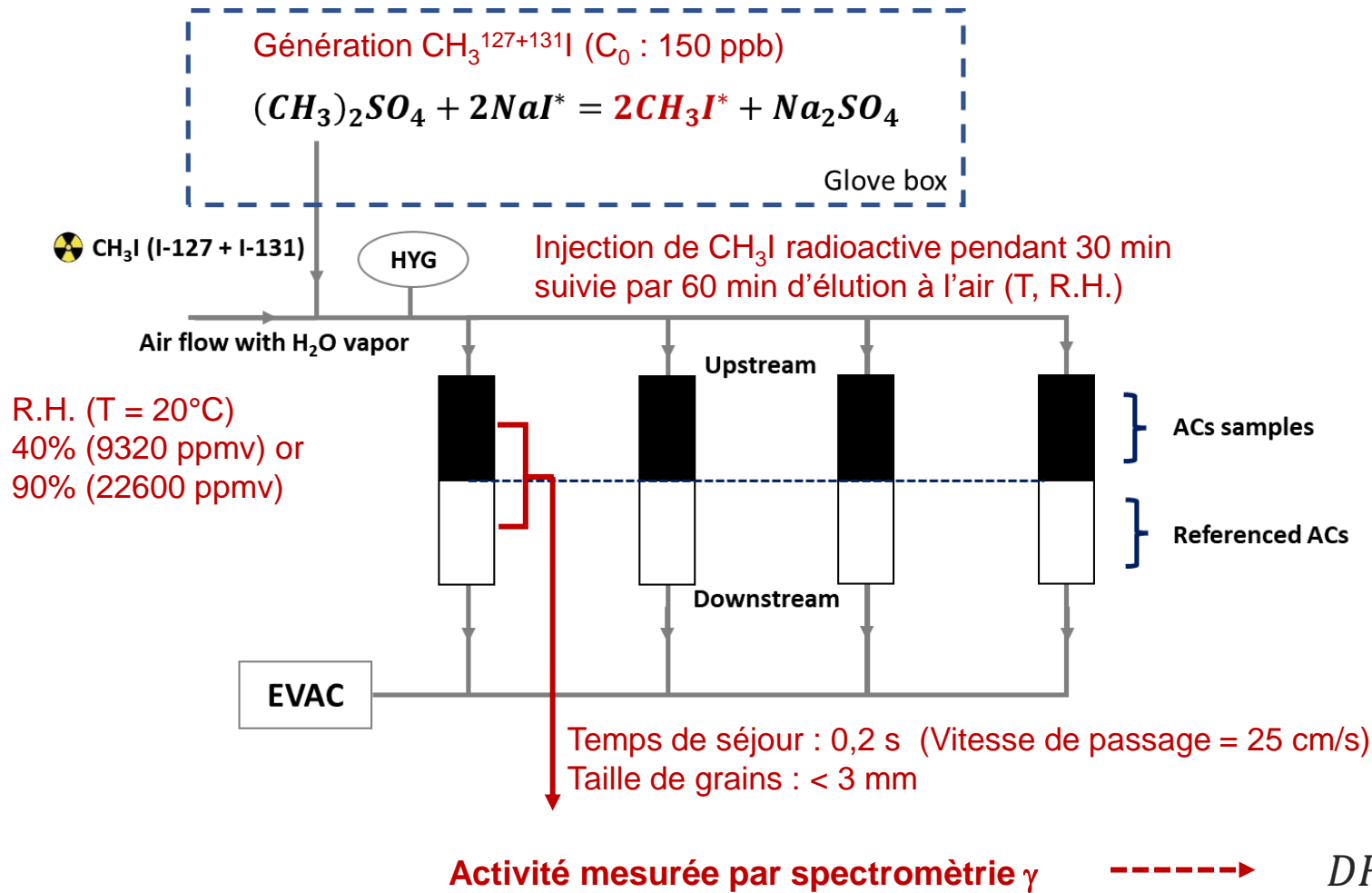


Figure 4 - Courbe de percée et principe de la saturation d'un filtre

Adsorption en traitement de l'air. Techniques de l'Ingénieur G 1 770-1

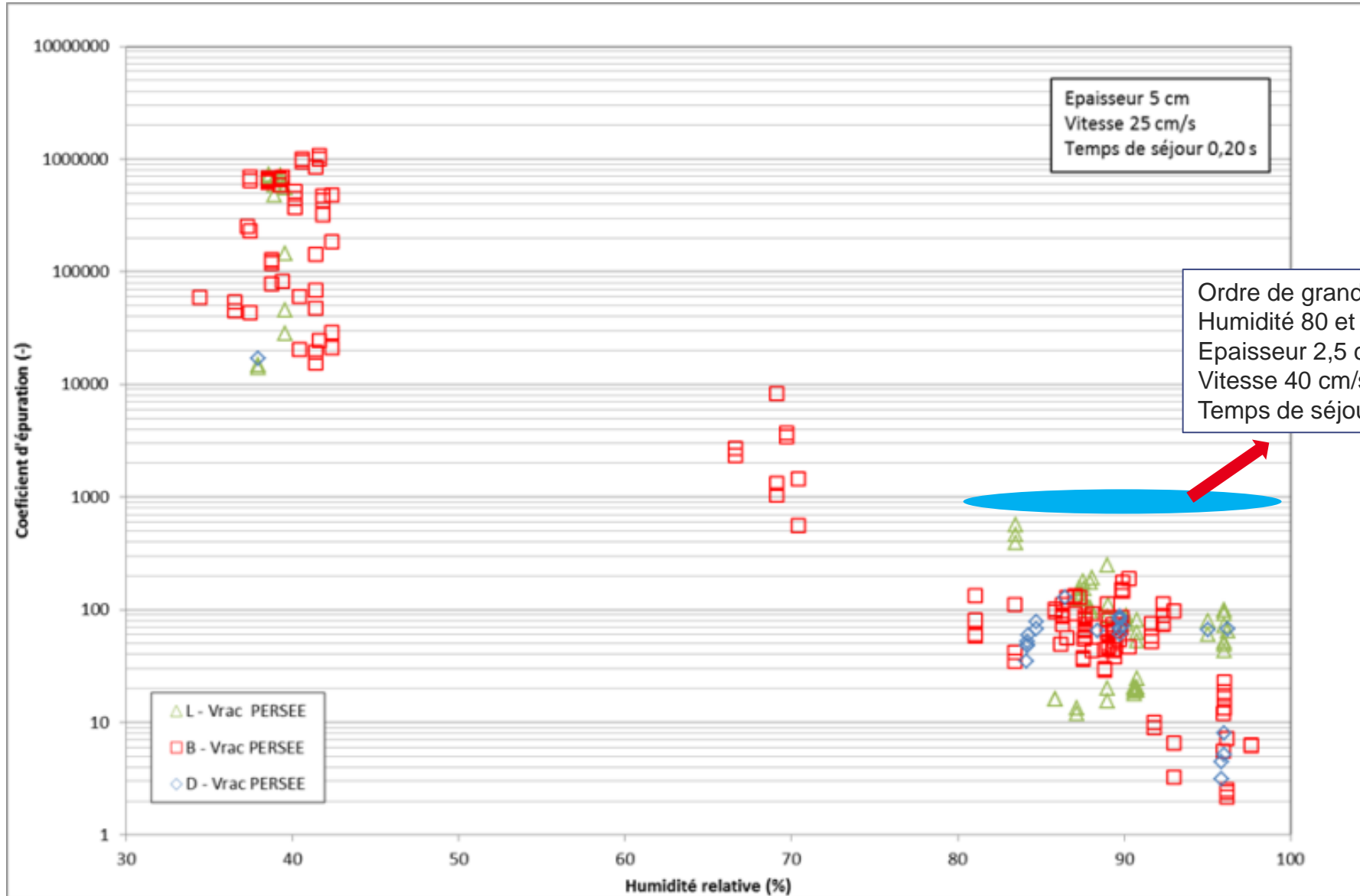
Mesure de coefficient d'épuration de $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ – Installation PERSEE de l'IRSN

Plateforme Expérimentale de Recherches Sur l'Épuration des Effluents radioactifs – LECEV – Resp exploitation : Mouheb Chebbi

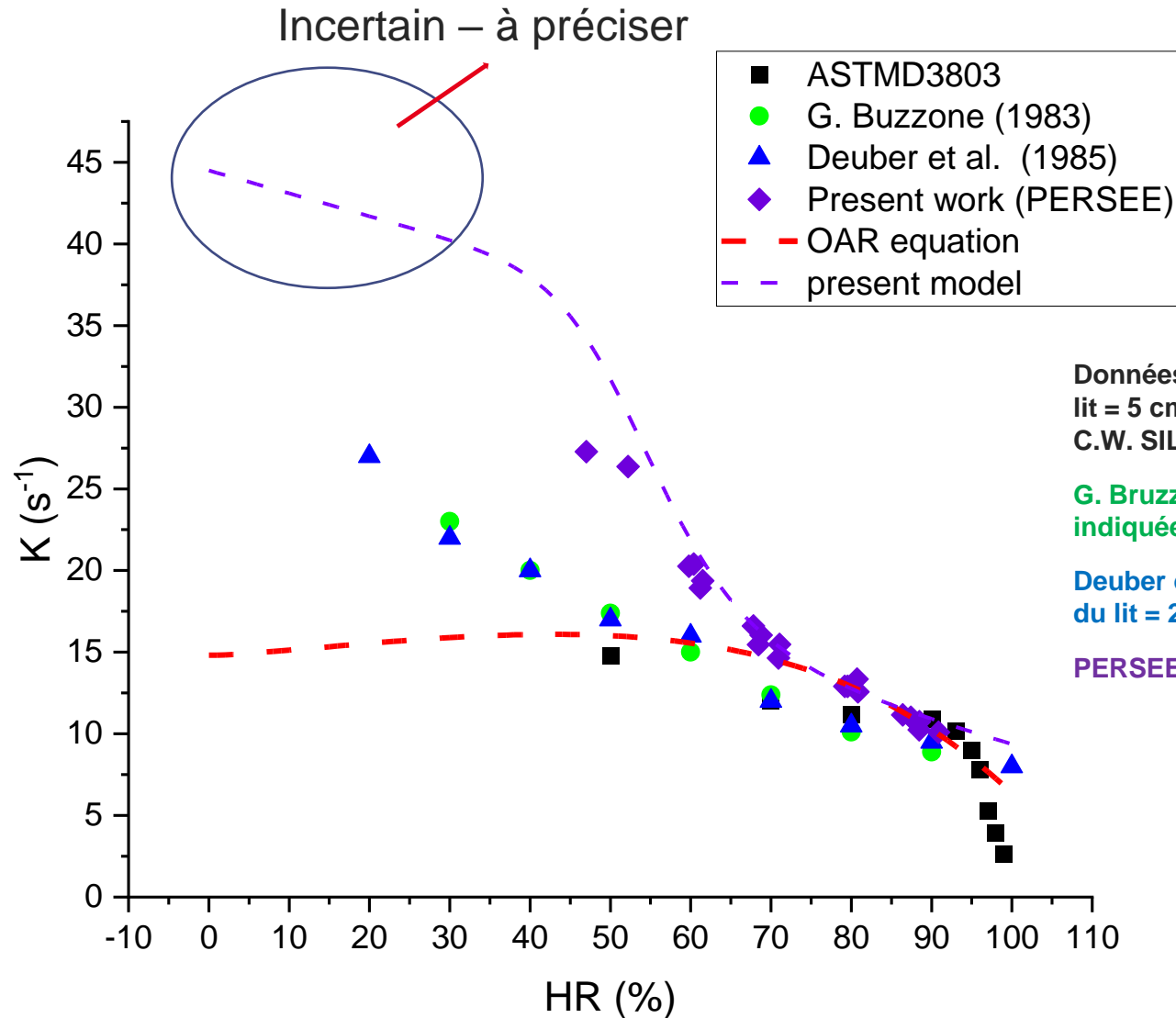


$$DF = \frac{C_{upstream}}{C_{downstream}} = \frac{A_{upstream} + A_{downstream}}{A_{downstream}}$$

Exemple de résultats : CE en fonction de HR



Exemple de résultats : CE en fonction de HR



Données publiées par la norme ASTM-D 3809 (T= 30°C, t_s = 0.25 s, épaisseur du lit = 5 cm, HR variable de 50 à 95%) charbon de type 2N, C.D SCARPELLINO & C.W. SILL (1986)

G. Bruzzzone (1983) : t_s = 0.2 s, épaisseur du lit = 5 cm, température non indiquée, HR de 30 et à 90%

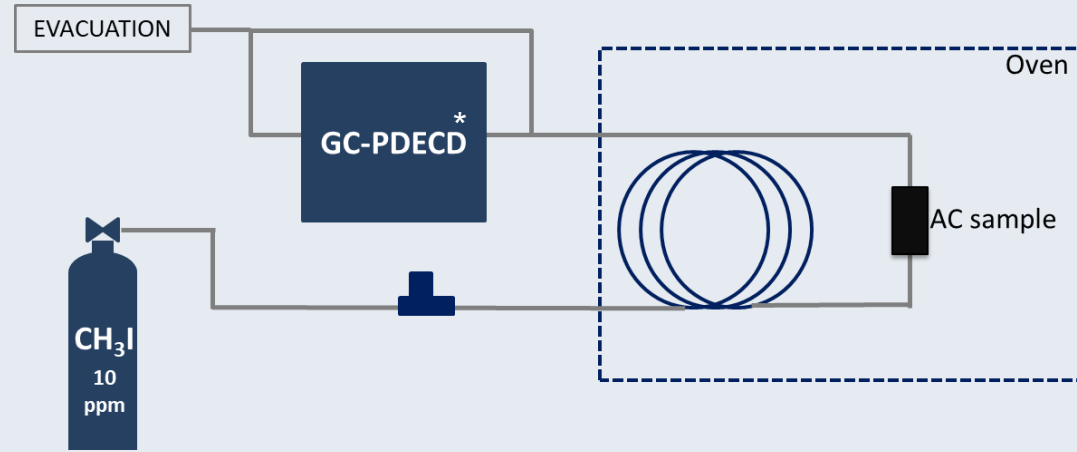
Deuber et al. (1985) : tests sur un charbon dopé au KI, v = 50 cm/s, épaisseur du lit = 2.5 cm, T = 30°C, HR de 20 à 99%

PERSEE : charbon nucléaire

Mesures de courbes de percée pour $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ et $\text{CH}_3^{127}\text{I}$



Configuration 1

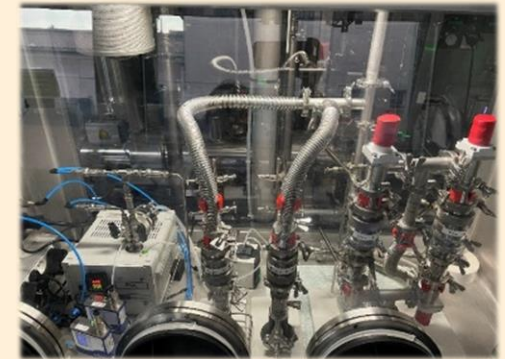
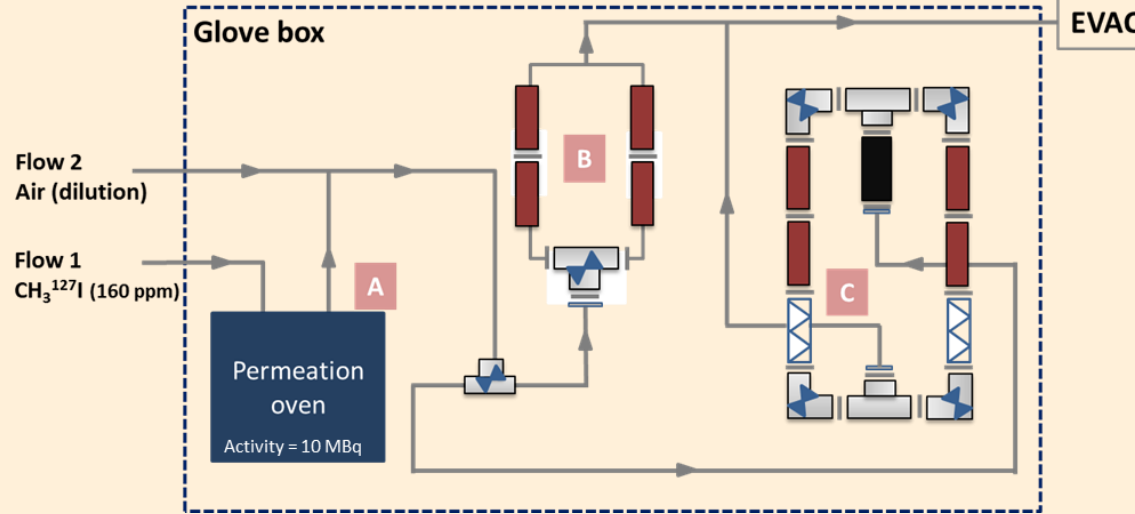
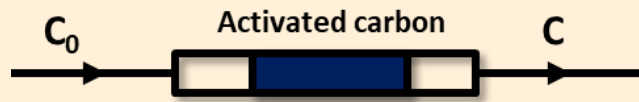
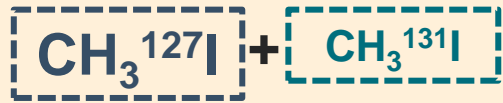


GC-PDECD: Gas chromatography coupled to a pulsed discharge electron capture detector

2 configurations - mêmes conditions d'essais

- T = 20 – 30 °C
- R.H. = 0%
- Grain size: 1 – 1.4 mm
- C₀ = 10 ppm
- CH₃¹³¹I flow rate = 150 Bq/min
- Residence time = 0.2 s
- Linear velocity = 25 cm/s

Configuration 2



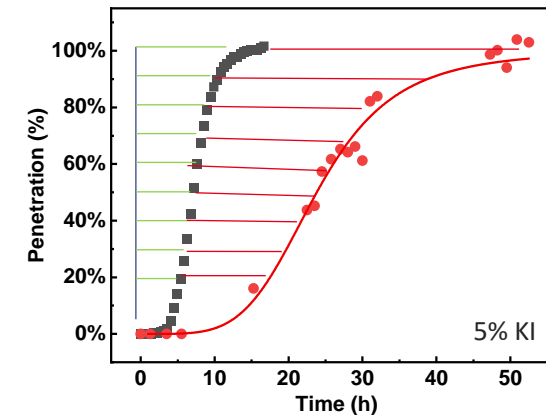
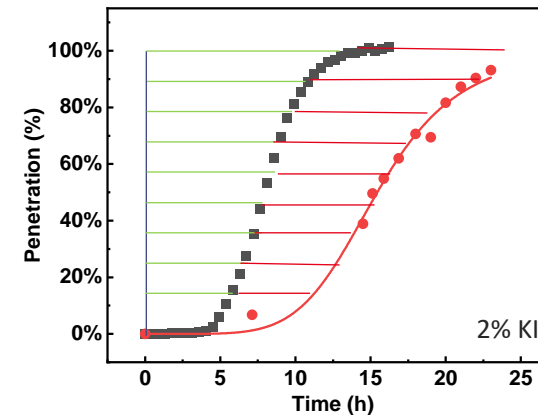
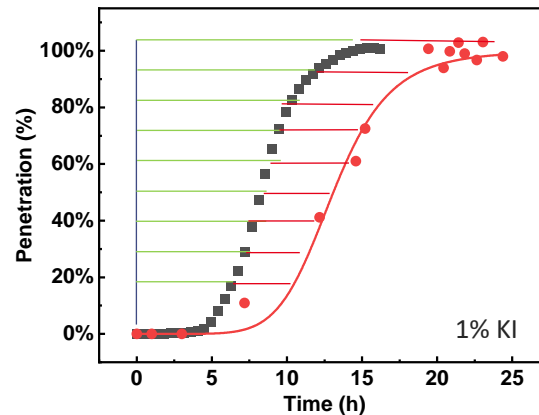
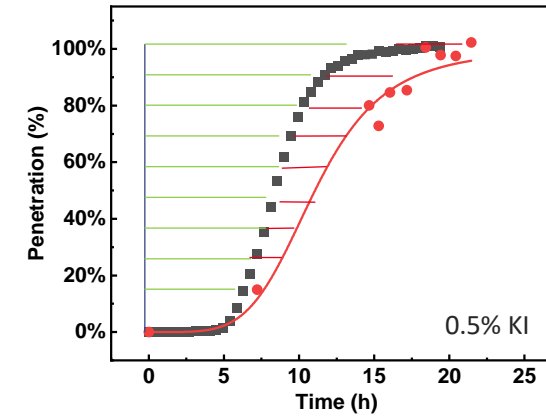
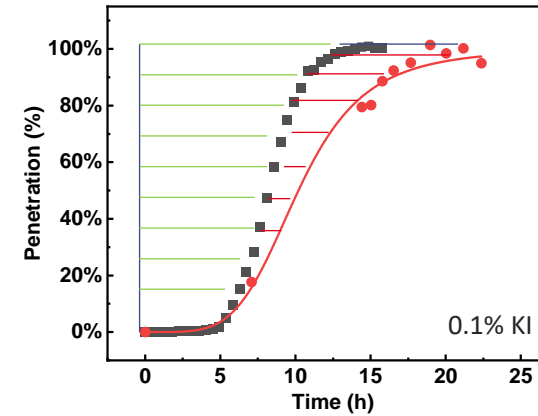
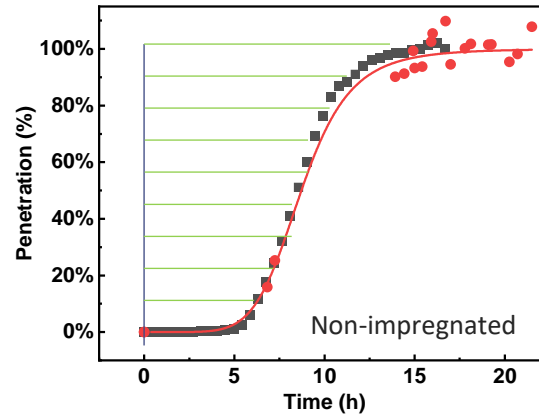
IRSN/SCA/LECLV - CETAMA-GT51 - JUIN 2022



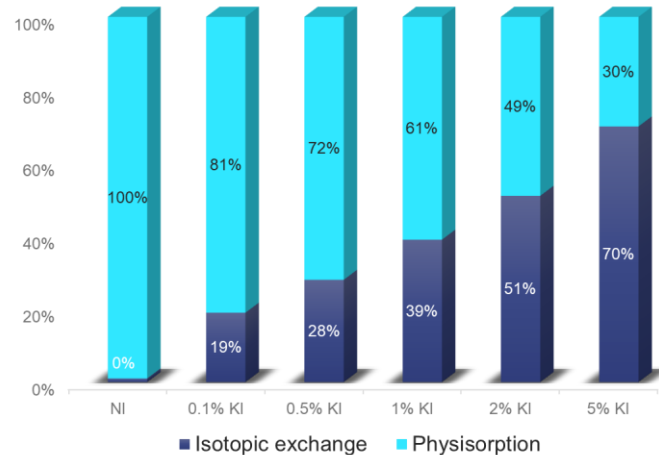
Exemple de résultats : Courbes de percée comparées pour $\text{CH}_3^{127}\text{I}$ et $\text{CH}_3^{127+131}\text{I}$

- Augmentation significative dans la phase de percée du à l'échange isotopique avec KI
 → **En accord avec les mesures de CE à RH = 40%**
- Même performance pour les charbons imprégnés TEDA et les non imprégnés
 → **Augmentation de la performance de AC seulement due à l'imprégnation KI**

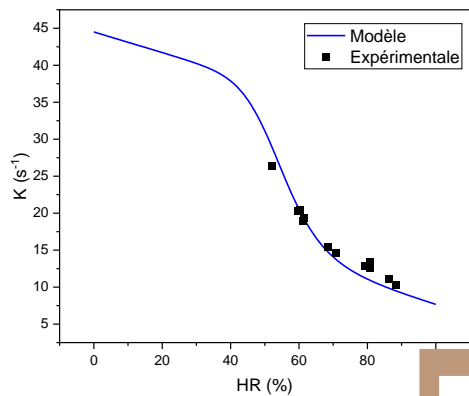
Red: $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ Black: $\text{CH}_3^{127}\text{I}$



Contribution relative à saturation

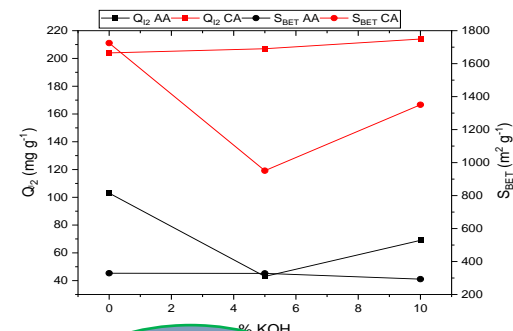
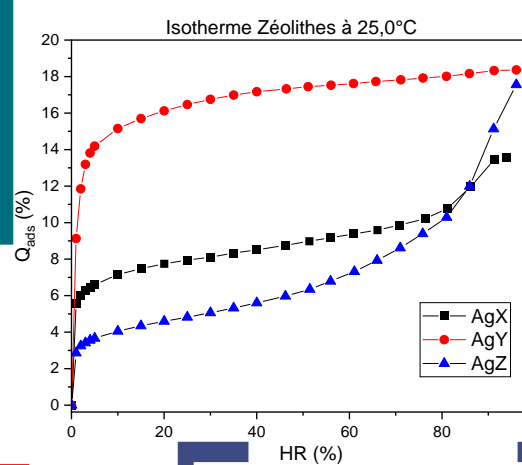


($C_0 = 10$ ppmv, $T = 20 - 30$ °C, bed height = 5 cm, $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ flowrate around $150 \text{ Bq}\cdot\text{min}^{-1}$, linear velocity = $25 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$, residence time = 0.2 s)



CE EN FONCTION HR ET TEMPÉRATURE

ZÉOLITHES, CHARBONS, MATÉRIAUX INNOVANTS

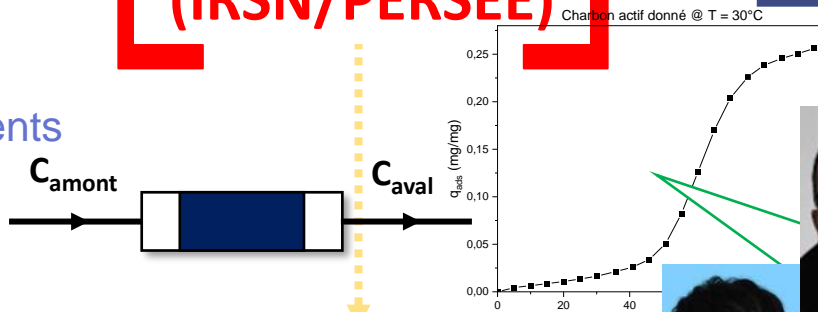
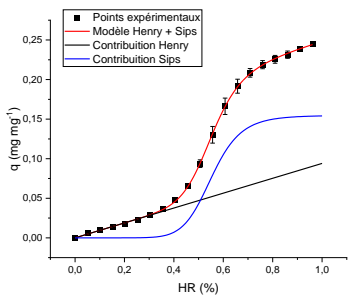


COMPRÉHENSION DU MÉCANISME ECHANGE ISOTOPIQUE ET DES PARAMÈTRES INFLUANTS

PROGRAMME IODE (IRSN/PERSEE)

SPECIOSA (CHOIX D'UN ADSORBANT SPÉCIFIQUE - GAZ RARES)

Et le Rn?
→ Dépôt d'un projet ANR (FRAME)

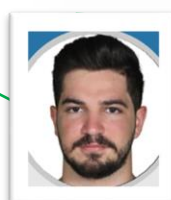
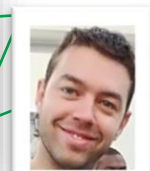


CA 5% KI 1,0 nL/min 30,0°C 40% HR



SIMULATION DES COURBES DE PERCÉE

Thèse d'Hantao Lin (2022), Thèse de Karim Abbas (en cours → 2025)
2 Thèses proposées (2024-2027)
1 post-doctorat (2024-2025)
Stage de Felipe, Cécile, Djeneba, Ulrich



- Prédiction des courbes de percée pour différents matériaux poreux à partir des isothermes/cinétiques d'adsorption
 - Mesures des isothermes d'adsorption et modélisations
 - Modélisation des cinétiques d'adsorption
 - Utilisation d'un logiciel commercial/écriture d'un code pour la simulation
 - Comparaison entre les courbes expérimentales et théoriques
 - Dans un premier temps pour H₂O



2 ■ La mesure par spectrométrie gamma

Tableau périodique des éléments chimiques

Numéro atomique → 8 ← Masse atomique
 ← Symbole de l'élément
 ← Nom

Oxygène

Alcalins Alcalino-terreux Lanthanides Actinides Métaux de transition Métaux pauvres

53 126.904

I

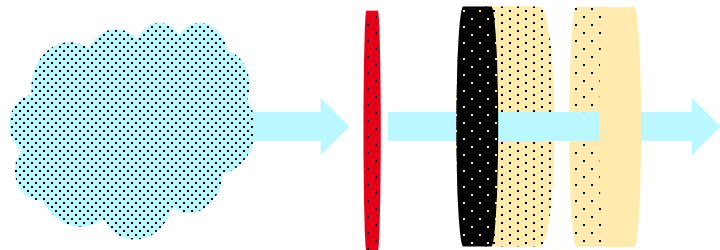
Iode

- 38 isotopes ^{108}I à ^{145}I et un seul stable ^{127}I
- ^{123}I : (T = 13,2 heures) - (γ 159 keV)
- ^{124}I : (T = 4,18 jours) - (γ 602 keV)
- ^{125}I : (T = 59,4 jours) (X 27keV, γ 35 keV)
- ^{129}I : (T = 15,7 10^6 ans) - (X 29keV, γ 39 keV)
- ^{131}I : (T = 8,04 jours) - (γ 364 keV)
- ^{132}I : (T = 2,3 heures) - (γ 667 keV, 772 keV)
- ^{133}I : (T = 20,8 heures) - (γ 530 keV)
- ^{134}I : (T = 52,6 min) - (γ 847 keV, 884 keV)
- ^{135}I : (T = 6,61 heures) - (γ 1260 keV)



NF M60-759 (1997) _ Mesure des iodes
ISO EN 20042 (2019) _ Mesure par spectrométrie gamma

Surveillance environnementale et des installations
Spéciation aérosols / gaz



Aérosols – I_2 + ICH_3

I_2 sous forme d'oxydes

I_2 + aérosols naturels (poussières minérales,...) -> iodes particulières par adsorption





La cartouche

Caractéristiques de la boîte

Diamètre extérieur 57 mm

Diamètre intérieur 53 mm

Epaisseur de la coque 2 mm et 3,2 mm

Matériaux de la boîte : polycarbonate

$d=1,2$ ($-C_{12}H_{14}O_3-$)



COMPOSANTS NUCLEAIRES		50 482 E										
SPECIFICATION D'APPROVISIONNEMENT		PAGE 1/1										
N° MGP	DESIGNATION	FOURNISSEUR	REF. FOURNISSEUR									
50.482	Charbon à usage nucléaire	PICA 46 Rue TREZEL 92300 LEVALLOIS Tél: 739.60.40	RI 305									
DESIGNATION: Charbon de noix de coco imprégné pour le piégeage de l'iode et des iodures organiques radioactifs d'un mélange air-vapeur humide à température élevée dans les filtres de protection nucléaire.												
<table border="1"> <tr> <td>T1 pour obs</td> <td>T1 Valable pour la Révision</td> <td>T1 Conforme à la Exécution 5.9.83</td> <td>T2</td> </tr> </table>				T1 pour obs	T1 Valable pour la Révision	T1 Conforme à la Exécution 5.9.83	T2					
T1 pour obs	T1 Valable pour la Révision	T1 Conforme à la Exécution 5.9.83	T2									
CARACTERISTIQUES	SPECIFICATIONS	Référence des Méthodes de contrôle										
Densité apparente : g/ml	0.48 - 0.55	SLII.1 du 02.1976										
Teneur en humidité : %	5 Maxi	SLI. du 02.1976										
Teneur en cendres : %	7 Maxi	SLIV.2 du 05.1976										
Pouvoir absorbant au tétrachlorure de carbone : %	55 Mini	SLIX. du 05.1976										
Granulation Appareil Prolabo	%	SLIII.1 du 02.1976										
Durée du tamisage 5 minutes												
Refustamis 30 mesh ASTM	5% maxi.											
Fraction 30 x 40 mesh	40-75 %											
Fraction 40 x 50 mesh	15-50 %											
Passé tamis 50 mesh ASTM	5% maxi.											
PH	8 / 11	SLV 02.1976										
Taux de TED incorporé en phase imprégnation	1/10 mini - 2.5/10 maxi											
<p>Nota: Exigence Assurance Qualité M.G.P. : Avec chaque lot le fournisseur remettra un certificat d'analyse certifiant que le charbon livré est conforme à la présente spécification.</p>												
Indice	NOM	DESIGNATION DE LA MODIFICATION	Indice	NOM	DESIGNATION DE LA MODIFICATION	Indice	NOM	DESIGNATION DE LA MODIFICATION	Indice	NOM	DESIGNATION DE LA MODIFICATION	
A	P. FAVIER	Edition originale	C	Revisé au Titre 2 le 05.09.83	1	P. FAVIER	Revisé au Titre 2 le 05.09.83	1	P. FAVIER	Revisé au Titre 2 le 05.09.83	1	
B	P. FAVIER	Revisé le 15.11.82	D	Evolution des paramètres granulométriques et 51	2	P. FAVIER	Revisé le 15.11.82	D	Evolution des paramètres granulométriques et 51	2	P. FAVIER	Revisé le 15.11.82
C	P. FAVIER	Revisé le 15.11.82	E	Evolution des paramètres granulométriques et 51	3	P. FAVIER	Revisé le 15.11.82	E	Evolution des paramètres granulométriques et 51	3	P. FAVIER	Revisé le 15.11.82

Caractéristiques du support

Charbon de noix de Coco

$0,48 < d < 0,55$

%max humidité 5% (dans le sachet)

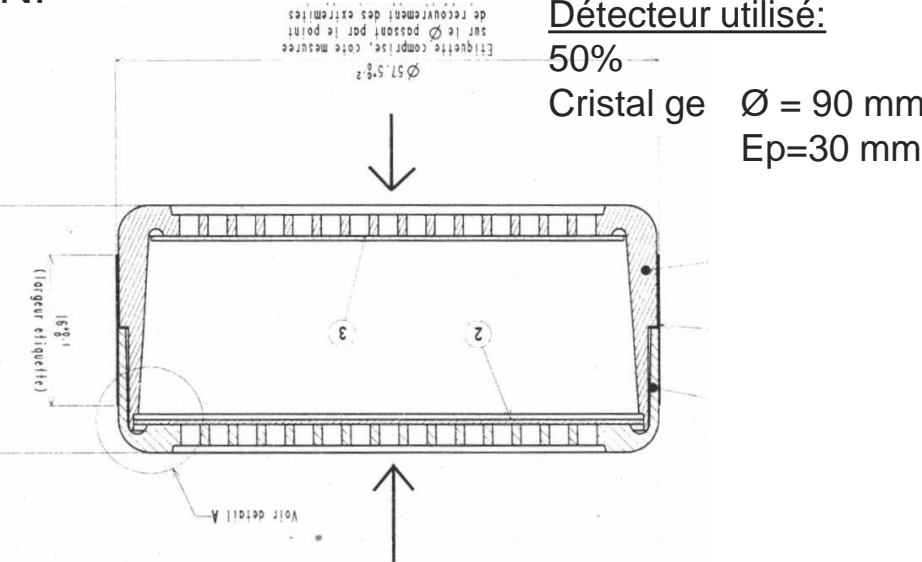
1% à 2,5% KI (iodure de potassium)

1% < TEDA < 2,5% (trié-thyldiamine $C_6H_{12}N_2$)

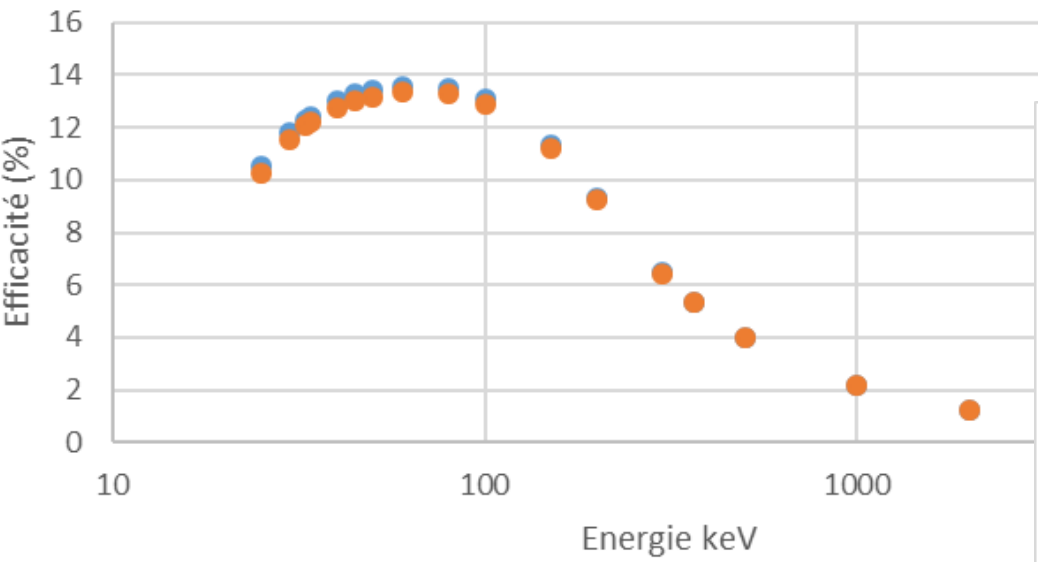


Les résultats obtenus sont issus de calculs MCNP

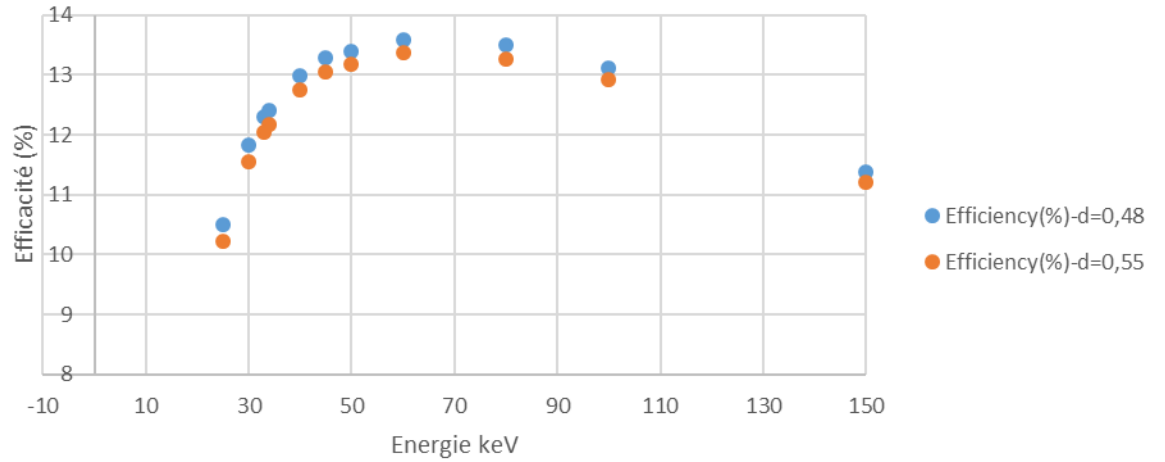
Hypothèse: on suppose que la cartouche est uniforme.
 Paramètre étudié: densité du charbon



Efficacité en fonction de la densité



Efficacité en fonction de la densité

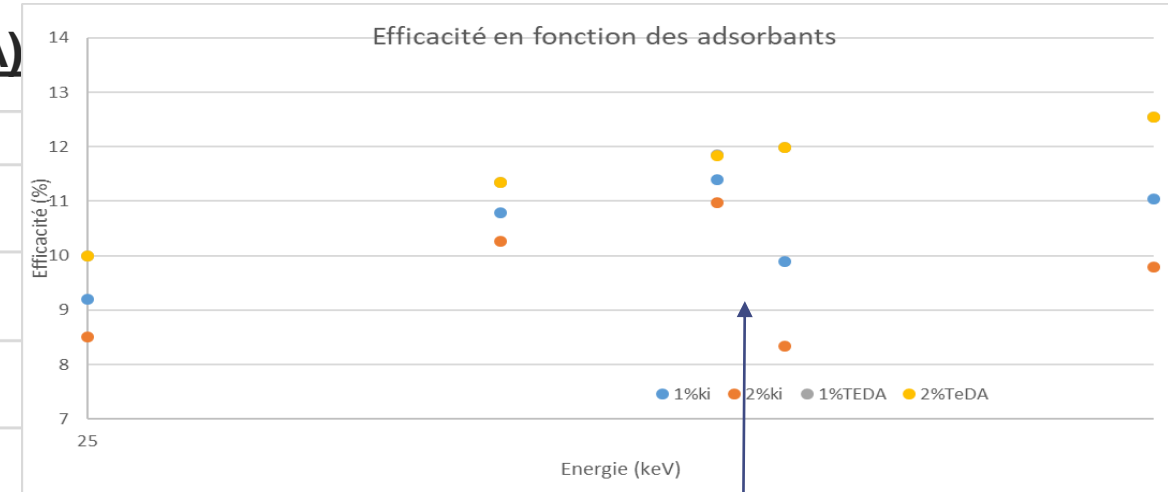
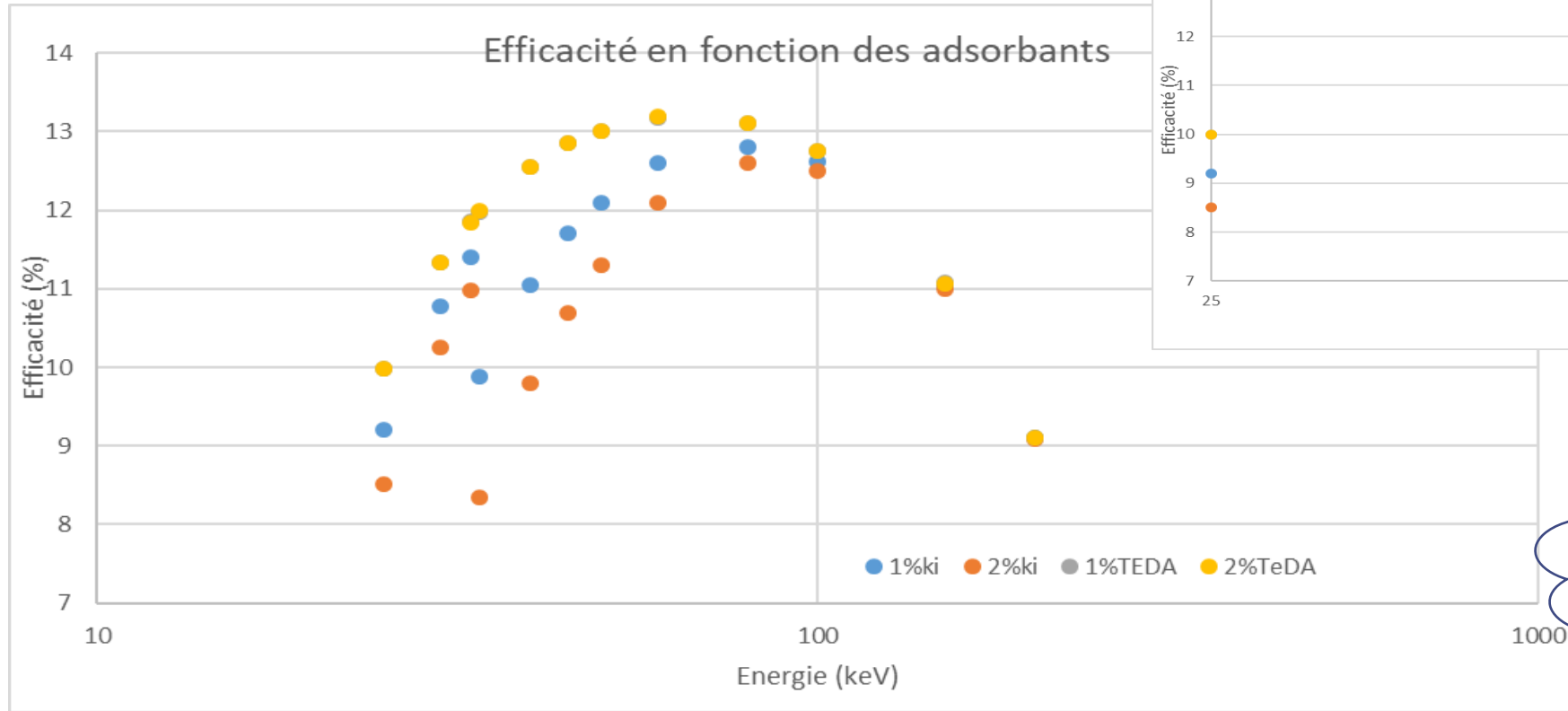


- 3% dans les basses énergies
- Pas d'impact au-delà de 150 keV
- ¹²⁵I et ¹²⁹I

Hypothèse:

- la cartouche est uniforme.
- $d = 0,55 \text{ g/cm}^3$

Paramètres étudiés : **phases imprégnations (KI et TEDA)**



Limite X - γ
pic absorption photoélectrique
Interférence avec énergie liaisons

- TEDA - Pas d'influence
- KI – Influence sur la forme de la courbe
- KI – Influence sur l'efficacité en fonction de la quantité

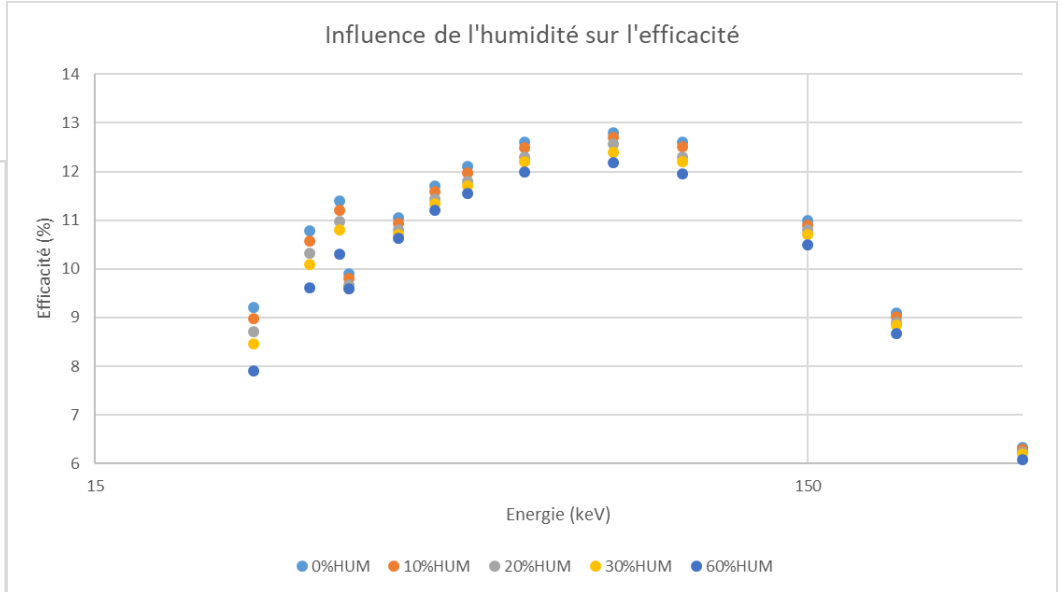
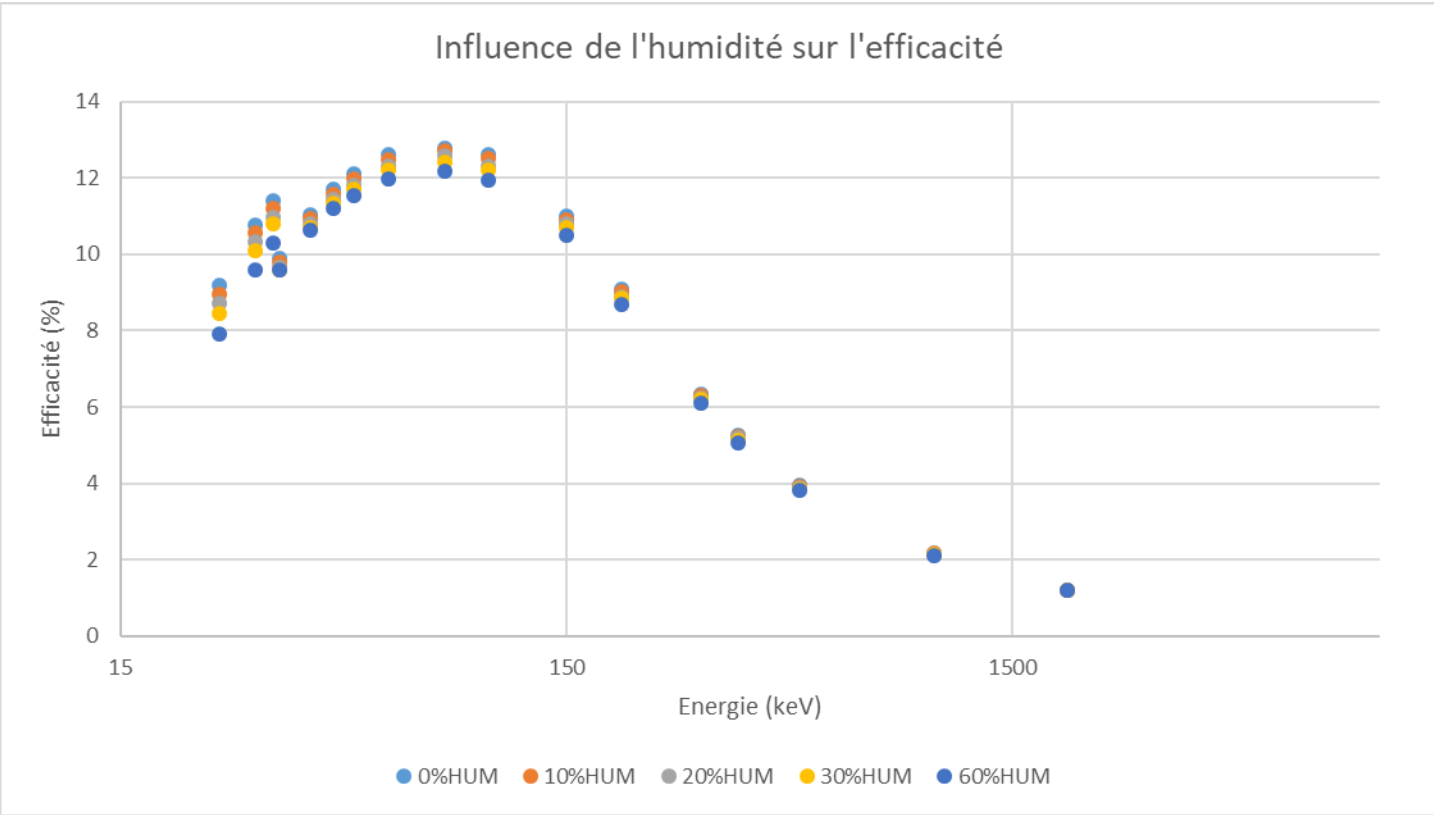
Dans les X : 8% - $25 < E < 33 \text{ keV}$

Pour les γ : 16% - $34 < E < 100 \text{ keV}$

Hypothèse:

- la cartouche est uniforme.
- $d = 0,55$
- 2% TEDA, 2% KI

Paramètre étudié : humidité



Si on double la masse cartouche en eau (15 g eau)

- Impact dans les X de 10 à 15 %
- Impact dans les γ de l'ordre de 3 à 5 % entre 40 et 2000 keV.



Maitrise de l'Influence des paramètres.

Composition de la cartouche ?

- Charbon actif
- TEDA
- KI
- Humidité

Littérature

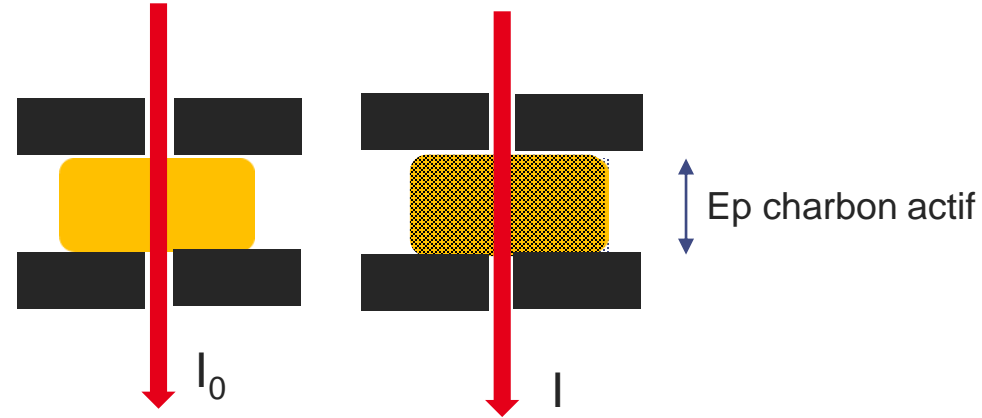
90% carbone

1 à 2,5% KI

1 à 2,5% TEDA, chloroforme

6% autres

Méthode de transmission



$$\mu_m(E) = \frac{LN \frac{I_0}{I}}{ep \times d}(E)$$

Détermination expérimentale μ_{massique} pour énergie 40, 60, 121, 344 keV. (t0)

C \approx 90% H \approx 0,22% N \approx 0,25%

K \approx 0,55% O \approx 2,90%

I \approx 1,85% Cl \approx 1,9%

Na \approx 0,6% Al \approx 1,9%

KI \approx 2,3% TEDA \approx 1,9% H₂O \approx 3,3%

Comparaison de mesures Tranche/Face

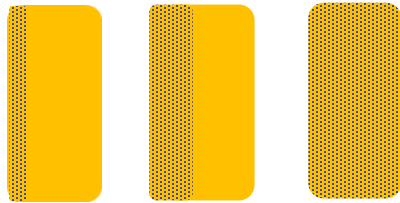
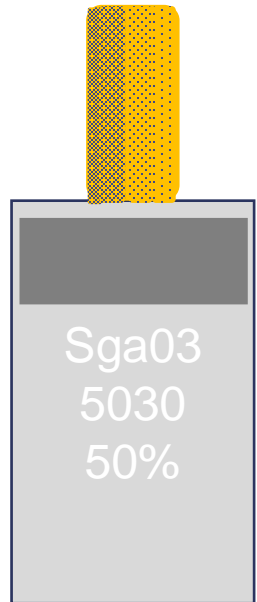
Caractéristiques du modèle

Ep cartouche : 3,2mm

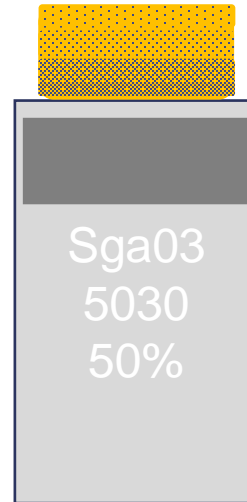
Densité du charbon = 0,55

Phase imprégnation : TEDA 2% + KI 2%

humidité = 10%



Avec dx variant de:
2 mm à un impactage homogène (180 mm)



Biais de 2% dans les X
Pas d'impact

Gamme 25 – 2000 keV

Fc étalonnage CF et CH

- 1,50 mesure face active
- 0,6 si face non active

Rajouter le taux de comptage

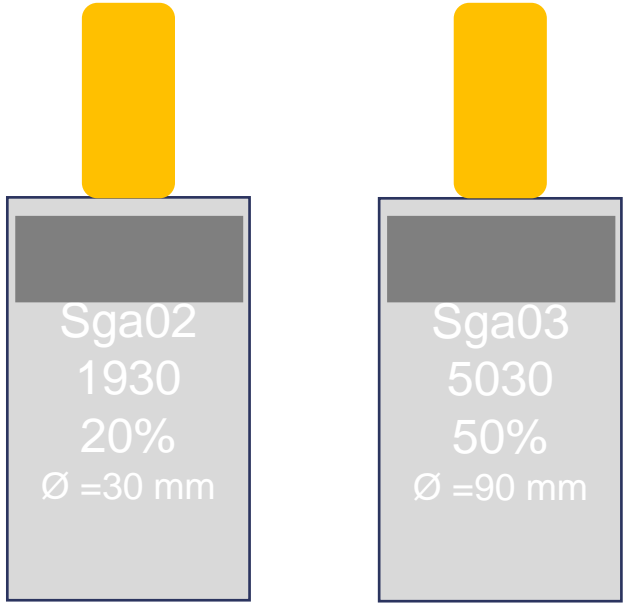
CF : cartouche face

CH : cartouche homogène

➤ Mesurer dans le bon sens



Influence des mesures sur des détecteurs de faibles diamètres

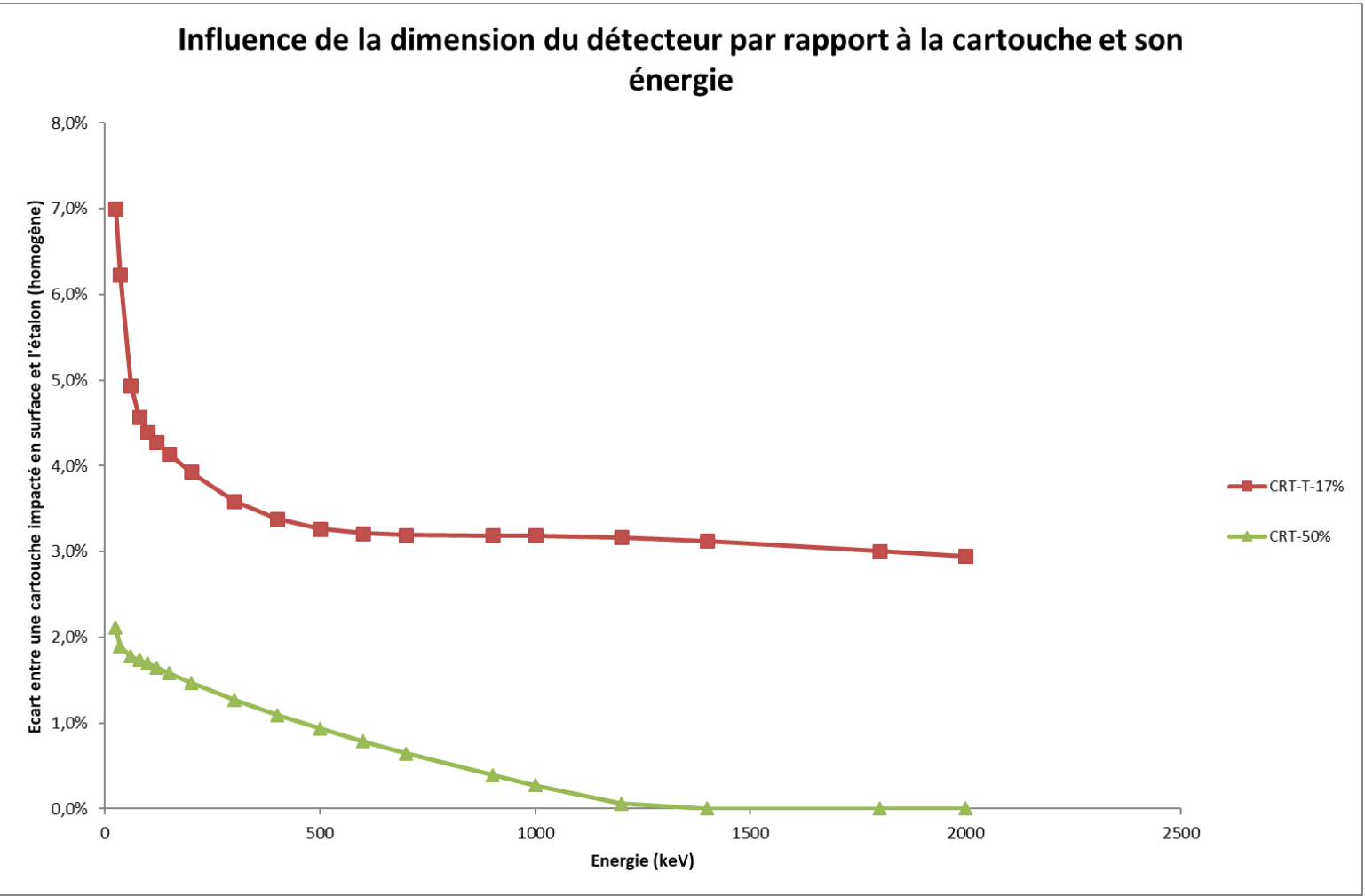


Calcul d'efficacité en surface et homogène sur

- Détecteur 20% Ø=30mm
- Détecteur 50% Ø=90mm

Rapport d'efficacité

$$R_{eff}(E) = \frac{Eff_{surface}(E)}{Eff_{homo}(E)}$$



➤ Bien choisir son détecteur en fonction de l'impact de la cartouche



3 ■ Conclusions



Conclusion

Piégeage

- Importance du KI dans la rétention de l'iode dans les Charbons Actifs
- Variabilité de l'efficacité de prélèvement
- Nécessité de connaître les conditions de prélèvements
- A prendre en compte dans l'élaboration du résultat final

Mesure

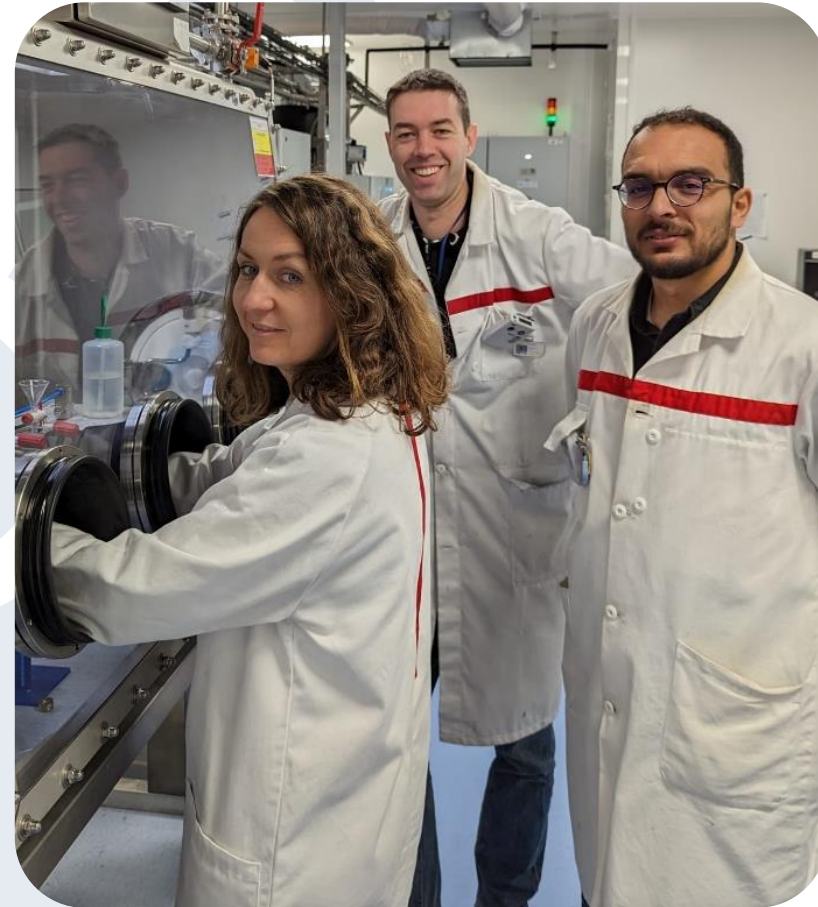
- Importance de la composition de la cartouche
- Sens de positionnement de la cartouche
- Le détecteur
- Etalon de référence (préparation, conditionnement, cartouche...)

Elaboration du guide technique

Remerciements

Ces résultats n'auraient pas vu le jour sans :

- **Mouheb CHEBBI**
- **Benoît MARCILLAUD**
- **Audrey ROYNETTE**
- **Karim ABBAS**
- **Hantao LIN**
- **Felipe CARBAL BORGES**
- **Cécile GRIMAUD**
- **Bruno AZAMBRE**
- **Denis DOIZY**
- **Olivier CROISSANT**
- **Claire GEGOUT**
- **Pascale LECUYER**
- **Stéphane BRUN**
- **Eric BOHAUD**





IRSN
INSTITUT DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE



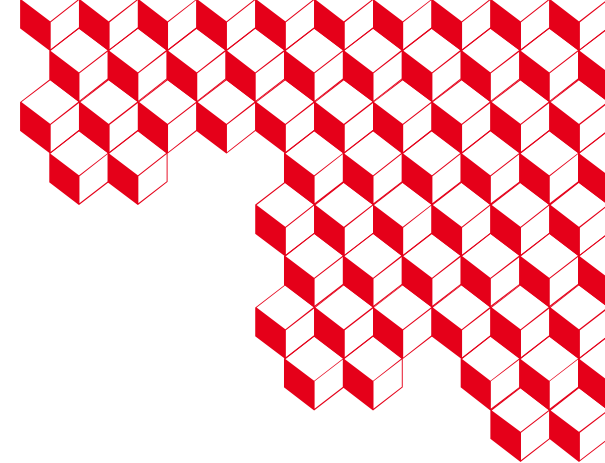
**RÉPUBLIQUE
FRANÇAISE**

*Liberté
Égalité
Fraternité*

MEMBRE DE

ETSON

LECEV
Laboratoire d'Expérimentation sur le Comportement
des Équipements et de la Ventilation



Merci

Celine.monsanglant-louvet@irsn.fr

Yvan.losset@cea.fr