

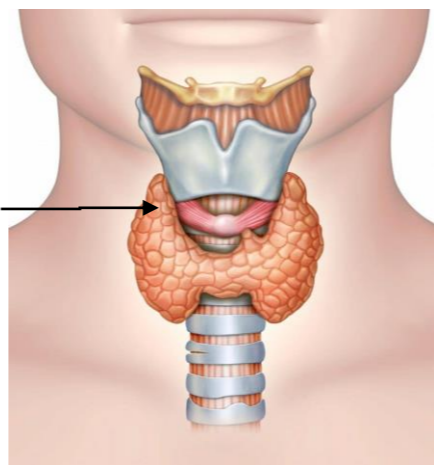
131I

• Iodométhane: composé organique très volatil provenant de l'interaction entre ¹³¹I et les dérivés organiques

• Forte radiotoxicité et mobilité dans l'environnement → **piégeage nécessaire avant dissémination**

Laboratoires de recherche, réacteurs nucléaires

Introduction



Affinité vis-à-vis de la thyroïde

Mécanismes potentiellement impliqués pour piéger CH₃I [2] → dépendent de la nature et la teneur en imprégnant

Physisorption → **piégeage réversible**: dépend de l'accessibilité des micropores du charbon à CH₃I (diamètre cinétique 0.5 nm)

Chimisorption → **piégeage stable** par réaction chimique de type SN₂

Échange isotopique (EI) $K^{127}I(s) + CH_3^{131}I(g) \rightleftharpoons K^{131}I(s) + CH_3^{127}I(g)$

NOTRE OBJECTIF → Étudier la dépendance de cette réaction en fonction des conditions opératoires et des paramètres matériaux

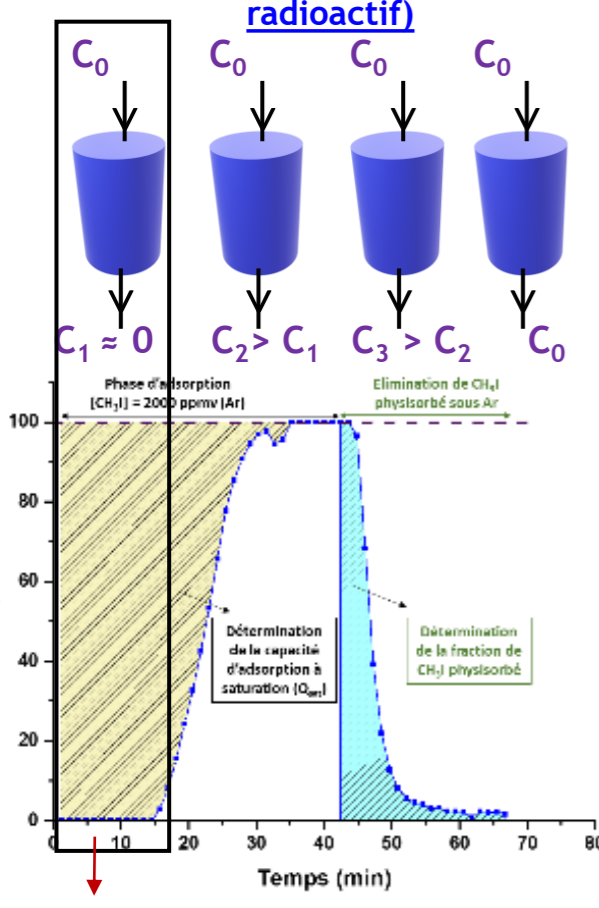
Composition des pièges à iode (PAI) dans les systèmes de ventilation [1]

Charbon Actif (CA) "Nuclear Grade"

- = noix de coco carbonisées et activées + imprégnants chimiques:
- 1 wt% Iodure de potassium (KI)
- 5 wt% triéthylènediamine (TEDA)

Evaluation des adsorbants

Courbes de percée (CH₃I stable et radioactif)



Coefficient d'épuration (CE) dans PERSEE [1]

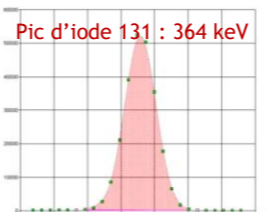
Charbon actif testé (amont) - 35 g

Charbon actif de référence (aval)

Protocole standardisé (AFNOR M62-206) [3]:

- équilibration avec H₂O à T et HR prédéfinies pendant au moins 16h
- injection d'un pulse de CH₃¹²⁷⁺¹³¹I pendant 30 min (CH₃¹³¹I/CH₃¹²⁷I = 10⁻¹⁰)
- élution sous air pendant 1h

Mesure des activités par spectrométrie γ



Évaluation de la stabilité de piégeage

Capacité d'adsorption « utile »

$CE = \frac{Activité_{(amont)} + Activité_{(aval)}}{Activité_{(aval)}}$

Méthodologies utilisées

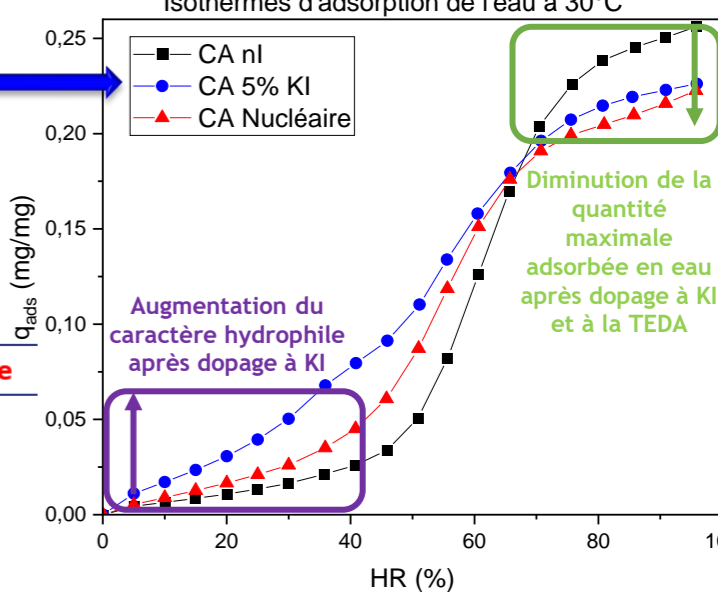
Microbalance de sorption → évaluation de l'affinité pour la vapeur d'eau

Propriétés texturales (porosimétrie de N₂ à 77 K)

	CA nl	CA 5% KI	CA Nucléaire
Imprégnation (%wt)	-	5% KI	1% KI 5% TEDA
S _{BET} (m ² g ⁻¹) [1]	1142 ± 19	1132 ± 17	976 ± 12
Microporosité (%) [1]	96,0 ± 0,8	94,4 ± 0,6	93,5 ± 0,5

Caractérisations physico-chimiques

Isothermes d'adsorption de l'eau à 30°C



Augmentation du caractère hydrophile après dopage à KI

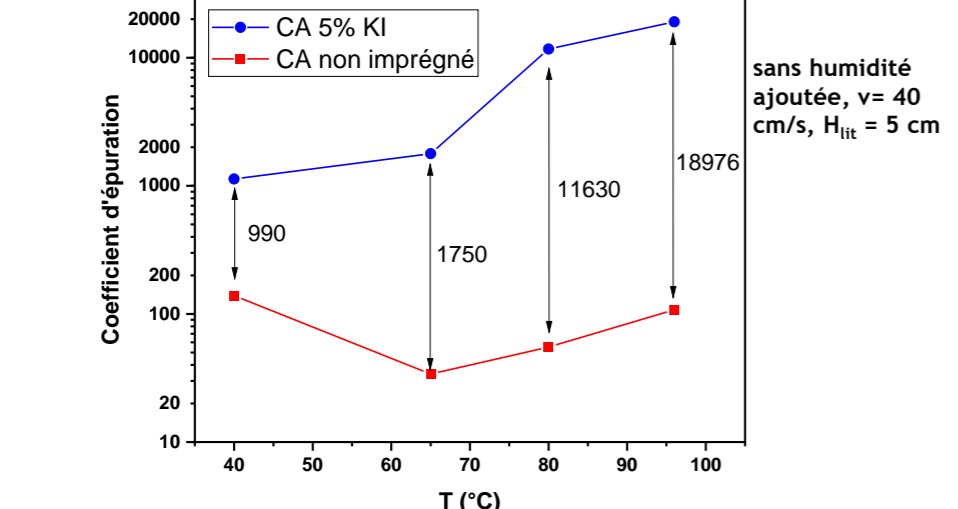
Diminution de la quantité maximale adsorbée en eau après dopage à KI et à la TEDA

I. Comparaison des CE mesurés sur le CA non imprégné (nl) et le CA 5% KI

Influence des conditions opératoires sur la réaction d'échange isotopique

N.B. Pour cela, il est nécessaire de se placer à des températures où la physisorption n'est pas le mécanisme prépondérant

Influence de la température (40-95 °C) sur la mesure des CE - 0% HR



Evolution des CE pour le CA non imprégné (nl)

- Diminution des CE entre 40 et 65 °C → CH₃I est physisorbé moins facilement
- Augmentation des CE entre 65 et 96 °C → promotion des réactions chimiques entre CH₃I et les cendres au sein du CA (TEM/EDX)

CE maximal (139) à 40 °C

Evolution des CE pour CA 5% KI

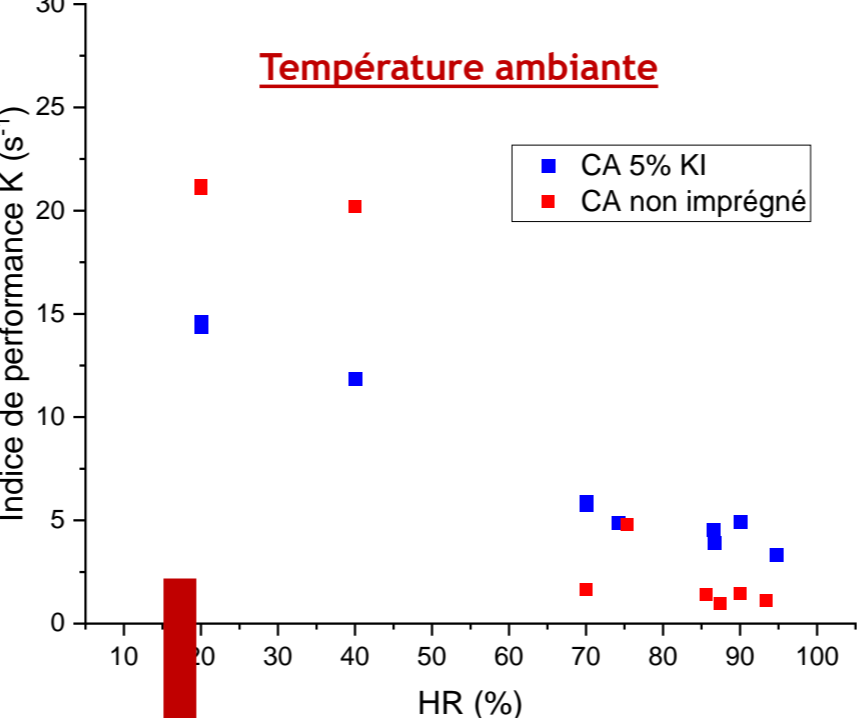
Augmentation des CE entre 40 et 96 °C (1130 → 19085)

→ Promotion de la réaction d'échange isotopique au détriment de la physisorption (étape de dissociation thermiquement activée nécessaire avant la réaction d'EI)

À 65 °C : avec 5%KI → gain de 98% de stabilité de piégeage par rapport au CA nl

Résultats

Indice de performance (K) → $K (s^{-1}) = \frac{\log(CE)}{\text{temps de séjour}}$



Température ambiante

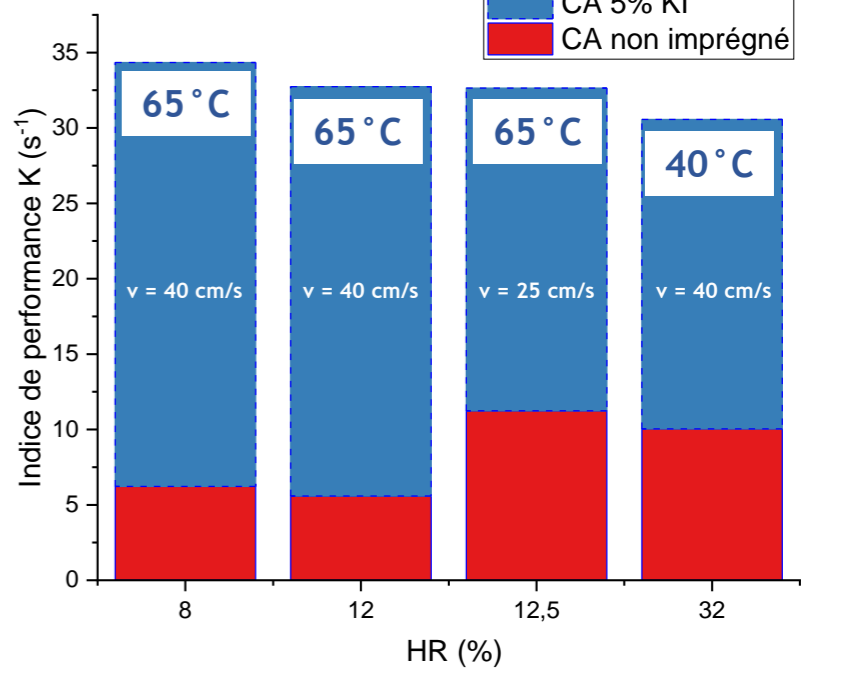
À faible HR (≤ 40%) : KI : effet non bénéfique (diminution de K) → centre de nucléation pour les molécules d'eau adsorbées → microporosité accessible pour CH₃I

À forte HR (≥ 70%) : Physisorption inhibée → phénomènes de piégeage gouvernés essentiellement par la réaction d'EI

Globalement, l'influence de l'HR est moins marquée sur le CA imprégné au KI par rapport au CA non imprégné

Influence de l'humidité relative (HR) et de T sur la mesure des K (s⁻¹)

Air réchauffé (40 ou 65 °C)



T plus élevée avec la même teneur en eau → Diminuer l'HR (%) → limitation des phénomènes d'adsorption compétitive (première partie de l'isotherme d'adsorption) → Promotion de la cinétique d'échange isotopique

Conclusions

- Pour la première fois, une étude paramétrique a été menée afin d'évaluer l'influence de KI en tant qu'imprégnant pour le piégeage de CH₃I par les charbons actifs de grade nucléaire.
- différentes tendances sont observées en fonction des conditions opératoires:
 - température ambiante, faible HR : effet néfaste de KI sur les indices de performance (et CE) mesurés;
 - température ambiante, HR >=70% → compensation de l'absence de l'adsorption physique
 - températures élevées (même teneur en eau) → (i) limiter les phénomènes d'adsorption compétitive et (ii) promouvoir la cinétique de l'EI

Conclusions et perspectives

- Continuité des études paramétriques sur les CE (HR supérieure, temps de séjour...) et les courbes de percée
- Détermination de l'apport du KI vis-à-vis de la rétention de CH₃I radioactif en présence de la TEDA dans des conditions représentatives des tests d'efficacité des PAI → coefficient de « sûreté » entre les tests radioactifs et non-radioactifs
- Investigation de l'effet des paramètres « matériau » sur la réaction d'EI
- Elucider le mécanisme d'interaction entre TEDA et CH₃I en combinant des techniques spectroscopiques *in situ* et des caractérisations avant et après test

Perspectives