

## Granulométrie de l'iode particulaire atmosphérique : implication sur le diamètre médian et les calculs de dose

François GENSDARMES<sup>1</sup>, Olivier MASSON<sup>2</sup>

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

2 Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), PSE-ENV/SERPEN/LEREN, F-13115, Saint Paul lez Durance, France

L'iode radioactif rejeté dans l'environnement par les installations nucléaires est présent notamment sous forme d'aérosols (ainsi que de gaz) et est susceptible d'être adsorbé sur des aérosols ambiants. Au-delà des mécanismes de sorption, l'iode gazeux du fait de sa réactivité chimique est également susceptible de produire des aérosols ultrafins (oxydes d'iode et via l'acide iodique) par nucléation et par réaction chimique avec d'autres composés.

Les aérosols radioactifs iodés couvrent un large spectre de tailles pour lesquels un diamètre aérodynamique médian en activité (DAMA) et un écart-type géométrique rendent généralement compte de sa distribution granulométrique. L'évaluation dosimétrique liée à l'inhalation d'iode radioactif sous forme d'aérosol, est basée sur une valeur de coefficient de dose correspondant à un diamètre médian égal à 1  $\mu\text{m}$  (valeur par défaut pour le public). Toutefois, les déterminations expérimentales réalisées au cours d'accidents nucléaires ont montré que le diamètre médian de l'iode particulaire est systématiquement inférieur au micron (généralement compris entre 0,3 et 0,6  $\mu\text{m}$ ). De plus, pour l'iode, ce diamètre médian est systématiquement inférieur à celui d'autres radionucléides qui n'existent qu'à l'état particulaire une fois dans l'environnement (césium, ruthénium...).

L'iode gazeux (<sup>127</sup>I en particulier) subit des mécanismes de nucléation et d'oxydation qui conduisent à la formation d'aérosols iodés ultrafins en concentrations non négligeables à plus ou moins courtes distances par rapport à la localisation du rejet. Ces aérosols ultrafins participent à la diminution du diamètre médian de la distribution granulométrique réelle de l'iode particulaire. Sur le plan expérimental, seules quelques déterminations ont été obtenues avec des impacteurs possédant un seuil de coupure réellement adapté à la caractérisation de la distribution en iode sur la fraction fine des aérosols : Au début des années 1960, Megaw a montré que dans l'atmosphère de confinement d'un réacteur, une partie de l'iode moléculaire s'adsorbe sur des particules dont la taille est principalement comprise entre 0,01 et 0,4  $\mu\text{m}$ . Selon les travaux de Chamberlain (1966), l'<sup>131</sup>I a tendance à se fixer aux aérosols du mode accumulation (c'est-à-dire dans une plage de taille de 0,1 à 1  $\mu\text{m}$ ). Selon Budyka et Ogorodnikov (1999), la taille des particules contenant une plus grande quantité d'<sup>131</sup>I était comprise entre 0,015 et 0,4  $\mu\text{m}$  après l'accident de Tchernobyl à proximité de la centrale nucléaire.

Une grande partie des mesures réalisées après les accidents de Tchernobyl et de Fukushima a été obtenue à l'aide d'impacteurs à haut débit dont le seuil de coupure pour l'étage inférieur ne permettait pas d'investiguer de façon détaillée le contenu en iode de la fraction nanométrique. Même si ces travaux ont montré que l'essentiel de l'activité en iode était présent sur la fraction <0,5  $\mu\text{m}$  il n'a pas été possible de détailler plus précisément sa répartition sur la fraction la plus fine. Dans ces études, le DAMA est de facto déterminé par extrapolation des valeurs mesurées sur les étages supérieurs, tout cela en supposant que la granulométrie est composée d'un seul mode en taille. Cela concerne une grande partie des valeurs proposées dans l'environnement et déterminées à partir de ce type d'impacteur. Il en résulte une incertitude sur la valeur du DAMA et plus fondamentalement une incertitude sur la forme de la distribution granulométrique à considérer pour le choix d'un coefficient de dose pertinent. Dès lors, le choix d'un coefficient de dose pour 1  $\mu\text{m}$  serait discutable dans le cas où le diamètre de l'aérosol retenu serait inférieur à 0,15  $\mu\text{m}$  (Cf. figure 1).

Afin de lever le doute sur l'existence d'une fraction d'iode particulaire nanométrique, contribuant à la transition entre l'iode gazeux et l'iode particulaire de taille micrométrique, l'IRSN développe actuellement un dispositif innovant (NANOCOL) pour la collecte de nanoparticules à grand débit. Les premiers essais auront lieu en avril autour de l'usine de la Hague, dans le cadre du projet SPECIOSA.

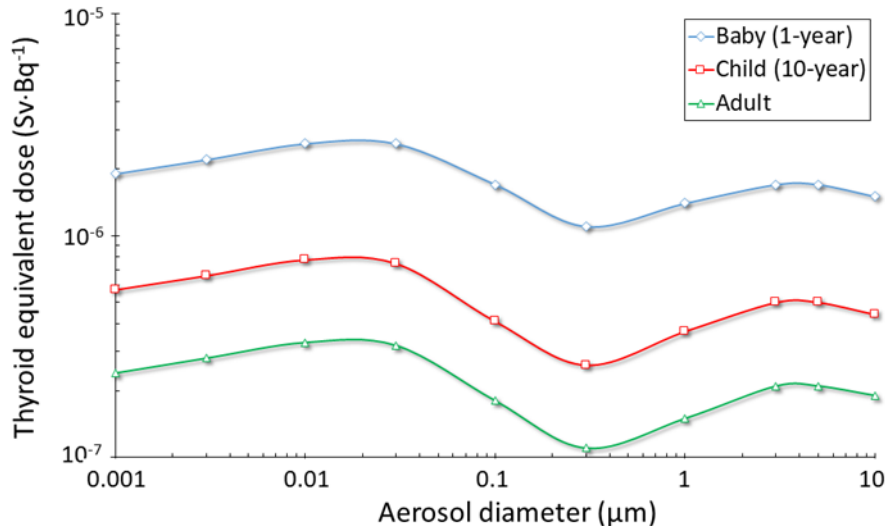


Figure 1: Thyroid equivalent dose coefficients for inhalation of particulate <sup>131</sup>I (type F), vs. aerosol diameter (ICRP 66).

Références :

- Megaw WJ, May FG (1962) The behaviour of iodine released in reactor containers. J. Nucl. Energy, Parts A/B. Reactor Science and Technology, 16, 9, 427 – 436. [https://doi.org/10.1016/0368-3230\(62\)90195-7](https://doi.org/10.1016/0368-3230(62)90195-7)
- Megaw WJ (1965) The adsorption of iodine on atmospheric particles. J. Nucl. Energy, Parts A/B, 19, 8, 585 -595. [https://doi.org/10.1016/0368-3230\(65\)90115-1](https://doi.org/10.1016/0368-3230(65)90115-1)
- Chamberlain AC and Chadwick RC (1966) Transport of iodine from atmosphere to ground. Tellus XVIII, 226-237.
- Budyka AK, Ogorodnikov BI (1999) Calculation of gaseous forms and sizes of aerosol particles <sup>131</sup>Iodine - the radioactive fallout of Chernobyl accident by calculation of inhaled radiation dose. Russian J Phys Chem 73, 2, 3. 33, 5: 611-619
- ICRP (1994) Human Respiratory Tract – Model for Radiological Protection. Publication 66. Annals of the ICRP, Volume 24, 1-3. Pergamon.