

RAPPORTEUR PAPER
OPERATIONAL HEALTH PHYSICS

J. PRADEL

Commissariat à l'Energie Atomique, Paris

LA SÉCURITÉ des installations atomiques est, pour une grande part, fondée sur l'efficacité des dispositifs d'épuration de l'air. Or, l'efficacité de ces dispositifs peut se trouver réduite, parfois dans de très grandes proportions, pour des causes multiples telles que éléments défectueux, montage incorrect, détériorations consécutives au colmatage, empoisonnement par des vapeurs, vieillissement des matériaux. . . .

Il apparaît donc nécessaire:

- d'assurer le contrôle systématique des dispositifs installés,
- d'éliminer les éléments défectueux avant leur mise en place,
- de contrôler les éléments eux-mêmes,
- de contrôler également le medium filtrant.

MM. Billard et Brion préconisent une procédure détaillée pour l'exécution de ces contrôles.

Ils indiquent les caractéristiques contrôlées et les essais correspondants pour les filtres à aérosols à base de papier plissé et les pièges à iode, à base de charbon actif.

En ce qui concerne les filtres, seul le contrôle de l'efficacité est délicat et pour les filtres à haute efficacité, couramment utilisés, il importe de choisir une méthode à la fois sensible et fidèle parmi les nombreuses qui existent: méthode au bleu de méthylène, méthode de la flamme de sodium, méthode au DOP polydispersé, méthode au DOP monodispersé, etc. . . C'est vers la méthode à l'uranine étudiée par L. Silvermann et K. T. Whitby et dont la caractéristique principale est une grande sensibilité que s'orientent MM. Billard et Brion.

Un aérosol liquide est produit par pulvérisation d'une solution aqueuse d'uranine à 1%. Les gouttelettes de diamètre supérieur à 2μ sont arrêtées dans un impacteur. Après évaporation dans un tube chauffant et dilution avec de l'air sec, on obtient un aérosol solide dont le diamètre maximum est voisin de $0,5\mu$. On effectue des

prélèvements en amont et en aval du filtre en essai sur des filtres qui sont ensuite lavés. Les solutions de lavage sont mesurées par fluorimétrie. La sensibilité de la méthode est telle qu'on obtient une mesure du prélèvement aval égale à deux fois le "bruit de fond" pour un volume d'air prélevé de un mètre cube derrière un filtre d'efficacité 10.000 avec, en amont, une concentration en aérosol solide de $4\gamma/m^3$ seulement.

Parmi les autres caractéristiques vérifiées sur les éléments filtrants, citons: la capacité de colmatage, l'ininflammabilité, l'inaltérabilité à l'eau, la tenue à la température, la résistance mécanique.

Le contrôle des pièges à iode est, comme pour les filtres à aérosols, divisé en trois parties:

- contrôle du matériau adsorbant, c'est-à-dire du charbon actif,
- contrôle de l'élément adsorbant,
- contrôle du piège installé sur le site.

Parmi les caractéristiques vérifiées sur le charbon: densité, humidité, granulométrie, perte de charge, friabilité, pH, température d'inflammation, l'efficacité à l'iode est évidemment la caractéristique essentielle. Pour les contrôles d'efficacité, le mode de génération d'iode 131 doit être soigneusement étudié. Les auteurs préconisent de faire passer de l'iode 127 sous forme vapeur mélangée à l'air sur un dépôt d'iodure 131 par échange isotopique à température ambiante.

Des expérimentateurs anglais et américains ayant démontré l'existence de la forme iodure de méthyle et la possibilité de la piéger au moyen de charbon imprégné, il apparaît nécessaire à MM. Billard et Brion de contrôler à l'iodure de méthyle de tels charbons. L'iodure de méthyle gazeux marqué à l'iode 131 est produit suivant un procédé utilisé par Collins, puis envoyé pour l'essai dans un circuit d'air conditionné à 90%

d'humidité. Les pièges de référence sont constitués de couches de charbon de houille activé imprégné à 5% de triéthylènediamine.

En dehors des examens de conformité concernant les dimensions, les dispositifs garantissant le maintien du tassement, la protection, les joints, etc. . . . , on vérifie les caractéristiques suivantes sur les éléments adsorbants:

- perte de charge
- efficacité à l'iode
- résistance aux chocs et vibrations.

Le contrôle in situ à l'iode moléculaire est effectué par les auteurs suivant la méthode déjà décrite pour le charbon actif. Ils utilisent une source d'iode portative de 3 Curies.

L'expérience prouve qu'il est nécessaire de contrôler assez fréquemment—plusieurs fois par an—les pièges à iode installés sur un circuit en fonctionnement permanent. En effet, l'efficacité du charbon actif vis-à-vis de l'iode est affectée par des vapeurs diverses, en particulier par celles émises par les peintures. Pour réduire la fréquence des essais in situ, toujours onéreux et souvent gênants pour l'exploitation, MM. Billard et Brion font installer, en dérivation sur le piège principal, un ou deux petits pièges témoins qu'il est facile de retirer de temps à autre pour un contrôle d'efficacité au laboratoire.

MM. Hans Flyger et H. C. Rosenbaum se sont eux essentiellement penchés sur le problème des tests de filtres in situ. Ils comparent le test proposé avec utilisation d'un aérosol provenant d'une solution au sulfate de lithium à 2%, aux tests classiques avec le bleu de méthylène ou le chlorure de sodium associé à la photométrie de flamme. Les avantages suivants sont obtenus avec la méthode préconisée:

Il n'est plus nécessaire comme dans le cas du chlorure de sodium d'obtenir une génération très stable puisque l'on n'effectue plus un étalonnage par prélèvement amont de courte durée.

Il n'est pas nécessaire également d'avoir une liaison entre les points de prélèvement amont et aval, et de posséder un photomètre spécialement adapté et non commercialisé.

Le test proposé consiste à utiliser un générateur comme dans la méthode à l'uranine décrite précédemment, type Collison, pour obtenir un aérosol sec de $0,6 \mu$ de diamètre en moyenne et à effectuer des prélèvements amont et aval sur

membrane filtrante. Un traitement approprié de ces membranes en phase liquide permet de doser le lithium contenu dans la solution par photométrie de flamme. On préfère le lithium au sodium car il est beaucoup moins répandu dans la nature, et bien que la sensibilité de la méthode soit 10 fois moindre théoriquement, elle se révèle pratiquement supérieure. Il ne faut pas oublier, en effet, que l'on peut avoir jusqu'à 20 mg/m^3 de CINa dans l'air au voisinage des mers.

Signalons pour le traitement des filtres de prélèvement que, après l'attaque nitrique, l'adjonction d'acétone associée à une filtration permet aux auteurs d'obtenir par photométrie une réponse linéaire en fonction de la concentration et une meilleure sensibilité. On peut alors mesurer $2.10^{-4} \gamma/\text{ml}$ soit une quantité de sulfate de lithium de $7.10^{-3} \gamma$ par prélèvement.

Pour comparer les diverses méthodes, MM. Flyger et Rosenbaum ont testé sur banc d'essai 3 types de filtres avec la méthode au sodium activé, associée à une mesure de la radioactivité du prélèvement, avec celle au lithium et aussi avec le compteur de Pollak qui permet le dénombrement des noyaux de condensation naturellement présents ou créés artificiellement. Ils ont obtenu des résultats comparables pour les deux premiers tests, mais avec le troisième ont observé une pénétration plus grande.

Un contrôle in situ sur la ventilation du réacteur DR3 à Riso a été effectué. Le débit de cette installation est de $6000 \text{ m}^3/\text{h}$ avec des gaines de 1 m^2 de surface. Les premiers essais ont donné les résultats suivants pour la perméabilité: 0,69–0,70–0,10 et 0,60. La dispersion s'explique par la non observation de règles fondamentales pour obtenir une bonne génération et de bons prélèvements. En respectant les règles préconisées récemment par Smith: distance de l'ordre de 30 diamètres entre l'injection et le point de prélèvement amont avec interposition souhaitable d'écrans ou de coudes, et distance identique entre filtre et prélèvement aval, on a obtenu les valeurs stables suivantes:

0,06 avec le lithium en accord avec le test au CINa

0,12 avec le compteur de Pollak.

Au cours d'un autre essai avec un autre filtre placé en parallèle, on a également obtenu des résultats analogues.

Il existe donc un test commode au lithium qui peut être remplacé pour des débits élevés par un test basé sur le comptage des noyaux de condensation avec le compteur de Pollak avec ou sans enrichissement de l'air en noyaux.

Etudiant à l'échelon du laboratoire le piégeage de l'iode radioactif dans l'air, MM. Hacke et Jacobi, décrivent un cycle d'expérimentation effectué en vue de déterminer la perméabilité vis-à-vis des différentes formes d'iode radioactif de filtres à fibres, de pièges en charbon activé et de filtres combinés.

(1) Dans une première série d'expériences, quatre membranes filtrantes en série suivies d'un piège en charbon activé sont traversées par un courant d'air, à la température de 20-22°C, à 35-45% d'hygrométrie et contaminé à l'iode 132.

Les efficacités mesurées, rapport de l'activité dans le piège à l'activité totale dans l'air filtré, sont respectivement pour les quatre membranes de 55-11-10-6 et de 15% pour le charbon.

Ces essais montrent que, après le premier filtre, la perméabilité varie exponentiellement en fonction du nombre de filtres en série et que l'on est en présence de deux formes physiques d'iode:

- une forme arrêtée par les filtres
- une forme mal arrêtée par les filtres qui auraient une efficacité de l'ordre de 26% vis-à-vis de celle-ci.

La forme arrêtée serait de l'iode fixé sur les aérosols et représenterait 40% de l'activité de l'iode présent dans l'air.

(2) Des expériences identiques ont été effectuées avec quatre cartouches garnies de charbon activé, en série, suivies d'une seule membrane filtrante.

Les efficacités mesurées sont respectivement de 92,2-0,19-0,14 et 0-12 pour le charbon et de 0,35% pour le filtre. Après le premier piège, la perméabilité varie exponentiellement.

On a encore dans ce cas:

- une forme d'iode bien arrêtée représentant 99% de l'activité totale comprenant de l'iode à l'état élémentaire et de l'iode fixé sur les aérosols,
- une forme d'iode mal arrêtée, que l'on peut évaluer en moyenne dans les conditions d'essais à 1% et qui est probablement composée d'io-

dures organiques, principalement d'iodure de méthyle, et d'iode adsorbé sur des aérosols fins mal arrêtés par les pièges en charbon. L'efficacité des charbons vis-à-vis de ces formes est en moyenne de 24%.

(3) Enfin, dans une troisième série d'expérience, les auteurs ont examiné la perméabilité de trois filtres combinés, constitués par une membrane et un piège en charbon, placés en série.

Là encore, ils constatent que la perméabilité après le premier filtre varie exponentiellement et ils en déduisent que si l'efficacité totale du premier est de 99,9%, celle des suivants n'est plus que de 43%. La forme vapeur mal piégée serait principalement l'iodure de méthyle et représente, 0,1% de l'activité totale.

En conclusion, les auteurs estiment que dans les conditions de leur expérimentation, l'iode présent dans l'air se trouve sous trois formes:

(1°) une forme fixée sur les aérosols, presque totalement arrêtée par les filtres fibreux et partiellement dans le charbon activé, et représentant 40% de l'activité totale,

(2°) une forme vapeur, à l'état élément, arrêtée presque totalement par le charbon activé et partiellement par les membranes et représentant 60% de l'activité,

(3°) une forme vapeur à l'état combiné (iodure de méthyle principalement) arrêtée à 40-50% par le charbon activé et représentant 0,1% de l'activité.

Ces proportions sont des résultats moyens qui sont appelés à varier en fonction de la concentration de l'air en iode et de l'humidité relative. On a, en particulier, pour l'iodure de méthyle les perméabilités suivantes:

- 0,3% pour 10^{-6} Ci/m³ d'I₁₃₂ et
- 0,003% pour 10^{-3} Ci/m³ d'I₁₃₂

Les auteurs rappellent enfin que l'humidité fait croître la valeur de la composante mal filtrée et que des charbons imprégnés spécialement permettent d'avoir une efficacité de 99% pour l'iodure de méthyle.

MM. Yoshida, K. Kitano, M. Murata s'intéressent à la comparaison des mediums filtrants.

Ils examinent les différentes caractéristiques: efficacité, perte de charge, pénétration de différents filtres, soit japonais, soit étrangers, utilisés par la Japan Atomic Energy Research

Institute. L'aérosol test utilisé est le dépôt actif du thoron et le filtre de référence la membrane millipore AA. La granulométrie de l'aérosol a été effectuée par microscopie électronique, et a montré que la presque totalité des particules avait un diamètre inférieur à $0,1 \mu$.

La mesure de l'efficacité des filtres est effectuée en comparant la radioactivité collectée sur une première membrane millipore, placée derrière le filtre à étudier, à celle collectée sur une seconde placée en parallèle.

Le diamètre des filtres étudiés est de 40 mm et les vitesses de passage de 32–48 et 64 mètres/minute.

Pour les filtres celluloses, les auteurs ont constaté une augmentation de l'efficacité en fonction de la vitesse de passage en bon accord avec les résultats déjà publiés dans ce domaine.

Pour mesurer la pénétration, deux méthodes sont utilisées:

—La première basée sur l'évaluation des pertes $\alpha\beta$ dues à la pénétration de l'aérosol,

—La deuxième basée sur la mesure de la résolution d'un pic α obtenu par spectrométrie.

La membrane millipore AA est prise en référence en considérant qu'il n'y a pas pénétration de l'aérosol à l'intérieur du filtre.

Avec la méthode de la perte de comptage, la radioactivité α ou β est tout d'abord déterminée sur le filtre et sur la membrane de référence. Un comptage γ (pic 0,239 MeV du ThC) est ensuite effectué. Le rapport des valeurs $\frac{\alpha}{\gamma}$ ou $\frac{\beta}{\gamma}$ pour le filtre étudié et pour la membrane donne une efficacité relative de collection en surface.

L'efficacité de collection en surface varie de 0,12 à 0,95 pour le comptage α et de 0,36 à 0,89 pour le comptage β pour les différents filtres étudiés sans que l'on ait constaté de différences significatives lorsque l'on opère à des vitesses de 32, puis 64 m/mn.

Pour la méthode de la résolution d'un pic α , les auteurs utilisent le pic α de 8,77 MeV du ThC' et font la mesure à l'aide d'un détecteur à jonctions associé à un spectromètre multicanaux.

Les résultats obtenus indiquent une amélioration de la résolution en fonction de la vitesse. Ces résultats semblent s'accorder avec la loi théorique qui prévoit une augmentation de la contribution de l'effet d'impact aux grandes vitesses.

La résolution pour la membrane prise comme référence étant de 8%, les résolutions pour les autres filtres varient de 16 à 46%.

De ces résultats, il ressort que parmi les filtres essayés ceux qui arrêtent le mieux l'aérosol en surface sont les filtres de fibres de verre Gelman E et GB 100 et le filtre japonais HE 40.

Un tableau récapitulatif compare les résultats obtenus pour ces filtres par divers auteurs avec différents aérosols et il n'y apparaît pas de différence significative.

Quant à MM. K. G. Vohra et P. V. N. Nair, ils s'intéressent, eux, à l'élimination des poussières par une utilisation judicieuse des dispositifs d'épuration. Ils remarquent que les particules radioactives dans l'air qui présentent une nocivité importante d'après le nouveau modèle pulmonaire préconisé par l'I.C.R.P., sont essentiellement submicroniques et que la rétention de ces particules par des filtres absolus est en général très coûteuse. Aussi proposent-ils l'utilisation d'un précipitateur électrostatique mobile à haute efficacité qui permet la filtration d'un grand volume d'air par recyclage. Les caractéristiques principales de cet appareil particulièrement adapté à l'épuration d'air peu chargé en poussière, comme cela est le cas des zones de travail, sont:

- perte de charge faible pour un grand volume d'air traité,
- efficacité particulièrement élevée pour les particules submicroniques,
- puissance d'aspiration moins élevée de plusieurs ordres de grandeur que pour les filtres mécaniques,
- mobilité du filtre.

Le système de filtration comprend un préfiltre en Dacron, un ioniseur et un collecteur, et un ventilateur.

Pour un débit de $100 \text{ m}^3/\text{mn}$, il a les dimensions suivantes:

- largeur et profondeur 85 cm
- hauteur 180 cm

Les auteurs fournissent un certain nombre de résultats expérimentaux.

(a) Tout d'abord, ils ont étudié la décontamination d'une enceinte polluée avec du dépôt actif du thoron.

Pendant la génération de thoron, une fois l'équilibre atteint, le précipitateur est mis en

marche. Après 50 minutes, l'activité de la pièce, d'un volume de 80 m³, est inférieure au mouvement propre.

(b) Ensuite ils ont étudié la rétention des produits de filiation du ⁸⁶Kr et ¹³⁶Xe présents dans le hall de la pile piscine Apsara.

Le volume du hall étant de 280 m³, un volume d'air équivalent est filtré en deux minutes environ et la décontamination de la pièce est obtenue après 4 à 5 renouvellements.

(c) De même, la décontamination d'un atelier de broyage de thorium où les thorium B et C sont à l'équilibre est obtenue après 30 à 40 minutes au bout desquelles il ne reste qu'une activité négligeable.

Les auteurs concluent que cet appareil est parfaitement adapté à l'épuration de volumes importants d'air avec recyclage, qu'on peut atteindre des taux de renouvellement de l'ordre de un par minute sans encombrement excessif de l'installation, et qu'une telle technique permet d'envisager d'effectuer à l'air libre certains travaux normalement effectués en boîtes à gants.

J'ai terminé la présentation des travaux décrits dans ces cinq documents où des résultats très complets ont été obtenus par les auteurs dans le domaine de l'épuration de l'air, domaine fort important pour la radioprotection.

Vous avez pu constater que des méthodes précises et relativement faciles à mettre en oeuvre existent maintenant pour effectuer les différents contrôles nécessaires à toutes les étapes

de la construction de l'installation et de l'exploitation d'un dispositif d'épuration. L'utilisation de ces tests nous a montré à nous-mêmes l'existence de défauts fréquents et d'origines très diverses et l'expérience ainsi acquise nous amène à insister très fortement pour que les procédures de contrôle, maintenant faciles à élaborer, le soient rigoureusement. La sécurité des installations sera ainsi accrue d'une façon considérable et ce à peu de frais.

Dans le domaine de l'épuration de l'iode, les problèmes sont maintenant assez bien résolus et l'on doit étudier s'il est judicieux de remplacer les charbons actifs par des charbons spécialement imprégnés pour arrêter l'iodure de méthyle tout en tenant compte du prix élevé de ces charbons.

Enfin, je partage le point de vue de MM. Vohra et Nair qui préconisent l'utilisation de recyclage dans les ventilations. Ces recyclages d'un air conditionné doivent entraîner des diminutions importantes dans le coût des ventilations; la solution qu'ils préconisent avec de très forts débits mérite d'être envisagée et il faut retenir la possibilité de faire ainsi certaines manipulations en supprimant les enceintes étanches.

De façon générale, la connaissance plus profonde des performances des dispositifs d'épuration doit nous amener à leur meilleure définition dans chaque cas particulier ce qui doit contribuer non seulement à l'augmentation de la sûreté mais aussi à la diminution du coût des installations.