

CEA-CONF.-M574
FR 933721

ETUDE EXPERIMENTALE DU LAVAGE PAR LA PLUIE DES IODES GAZEUX SUSCEPTIBLES
D'ETRE EMIS EN CONDITIONS ACCIDENTELLES

C.Caput, H. Camus, D. Gauthier et Y.Belot

CEA / Institut de Protection et de Sureté Nucléaire,
Département de Protection de l'Environnement et des Installations,
Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-Aux-Roses,
BP N° 6, 92265 Fontenay-Aux-Roses Cedex
(Etude réalisée dans le cadre d'un protocole entre le CEA et EDF)

FIELD MEASUREMENTS OF THE WASHOUT COEFFICIENT FOR GAZEOUS IODINE LIKELY TO
BE RELEASED ON ACCIDENTAL CONDITIONS

Field experiments were performed in Brittany to assess the washout coefficient A for molecular iodine. During each run, a few grams of nonradioactive iodine were released from a 12 meters telescopic mast, and the rain was sampled at a short distance downwind along complete transversal sections of the plume. The amount of iodine in each sample was determined by ionic chromatography to calculate the washout coefficient. In most cases, the results obtained (a few 10^{-5} s^{-1}) are not so different as expected from the theoretical values assuming a complete solubility of iodine in rain water.

INTRODUCTION

Les modèles prévisionnels de dispersion à la suite d'un rejet accidentel hypothétique utilisent habituellement pour caractériser le lavage des polluants par la pluie un paramètre A appelé coefficient de lavage. Ce paramètre, qui a la dimension de l'inverse d'un temps, représente la fraction du polluant entraînée par la pluie par unité de temps. Dans le cas de l'iode moléculaire, les valeurs de ce coefficient ont été établies de manière théorique, sur la base d'une entière solubilité de la vapeur d'iode dans les gouttes d'eau de pluie, ces dernières étant supposées se comporter comme autant de "puits" jamais saturés. Cette hypothèse théorique du gaz infiniment soluble dans l'eau de pluie peut, a priori, paraître exagérément majorante. En effet, le lavage par la pluie des gaz contenus dans l'atmosphère dépend de nombreux facteurs liés à la réversibilité des échanges entre phases gazeuse et liquide, aux mécanismes de mélange à l'intérieur des gouttes et aux réactions chimiques susceptibles de s'y produire. Dans le cas de l'iode moléculaire, les modèles prévisionnels actuellement utilisés dans l'hypothèse d'un accident admettent que le coefficient de distribution entre phases liquide et gazeuse est très faible (c'est à dire que les phénomènes de désorption sont négligés), ce qui autorise l'emploi du coefficient de lavage, paramètre d'une manipulation commode, mais pas nécessairement approprié pour autant lorsqu'il s'agit d'un gaz. Les modèles théoriques existants qui prennent en compte la réversibilité de l'absorption du gaz par les gouttes (Dana 1972, Hales 1973 et Kumar 1985) sont, quant à eux, trop complexes pour être utilisables dans le cadre de la prévision des conséquences d'un accident.

Par ailleurs, les seules mesures expérimentales existantes sont anciennes (Engelmann 1966), rares, et très dispersées. Elles ont été obtenues soit à partir d'une émission d'iode stable réalisée sur un pylône de 13 mètres (3 résultats), soit à partir des traces d'iode radioactif rejetées par la

cheminée d'une installation. Dans le premier cas, les valeurs du coefficient de lavage obtenues étaient comprises entre quelques 10^{-7} et quelques 10^{-6} s^{-1} , c'est à dire 1 à 2 ordres de grandeur au dessous des valeurs théoriques basées sur une entière solubilité de l'iode et correspondant aux mêmes intensités de précipitation. Dans le second cas, les résultats étaient supérieurs d'un ou deux ordres de grandeur à ces mêmes valeurs théoriques, ce qui, selon l'auteur, pourrait être dû à une captation de la vapeur d'iode sur les gouttelettes formées par condensation de la vapeur d'eau au niveau du conduit de rejet.

De nouvelles expériences *in situ*, du même type que celles réalisées en 1966 par Engelmann, mais bénéficiant des nouvelles possibilités techniques, en particulier en matière de dosage de l'iode dans l'eau, ont été réalisées par notre Laboratoire en Bretagne en 1990 et 1991.

METHODES EXPERIMENTALES

En présence de différents types de précipitations, une quantité connue (Q) d'iode stable (quelques grammes) est injectée dans l'atmosphère par un dispositif d'émission produisant de l'iode moléculaire par sublimation de paillettes. L'eau de pluie est échantillonnée sous le vent de l'émission à l'aide de collecteurs de précipitations disposés en arc de cercle de manière à englober l'ensemble de la largeur du panache, et au vent de l'émission pour déterminer la concentration naturelle en iode de l'eau de pluie. A l'issue de l'essai, les volumes d'eau (v) collectés en chaque point sont mesurés et, après filtration des échantillons sur filtres Millipore de porosité $0,45 \mu\text{m}$, les concentrations (C) en iode sont déterminées par chromatographie d'ions associée à une détection électrochimique (système Dionex), ce qui autorise une sensibilité meilleure que un ppb. Le principe de cet appareil consiste à faire circuler un échantillon de 5 ml à travers une colonne de préconcentration et à balayer cette dernière par un éluant qui entraîne l'iode vers la colonne de chromatographie. On en déduit les quantités d'iode (q) précipitées en chaque point d'échantillonnage: $q = Cv$. Lors de chaque expérience, la vitesse du vent (u) au niveau du panache, l'intensité de la pluie, son pH et sa température sont mesurés, ainsi que le spectre dimensionnel des gouttes.

Pour toute section transversale complète du panache de longueur L on peut calculer le coefficient de lavage Λ par la relation:

$$\Lambda = Wm(x) L u / Q$$

$W m(x)$ étant la quantité moyenne d'iode déposée par unité de surface sur la bande de sol de largeur dx située à la distance x de la source et englobant la largeur totale L du panache, quantité déterminée à partir des dépôts q déterminés en chaque point d'échantillonnage du transect et connaissant la surface d'interception des collecteurs.

DEROULEMENT DES ESSAIS ET RESULTATS

Onze mesures du coefficient de lavage ont été effectuées: 3 en Octobre 1990 et 8 en Juillet 1991, (les conditions expérimentales et résultats donnés en tableau 1). Les intensités de précipitation (0,9 à 4,8 mm/h) et les vitesses de vent (2,5 à 18,3 m/s) sont représentatives des conditions les plus fréquentes sous nos latitudes. Les concentrations de l'eau de pluie en iode dans l'axe du panache doivent suffisamment dépasser le bruit de fond de l'eau de pluie pour autoriser la mesure, sans toutefois risquer de perturber le mécanisme de captation par les gouttes. Les valeurs du coefficient de lavage obtenues sont en moyenne légèrement plus élevées lorsque la concentration de l'iode dans l'eau de pluie est très

faible . Ceci nous conduit à étudier des concentrations de quelques dixièmes de ppb (la durée des essais est d'une heure), ou d'une dizaine de ppb (la durée des essais est alors réduite à 2 minutes. Le coefficient de lavage est en moyenne de $5,6 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ dans le premier cas au lieu de $3,1 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ dans le second. Il est à noter que les concentrations moyennes indiquées dans le tableau 1 sont relatives non pas à l'eau de pluie ayant traversé le panache, mais aux échantillons tels qu'ils sont collectés, plus ou moins dilués en fonction des conditions expérimentales par de l'eau de pluie reçue avant et après le passage du panache. Aucune corrélation claire n'a pu être établie entre le coefficient de lavage de l'iode et l'intensité, le pH ou la température des précipitations.

Dans le cas d'intensités de précipitation élevées, les valeurs expérimentales présentées ici sont sensiblement plus faibles que les valeurs théoriques se fondant sur un lavage irréversible (Fig.1). Par contre, dans le cas d'intensités modérées, les résultats expérimentaux obtenus peuvent, compte tenu des incertitudes expérimentales, être considérés comme une validation du calcul prévisionnel actuellement employé dans l'hypothèse d'un rejet accidentel.

Des expériences complémentaires ont montré que lors d'essais de ce type, il convenait de s'assurer que le panache ne venait pas au contact des collecteurs de précipitation, la forte réactivité de l'iode moléculaire provoquant alors un dépôt sec très important venant masquer celui entraîné par la pluie.

CONCLUSION

Dans le cas d'intensités de précipitation inférieures à 3 mm/h (fréquent sous nos latitudes) , et lorsque la concentration d'iode dans l'eau de pluie demeure très proche de la concentration naturelle préexistante, ce qui est toujours le cas dans le panache d'un rejet radioactif, les résultats expérimentaux obtenus sont peu éloignés des valeurs du coefficient de lavage adoptées dans les modèles théoriques supposant une entière solubilité de l'iode dans l'eau de pluie. Ces dernières apparaissent par contre un peu trop élevées dans le cas d'intensités de précipitation importantes.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Dana M.T., Hales J.M. and Wolf M.A. (1972) "Natural precipitation washout of sulfur dioxide". Report to Div. Meteorol. EPA Contract BNW-389.
- Engelmann R.J., Perkins R.W., Hagen D.I. and Haller W.A. (1966) "Washout coefficients for selected gases and particulates" *BNWL-SA-657. 59th An. meet. of the air poll. Contr. Assoc., San Francisco, June 20-24, 1966.*
- Hales J.M., Wolf M.A. and Dana M.T. (1973) "A linear model for predicting the washout of pollutant gases from industrial plumes" *Am. Inst. Chem. Engrs J., 19, 292.*
- Kumar S. (1985) "An Eulerian model for scavenging of pollutants by raindrops" *Atm. Env., 19, 769-778.*

Tableau 1: LAVAGE DE L'IODE MOLECULAIRE PAR LES PRECIPITATIONS
 SITE DE ROC'H-TREDUDON (1990-1991)
 (Conditions expérimentales et résultats)

N°	u m/s	i mm/h	Larg. m	C moy ppb	vol moy. ml	Q g	Λ $10^{-5} s^{-1}$
1	15	1,3	34	10,77	4,4	20	2,5
2	9	4,8	24	5,16	25,2	10	7,4
3	8	3,3	40	5,97	9,8	20	2,5
4	15,5	1,2	28	0,65	38	5	5,4
5	15,5	1,2	19,2	0,33	40,5	5	2,0
6	8	0,9	28	1,52	46	5	7,8
7	8	0,9	15,6	0,45	48,1	5	1,6
8	18,3	1,7	14,4	0,76	74,1	4,5	8,2
9	18,3	1,7	23,6	0,62	64,9	4,5	8,4
10	3,0	4,0	30,8	3,46	24	10	1,9
11	3,0	4,0	28	2,37	28,3	10	1,4

Coefficient de lavage de l'iode
 valeurs expérimentales et théoriques

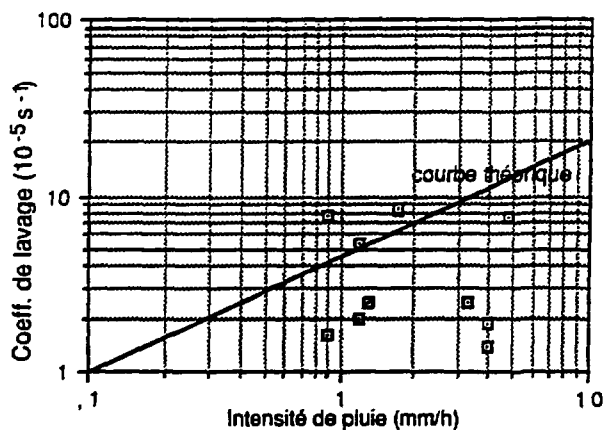


Fig. 1