Cycle de l'iode dans l'environnement

DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX POUR L'ÉTUDE DU CYCLE DE L'IODE 129 A PARTIR D'UNE USINE DE TRAITEMENT DE COMBUSTIBLES NUCLÉAIRES BILANS PARTIELS POUR LES SOLS ET LES VÉGÉTAUX

A. SAAS (*)

(Manuscrit reçu le 17 septembre 1975)

RÉSUMÉ

Les études concernant le cycle des radio-iodes et plus spécialement de l'iode 129 dans l'environnement des installations nucléaires nécessitent la mise en place de dispositifs expérimentaux qui permettent de suivre ces polluants dans les différents compartiments du milieu : atmosphère, sol, végétal, eau de pluie, etc. Après la description des principaux montages utilisés, l'auteur dresse un bilan partiel des résultats obtenus. Les données exposées sont relatives à la percolation des iodures dans le sol, à la répartition de l'iode radioactif après un an, au dégazage de l'iode au niveau du sol et des végétaux.

ABSTRACT

An experimental procedure was developed in order to follow the pathways of radioiodine, ^{129}I especially, through the various compartments of nuclear plant environment: atmosphere, soil, plants, precipitations,... A partial evaluation of the results is made. Data are supplied on iodide transfer into soil, iodine distribution one year later, release of iodine at the level of soil and plants.

(*) Commissariat à l'Énergie atomique, Département de Protection, Service de Recherches toxicologiques et écologiques.

Laboratoire de Radioécologie continentale C.E.N. Cadarache, B.P. n° 1, 13115 Saint-Paul-lès-Durance.

INTRODUCTION

L'étude expérimentale du cycle de l'iode 129 dans l'environnement immédiat d'une usine de traitement de combustibles irradiés nécessite la mise en place d'un certain nombre de dispositifs qui permettent de suivre l'iode dans divers milieux. En effet, de par sa chimie, l'iode peut prendre plusieurs valences et plusieurs états physiques, notamment un état gazeux; le transfert de l'iode d'un milieu à l'autre peut donc se faire aisément par les formes volatiles. Cependant, il faut reconnaître que, si le transfert de l'iode a une importance capitale, il est non moins important de suivre la production d'iode volatil à partir du milieu considéré et l'évolution de cette forme après transfert. Ceci justifie la mise en place de plusieurs dispositifs expérimentaux. Les premiers doivent servir à suivre l'évolution globale de l'iode dans le milieu; les seconds permettent d'étudier les échanges entre deux milieux successifs. Au préalable, nous essayerons de cerner rapidement les principaux maillons du cycle de l'iode, puis nous décrirons les principaux dispositifs mis en place au Laboratoire de Radioécologie continentale, enfin nous dresserons un bilan succinct des principaux résultats obtenus.

Le but de cette expérimentation menée à l'aide de l'iode 125 est de monter des dispositifs permettant de suivre tous les isotopes de l'iode y compris l'iode stable et tout spécialement l'iode 129, ainsi que de mettre en évidence certains problèmes posés d'une manière spécifique par l'iode à vie longue (dégazage, transfert de formes volatiles, mode d'apport et d'absorption, etc.).

1. RAPPEL DES PRINCIPALES DONNÉES CONCERNANT L'IODE ET HYPOTHÈSES CONCERNANT LE CYCLE DE L'IODE

L'iode émis par les cheminées des réacteurs ou les usines de traitement se trouve sous plusieurs formes chimiques et sous plusieurs états physiques. Les principales formes émises sont : l'iode élémentaire, l'iode organique, HI, HOI.

Au niveau de différents milieux (sols, eaux, végétaux, etc.), on retrouve généralement de cinq à sept formes différentes d'iode. Selon les conditions du milieu : pH, potentiel d'oxydo-réduction, humidité, température, etc., l'équilibre entre ces diverses formes varie. De ce fait, il est nécessaire de suivre, pour un milieu donné, à la fois la production quantitative et qualitative de l'iode gazeux. Parmi les formes d'iode gazeux, on peut distinguer les formes minérales : I_2 et les formes organiques. Les formes organiques identifiées [1] sont au nombre de sept : iodure de méthyle, d'éthyle, de propyle, d'isopropyle, de butyle, d'isobutyle et d'allyle; ces mêmes travaux montrent qu'il existe, en outre, d'autres formes organiques non identifiées : environ cinq à six composés.

Pour ce qui est du cycle de l'iode, il y a une interpénétration entre tous les milieux; pour l'atmosphère, il y a six formes physico-chimiques différentes qui peuvent passer de la pluie au sol, aux végétaux, etc. Dans un montage expérimental, il faut donc suivre les formes liquides et les formes gazeuses.

2. DESCRIPTION DES DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX

Nous avons réalisé plusieurs dispositifs expérimentaux. Le premier a pour but de suivre l'évolution de l'iode de l'eau de pluie à travers le sol et les végétaux, puis sa migration vers la nappe ou bien son retour dans l'atmosphère. Le second dispositif vise à suivre la production d'iode volatil à partir des végétaux en décomposition, ainsi que les possibilités de fixation

FIG. 1. — Dispositif expérimental général.

de cet iode par le sol. Un troisième montage permet de suivre l'iode en provenance de la solution du sol et des percolats du sol. Un quatrième dispositif a pour but de suivre le dégazage à partir du sol et les modalités de refixation sur le sol.

2.1. ATMOSPHÈRE-SOL-PLANTE-NAPPE (fig. 1)

Le dispositif expérimental comporte quatre éléments principaux :

- la simulation des précipitations;
- le piégeage et la fixation des différentes formes de l'iode au niveau du sol;
- le sol et sa végétation;
- le dispositif de récupération du percolat.

a) *Simulation des précipitations*

Les précipitations à reproduire varient de 0,2 à 5 mm/h, soit pour une surface de sol de 500 cm^2 , un volume de pluie de 10 à 250 cm^3 . Les débits sont assurés à l'aide d'une pompe « Technicon » équipée des tuyaux appropriés. Le système d'arrosage proprement dit est représenté sur la figure 2. Il comporte une plaque leucoflex de 5 mm d'épaisseur, de $220 \text{ mm} \times 220 \text{ mm}$. Cette plaque

FIG. 2. — Montage général d'un « cube » de sol.

est percée de cent trous de 5 mm de diamètre. Ces trous sont obturés par de la moelle de sureau tassée. Puis, les deux surfaces sont paraffinées. Chaque trou garni de sureau reçoit un tube capillaire en verre de 35 mm de longueur; celui-ci affleure à la partie supérieure de la plaque. Sur la plaque réceptrice, on colle un encadrement fait de baguettes de $20 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$. L'intérieur est garni d'une toile de nylon ($200 \text{ mm} \times 200 \text{ mm}$ de $20 \mu\text{m}$ de mailles-type blutage de farine) qui a pour rôle de distribuer l'eau sur la plaque et d'assurer la

succion des tubes capillaires. Afin de faciliter l'adhérence de cette toile et d'assurer une bonne distribution du liquide, la cavité formée est remplie de billes de verre de 2 mm de diamètre. La distribution de l'eau sur la surface constituée par les billes de verre est obtenue par la mise en place de tubes multivoies. L'horizontalité et le maintien de la plaque de distribution sont

FIG. 3. — Équipement d'un « cube » de sol.

assurés par collage, à la face inférieure, de baguettes triangulaires munies de bourrelets de mousse. Ce système de simulation n'assure pas la taille des gouttelettes de pluie mais une répartition sur l'ensemble de la surface du sol quel que soit le débit de la pluie. Ce montage assure également un renouvellement de l'air dans la partie réservée aux végétaux et l'on peut maintenir une très légère dépression par succion, ce qui évite les pertes d'eau par condensation (*fig. 3 et 4*). Il faut noter que l'ensemble du système est rendu étanche à la surface supérieure par une toile de paraffine maintenue dans une rainure par un élastique. Il n'y a donc aucune évaporation de la pluie même si le débit est faible.

b) *Piégeage et fixation de l'iode au niveau du sol*

L'iode-vapeur provenant de l'eau de pluie et celui provenant du dégazage au niveau du sol sont piégés par une aspiration continue dont le débit moyen est de 5 l/h (fig. 5). Dans les parois de paraffine, on enfonce les enveloppes protégeant les aiguilles stériles. On ouvre un orifice à la partie inférieure.

FIG. 4. — Le système d'arrosage.

La partie supérieure d'une aiguille est reliée par un tube « tygon » à un tube en verre renfermant du charbon actif. La longueur de ce tube est de 250 mm, son diamètre de 8 mm; la partie inférieure est effilée pour s'adapter à l'aide d'un raccord à un embout d'aiguille stérile. L'aiguille est piquée dans un bouchon plastique paraffiné surmontant une fiole de comptage de 15 cm³. Cette aiguille est prolongée par un tube qui plonge jusqu'au fond du flacon. Une seconde aiguille, à peine enfoncée, est reliée à la pompe d'extraction.

FIG. 5. — La filtration d'air.

Le flacon renferme 100 mg de nitrate d'argent dissous dans 8 cm³ d'un mélange à parties égales d'eau et d'alcool éthylique. Ce système permet de fixer les formes d'iode minéral sur le charbon actif et les formes organiques dans le nitrate d'argent alcoolique. L'alcool éthylique préalablement neutralisé avec de la soude permet de piéger les formes organiques selon les réactions suivantes :

La présence d'alcool évite la précipitation immédiate de l'iodure d'argent ainsi que la formation d'oxyde d'argent; ceci annule les dépôts sur les parois et permet un comptage direct de l'iode ainsi piégé.

c) *Le sol et sa végétation*

Le compartiment sol et végétation est constitué par un parallélépipède de 200 mm × 200 mm × 300 mm. La partie supérieure est surmontée de plaques de verre de 50 mm de hauteur qui sont collées dans la paraffine. L'espace ainsi formé permet à la végétation de se développer et de recevoir par éclairage artificiel la luminosité suffisante pour la croissance. L'atmosphère comprise entre le système d'arrosage et le sol est renouvelée et contrôlée selon les indications du paragraphe 2.1 b. A des périodes déterminées, la végétation est coupée et l'on peut doser l'iode absorbé (absorption racinaire) ou

FIG. 6. — Dégazage des végétaux.

adsorbé (dépôt foliaire) par les parties aériennes. Il est ainsi possible de suivre les mécanismes de concentration, soit après un dépôt unique, soit après un apport chronique.

d) *Dispositif de récupération du percolat*

La partie inférieure du parallélépipède de sol est munie en premier lieu d'un système de grilles paraffinées qui maintiennent le sol et permettent la percolation de l'eau de pluie. Les eaux percolées sont recueillies sur un plan incliné paraffiné muni à la partie basse d'un orifice d'écoulement qui débouche dans une éprouvette graduée. Ce dispositif permet donc, à tout moment, de calculer la rétention en eau, par différents dosages, soit chimiques, soit radioactifs, de connaître la composition des eaux de percolation et de déterminer les quantités d'iode 125 et d'iode stable exportées en fonction du type de sol, des intensités de pluie et de leur fréquence.

2.2. VÉGÉTAUX-ATMOSPHÈRE

Le dispositif décrit précédemment permet de dresser un bilan d'ensemble du cycle de l'iode. Néanmoins, afin de détailler quelques mécanismes particuliers, nous avons été amenés à travailler uniquement sur les échanges entre deux compartiments : végétaux-atmosphère; sol-atmosphère.

Dans un premier dispositif (*fig. 6*) nous avons étudié le dégazage de l'iode des végétaux récoltés dans l'expérimentation précédente. Il est constitué d'un apport d'air filtré sans iode (piège charbon + AgNO_3), d'un erlenmeyer

FIG. 7. — Décomposition des végétaux.

de 500 ml dans lequel se trouvent les végétaux frais, d'un piège à charbon actif destiné à retenir l'iode moléculaire et d'un piège à AgNO_3 + alcool qui retient l'iode organique. La circulation de l'air dans le dispositif s'effectue par pompage après le dernier piège. Le renouvellement périodique des pièges permet de déterminer la quantité d'iode dégazé à partir des végétaux, ainsi que la forme chimique de l'iode en fonction du temps de décomposition. Cette technique permet d'estimer le dégazage lors de la fenaison ou lors du fauchage des chaumes après le pâturage. Le départ de l'iode à partir des végétaux peut être dû à un processus chimique (dessiccation, formation de composés volatils comme les flavones, les terpènes), à un processus biochimique faisant intervenir des micro-organismes.

Dans un second dispositif (*fig. 7*) nous avons étudié la décomposition des végétaux. Par rapport au dispositif précédent, il faut noter l'adjonction d'un système d'apport d'eau de pluie et de récupération des percolats. Les pertes en iode des végétaux s'effectuent dans deux directions : l'atmosphère et les eaux de percolation. Ce dispositif permet donc de suivre l'iodure des végétaux en décomposition. Dans ce cas, le processus de libération de l'iodure par voie biochimique est prépondérant. On peut déterminer en particulier les formes de l'iodure présentes dans les percolats qui atteindront le sol.

FIG. 8. — Décomposition des végétaux - dégagement gazeux.

Le dégazage de l'iodure peut se faire directement à partir des végétaux ou simplement à partir des solutions de macérarion.

2.3. VÉGÉTAUX-SOL-ATMOSPHÈRE

Le dispositif illustré par la figure 8 est destiné à mettre en évidence à la fois le lessivage de l'iodure à partir des végétaux, le dégazage lors de la décomposition des végétaux sur le sol, ainsi qu'à établir s'il existe une corrélation entre l'activité microbienne (dégagement de gaz carbonique) et la production d'iodure volatil.

A cet effet, le montage prévoit la production d'air ne contenant ni iode, ni gaz carbonique. Le premier piège est destiné à retenir l'iodure atmosphérique;

FIG. 9. — Dégazage et réabsorption de l'iode par le sol.

le second enlève le gaz carbonique. Le compartiment central permet d'apporter de l'eau de pluie et d'évacuer les percolats ayant traversé le sol. Le gaz carbonique provenant de l'activité microbienne et l'iode volatil sont retenus simultanément dans un piège renfermant de la soude en solution dans l'alcool. Deux types de réaction se produisent :

Il est donc possible de doser le volume de gaz carbonique produit et la quantité d'iode dégazé.

2.4. SOL-ATMOSPÈRE

Le dégazage de l'iode à partir du sol pose un problème double. Il s'agit, en premier lieu, de déterminer la quantité d'iode susceptible de revenir dans

l'atmosphère et les formes physico-chimiques produites. En second lieu, il est nécessaire d'évaluer la réactivité de cet iode, soit vis-à-vis des végétaux, soit vis-à-vis du sol lui-même.

Dans le montage expérimental de la figure 9 nous avons étudié, sur un sol maintenu en appareil contrôlé pendant sept semaines, quel était le comportement de l'iode. Nous évaluons la quantité d'iode lessivée par percolation, puis la quantité d'iode volatilisé, enfin nous essayons de déterminer la quantité

FIG. 10. — Absorption de l'iode par les végétaux.

d'iode volatil réabsorbable par le sol. Comme dans le montage précédent, nous nous proposons de connaître l'interaction entre l'activité microbienne du sol et l'iode volatil produit.

Ce dispositif vise d'abord à établir une comparaison entre différents types de sols pour ce qui est de la perte en iode, soit par dégazage, soit par percolation. Il importe, en second lieu, de savoir si l'iode absorbé directement à partir de l'atmosphère se répartit de la même manière dans le sol que l'iode apporté par l'eau de pluie. En troisième lieu, il est utile de quantifier la fraction d'iode pouvant être réabsorbée directement par le sol à partir de l'atmosphère.

2.5. SOL-ATMOSPÈRE-VÉGÉTAUX

Dans le cas d'un iode à vie longue, il convient également de savoir quelle est la quantité de cet élément qui peut être absorbée directement par le végétal à partir de l'atmosphère, c'est pourquoi nous avons réalisé le dispositif représenté par la figure 10. Ce montage permet de suivre l'absorption de l'iode volatil par le végétal. Le piège final recueille l'iode non absorbé. La suppression de l'isolement de verre permet de suivre le sol et le végétal. La comparaison entre les deux dispositifs permet de déduire l'absorption racinaire de l'iode déposé au sol par voie atmosphérique. Cette expérimentation permet de dresser un bilan complet de l'iode volatilisé à partir du sol.

3. BILAN ET PRINCIPALES DONNÉES OBTENUS A L'AIDE DE CES DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX

La mise en place d'une telle expérimentation, sur une année complète pour certains dispositifs, nous a fourni une multitude de résultats qu'il n'est pas possible de présenter ici. Cependant, à l'aide de quelques exemples, nous allons illustrer les phénomènes essentiels du cycle de l'iode dans le système sol-plante.

3.1. LES IODURES DANS LES PERCOLATS DE SOLS EN PLACE

Sur sol en place, nous avons suivi pendant une année les apports d'iode par l'eau de pluie et les exportations d'iode par les percolats. Cette expérimentation a été réalisée sur le dispositif de la figure 1. La figure 11 illustre les résultats obtenus pour deux types de sols. Les sols brun acide et podzologique ont reçu les mêmes hauteurs d'eau de pluie et les mêmes quantités d'iode. Le sol podzologique libère globalement plus d'iodure que le sol brun acide. Par contre, on observe deux périodes de temps communes où les percolats exportent plus d'iode que le sol n'en reçoit par l'eau de pluie. La première période se situe en hiver, lorsque la vie microbienne est ralentie et que les pluies sont abondantes. La seconde période se situe en été, lorsque la vie microbienne est à son optimum tandis que le lessivage est moins important. Bien que le bilan soit positif pour les deux saisons, l'origine du phénomène est de nature différente : lessivage en hiver, minéralisation microbienne en été. De même, l'amplitude du phénomène est nettement différente surtout pour le sol podzologique. Pour ce qui est de l'apport d'iode au sol par l'eau de pluie, il existe deux maximums : septembre-octobre d'une part, janvier-février d'autre part. Le premier maximum est lié à la forte teneur en iode de l'eau de pluie; le second à la hauteur d'eau de pluie. Les minimums d'apport d'iode au sol se situent en novembre et mai-juin.

3.2. RÉPARTITION DE L'IODE RADIOACTIF UN AN APRÈS LE DÉPÔT

La répartition de l'iode sur les deux mêmes sols montre une différence de comportement nette. Sur sol brun acide, 90 p. cent de l'iode se situe dans les dix premiers centimètres. La quantité percolée est assez peu importante.

FIG. 11. — Les iodures dans les percolats de deux sols.

FIG. 12. — La répartition de l'activité de l'iode dans deux sols après un an.

Sur sol podzologique, l'iode est concentré dans les deux premiers centimètres; cependant, la fraction percolée est très importante, environ 20 p. cent de l'iode déposé (fig. 12). Le fractionnement de l'iode présent dans le sol met en

évidence un comportement différent de cet élément. Les quantités percolées varient aussi bien quantitativement que qualitativement. Sur sol brun acide, on retrouve surtout des iodures, tandis que sur sol podzolique la fraction d'iode organique est prépondérante.

FIG. 13. — Le dégazage au niveau d'un sol.

3.3. DÉGAZAGE DE L'IODE AU NIVEAU D'UN SOL

La courbe cumulée de l'iode volatil (*fig. 13*) montre que le dégazage n'est pas uniforme dans le temps et qu'il existe une proportion non négligeable d'iode organique, essentiellement de l'iodure de méthyle. Il faut signaler, cependant, que le rapport entre l'iode minéral et l'iode organique dépend, en grande partie, du type de sol. Sur sol hydromorphe, la fraction d'iode

organique peut atteindre jusqu'à 80 p. cent de l'iode volatilisé à partir du sol. Comme pour les percolats, le dégazage présente des maximums et des minimums. Il va sans dire que l'absorption de l'iode ainsi volatilisé sera fonction de la forme physico-chimique. Une expérimentation plus approfondie [2] nous a permis de tirer des conclusions intéressantes pour le cycle de l'iode à vie longue, notamment en ce qui concerne l'absorption foliaire et l'évolution de l'iode d'origine atmosphérique dans le sol.

FIG. 14. — Le dégazage chez les végétaux.

3.4. DÉGAZAGE DE L'IODE AU NIVEAU DES VÉGÉTAUX

Les végétaux frais coupés sont susceptibles de libérer une fraction de l'iode ainsi que le montre la figure 14. Outre ce phénomène qui était d'ailleurs prévisible, notre expérimentation a pu mettre en évidence une différence de dégazage en fonction du mode d'apport de l'iode. En effet, l'iode apporté par voie foliaire est beaucoup plus mobile lorsque le végétal sèche ou se décompose. Ainsi, sur sol brun hydromorphe, la perte en iode gazeux sur 30 jours a été respectivement de 5,1 p. cent (absorption racinaire) et 17,3 p. cent (absorption foliaire et racinaire); la perte totale en iode du végétal est de 12,1 p. cent dans le premier cas et 40,2 p. cent dans le second cas. Par contre, le rapport entre la perte gazeuse et la perte totale est une constante (42,1 et 43) [3, 4]. Ceci montre que le mécanisme de dégazage est identique, mais que l'amplitude dépend du mode d'apport et de l'espèce végétale.

CONCLUSION

La production d'iode 129 dans une usine de traitement de combustibles nucléaires et son rejet dans l'environnement posent des problèmes nouveaux. Il y a lieu de mettre en évidence, pour un site donné, toutes les possibilités de transfert et d'accumulation dans le milieu. Parmi les voies critiques, on peut noter toutes celles qui s'effectuent par l'intermédiaire des formes volatiles, car elles ne concernent plus seulement l'environnement immédiat de la source d'émission, mais s'étendent sur une région beaucoup plus importante. A l'équilibre, il faut aussi tenir compte des sources secondaires : les sols, les végétaux, les résidus divers, ainsi que l'iode émis lors de la transformation des produits alimentaires (laiterie, conserverie, etc.). La mise en place des dispositifs expérimentaux que nous venons de décrire permet de suivre les échanges entre différents milieux et montre les possibilités de transfert et par voie liquide et par voie gazeuse. La production de formes d'iode volatil, dans un milieu donné, paraît être un risque potentiel important dans le transfert de l'iode jusqu'à l'homme.

La mise au point des différents systèmes expérimentaux permet de travailler à l'aide de plusieurs isotopes de l'iode et de mettre en évidence, pour un site donné, le transfert immédiat à l'homme ainsi que les transferts à long terme entre les divers milieux concernés.

REMERCIEMENTS

L'auteur désire remercier ici M^{mes} M. Favre, J. Rapenne et MM. P. Gilles, A. Giuliani et M. Rohan de la collaboration qu'ils ont apportée au cours de cette étude.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] NAKOUTINE I. E., RASTOUNOV L. N., SMIRNOVA N. M. Problèmes au sujet de l'analyse de l'iode radioactif. In *Control of iodine in the nuclear industry*. Technical reports series n° 148, AIEA, Vienne, 1973.
- [2] SAAS A., GRAUBY A. An approach to investigations on the behaviour of iodine 129 in the atmosphere-soil-plant system. *Health Phys.* (sous presse).
- [3] SAAS A., GRAUBY A. Dégagement gazeux d'iode radioactif à partir de végétaux en décomposition. I. Dégazage après absorption foliaire et absorption racinaire. *Note CEA-N-1846* (à paraître).
- [4] SAAS A., GRAUBY A. Dégagement gazeux d'iode radioactif à partir de végétaux en décomposition. II. Formes chimiques de l'iode provenant des végétaux en décomposition. *Note C.E.A.* (à paraître).
- [5] E. TACHIKAWA, NARITOMI T. Chemicals forms of airborne radioiodine in the exhaust air from iodine 131 production plant. *J. Nucl. Sci. Technol.*, 1971, 8, 371-376.
- [6] CHAMBERLAIN A. C. Deposition of airborne radioiodine vapor. *Nucleonics*, 1953, 11, 8, 22-25.
- [7] RICKARD W. H., KLEPPER E. L., HINDS W. T. et coll. Radionuclides in the environment, weathering and aging of transuranics in soil, radioecology of iodine 129 and technetium. radionuclides in Alaska, annual report 1974. BNWL-1950 (Part 2), 1974, 191-207.
- [8] WILDUNG R. E. et coll. Per technetate, iodide and methyl iodide retention by surface soils. BNWL-1950 (Part 2) 1974, 37-40.