
Norme internationale



6962

INTERNATIONAL ORGANIZATION FOR STANDARDIZATION • МЕЖДУНАРОДНАЯ ОРГАНИЗАЦИЯ ПО СТАНДАРТИЗАЦИИ • ORGANISATION INTERNATIONALE DE NORMALISATION

Méthode normalisée d'essai de la stabilité à long terme à l'irradiation alpha des formes de déchets solidifiés de haute activité

Standard method for testing the long term alpha irradiation stability of solidified high-level radioactive waste forms

Première édition — 1982-05-01

iTeh STANDARD PREVIEW
(standards.iteh.ai)

[ISO 6962:1982](#)

<https://standards.iteh.ai/catalog/standards/sist/e6544e75-503b-49f8-a631-ec08ef711c41/iso-6962-1982>

CDU 621.039.7

Réf. n° : ISO 6962-1982 (F)

Descripteurs : source de rayonnement, matière radioactive, déchet, essai, irradiation, stabilité, mesurage, percolation, mesurage de densité, radioactivité, dosimétrie.

Avant-propos

L'ISO (Organisation internationale de normalisation) est une fédération mondiale d'organismes nationaux de normalisation (comités membres de l'ISO). L'élaboration des Normes internationales est confiée aux comités techniques de l'ISO. Chaque comité membre intéressé par une étude a le droit de faire partie du comité technique correspondant. Les organisations internationales, gouvernementales et non gouvernementales, en liaison avec l'ISO, participent également aux travaux.

Les projets de Normes internationales adoptés par les comités techniques sont soumis aux comités membres pour approbation, avant leur acceptation comme Normes internationales par le Conseil de l'ISO.

La Norme internationale ISO 6962 a été élaborée par le comité technique ISO/TC 85, *Énergie nucléaire*, et a été soumise aux comités membres en décembre 1979.

iTeh STANDARD PREVIEW
(standards.iteh.ai)

Les comités membres des pays suivants l'ont approuvée :

| | | |
|-------------------------|---|---|
| | https://standards.iteh.ai/catalog/standards/sist/e6544e75-503b-49f8-a631-ec08ef711c41/iso-6962-1982 | ISO 6962:1982 |
| Afrique du Sud, Rép. d' | Hongrie | Royaume-Uni |
| Allemagne, R. F. | Italie | Suède |
| Autriche | Japon | Suisse |
| Belgique | Mexique | Tchécoslovaquie |
| Brésil | Nouvelle-Zélande | Turquie |
| Canada | Pays-Bas | URSS |
| Égypte, Rép. arabe d' | Philippines | USA |
| Finlande | Pologne | |
| France | Roumanie | |

Aucun comité membre ne l'a désapprouvée.

Méthode normalisée d'essai de la stabilité à long terme à l'irradiation alpha des formes de déchets solidifiés de haute activité

0 Introduction

On admet généralement que la meilleure forme de stockage ou d'élimination des déchets fortement radioactifs au premier stade d'une usine de retraitement des combustibles nucléaires est la forme solide. Ce solide se présente actuellement sous la forme d'un bloc pouvant peser plusieurs centaines de kilogrammes, que l'on coule ou que l'on moule dans des réservoirs en acier. Le matériau le plus apprécié est un verre au borosilicate, mais des alternatives possibles comprennent :

- a) des céramiques ou des vitro-céramiques, ou,
- b) un mélange biphasique de perles de verre dispersées dans une matrice métallique.

Ce solide va recevoir une forte dose de rayonnements de toutes sortes et il est primordial que cette irradiation n'altère pas de façon significative ses propriétés pendant de très longues périodes de temps. Ainsi, les compositions proposées doivent donc être soumises à l'essai pour vérifier leur stabilité à l'irradiation.

Bien que la désintégration β des produits de fission dépasse de beaucoup en nombre la désintégration α des actinides incorporés, la presque totalité de l'énergie des particules β (électrons) se dissipe par ionisation des atomes sur leur trajectoire; ce facteur n'a donc qu'un effet transitoire. Presque tous les déplacements d'atomes se produisant dans le solide résulteront donc des désintégrations α , leur grande majorité étant attribuable au recul des noyaux actinides. C'est donc la stabilité du solide aux désintégrations α qu'il convient de vérifier.

1 Objet et domaine d'application

La présente Norme internationale spécifie une méthode destinée à vérifier la stabilité à long terme d'un solide aux désintégrations alpha, par détection de toute modification des propriétés d'un échantillon irradié.

2 Références

ISO 6961, *Essai de lixiviation de longue durée des formes de déchets radioactifs solidifiés*.¹⁾

ISO 6963, *Essai de lixiviation au Soxhlet des déchets radioactifs solidifiés*.¹⁾

1) Actuellement au stade de projet.

3 Principe

La plupart des déplacements d'atomes étant dus au recul des noyaux actinides, une irradiation externe par des particules α ne constitue pas une simulation satisfaisante. On procède par conséquent comme suit : on prépare un échantillon du solide envisagé en reproduisant de manière réaliste la concentration adéquate des éléments des produits de fission; ceux-ci peuvent être (et généralement, pour plus de commodité seront) les isotopes non actifs. On «dope» cet échantillon avec un émetteur α à courte période radioactive de façon qu'il reçoive, disons en un an, le même nombre de désintégrations α par gramme que le milieu réel de stockage sur un temps beaucoup plus long. Les propriétés importantes de l'échantillon peuvent alors être examinées quant à leur modification.

A noter que c'est la détection d'une modification quelconque des propriétés de l'échantillon irradié qui est importante. Les deux essais ISO de lixiviation prescrits en 9.1 permettent de détecter convenablement toute modification significative. Ils donnent donc toute satisfaction dans le contexte considéré, alors qu'ils n'ont qu'une signification limitée quant à l'environnement.

4 Méthode d'essai

4.1 Calcul de la dose nécessaire

On peut calculer à l'aide d'un code informatique la concentration en actinides du combustible irradié considéré. Il faut ensuite évaluer la quantité d'actinides déjà incorporés ou à incorporer au flux de déchets fortement radioactifs de l'usine de retraitement. Si l'on ne dispose pas de cette information, il faut partir de l'hypothèse que tout l'américium, tout le curium et 0,5 à 1 % du plutonium seront incorporés dans le verre. La quantité de plutonium subsistant dans le flux de déchets n'influe de manière significative que sur la dose de rayonnement absorbée par le solide après des milliers d'années. À plus brève échéance, l'isotope le plus important est le ^{241}Am .

On a calculé à titre d'exemple le nombre de désintégrations par gramme de solide, dans un ensemble de conditions données, de déchets de réacteurs à eau légère pressurisée. Ce calcul est donné à l'annexe A et à la figure 1.

Il faut enfin décider de l'âge du solide à simuler. Il est recommandé de choisir au moins plusieurs milliers d'années.

4.2 Choix de l'isotope à utiliser

Le ²³⁸Pu, le ²⁴¹Am, le ²⁴²Cm et le ²⁴⁴Cm ont tous été utilisés pour doper les verres de confinement des déchets radioactifs simulés. Le choix effectué dépend souvent de la disponibilité; les critères suivants sont néanmoins à considérer :

a) le ²³⁸Pu est plus facile à manipuler que les deux isotopes du curium;

b) les périodes radioactives sont :

- ²³⁸Pu 87,7 ans
- ²⁴¹Am 433 ans
- ²⁴²Cm 163 jours
- ²⁴⁴Cm 18,1 ans

Il faut donc pour un débit de dose donné, ajouter par exemple plus d'américium ou de plutonium que de curium. C'est la raison pour laquelle également l'usage du ²⁴¹Am n'est pas recommandé.

c) l'oxyde de plutonium n'est pas très soluble dans les verres borosilicatés complexes¹⁾ et le ²³⁸Pu ne convient pas du tout à cet égard. Pour vérifier qu'il n'y a pas de ségrégation globale, il convient de pratiquer une autoradiographie sur une éprouvette découpée à l'intérieur de l'échantillon.

Une fois la dose requise décidée, on peut déterminer la concentration nécessaire de l'isotope choisi donnant cette dose dans un délai raisonnable. Le calcul se fait là encore, cas par cas, en raison des variations de pureté isotopique de l'actinide disponible. Voir exemples en annexe B et la figure 2.

5 Composition de l'échantillon

La composition des échantillons d'essai doit être aussi voisine que possible de celle des déchets industriels.

Pour altérer au minimum la chimie des solides, on ajoutera aux déchets simulés, du curium au lieu a) d'autres actinides et b) des éléments de terres rares sur la base d'un atome pour un atome. De la même manière, ²³⁸Pu doit remplacer d'abord Ce ou U et puis, si nécessaire, certaines terres rares.²⁾

On préparera également des échantillons non dopés pour permettre les comparaisons.

6 Préparation de l'échantillon

Ceci peut être testé, par exemple, par autoradiographie et examen au microscope. Il est essentiel de vérifier la distribution uniforme du dopant α dans le matériau. Ainsi, pour un matériau

non vitreux, la distribution des actinides dans les phases cristallines doit être connue et le dopant doit se répartir de la même façon. Si ce n'était pas le cas, une image réaliste du dommage ne peut être obtenue. Ceci est vrai, parce que les particules α (qui causent une ionisation) peuvent pénétrer dans des phases adjacentes à celle où la désintégration se produit. Les noyaux de recul, qui causent des déplacements atomiques, parcourent de faibles distances (environ 100 Å) et provoquent seulement un dommage dans les phases où la désintégration a lieu.

7 Mesures avant stockage

Des mesures sont à faire sur les échantillons dopés et non dopés dès la fin de leur préparation. Elles portent sur

- a) la masse volumique;
- b) le taux de lixiviation par une méthode à court terme;
- c) l'examen au microscope d'une section mince;
- d) l'examen de la diffraction des rayons X (pour les matières autres que complètement vitreuses);
- e) les propriétés de broyage-concassage (facultatif).

Les techniques à utiliser sont indiquées ci-après (voir liste au chapitre 9).

8 Stockage

Les échantillons doivent être stockés à température ambiante pendant la période prédéterminée, qui sera souvent d'un an ou plus. Le stockage doit se faire en air sec. On peut aussi stocker une seconde série d'échantillons à une température élevée appropriée.³⁾

9 Mesures pendant et après stockage

Les propriétés les plus importantes des solides sur le plan du stockage sont : la vitesse de lixiviation, la masse volumique, l'énergie emmagasinée et l'intégrité structurale. Dans certains cas, le dégagement d'hélium peut être important.

Dans le présent contexte, il est d'une importance primordiale de détecter les modifications dues au rayonnement et en conséquence, il convient de suivre la même procédure avant, pendant et après stockage et sur les échantillons dopés et non dopés.

1) Habituellement moins de 3 % en poids.

2) Le cérium comprend environ 9 % en poids des produits de fission non volatils et les terres rares environ 22 % en poids. La concentration en U variera en fonction de l'efficacité de la méthode de retraitement utilisée.

3) Si les déchets qui ont été stockés pour décroissance pendant plusieurs années doivent être solidifiés dans des cylindres de grand diamètre, la vitesse de refroidissement du solide au voisinage du centre du solide sera très lente et il peut s'avérer adéquat de conserver un échantillon à température élevée. Il semble néanmoins probable que les effets des rayonnements aillent en s'atténuant lorsque la température augmente, d'où l'importance de stocker les échantillons à la température minimale qu'a connu le solide.

9.1 Vitesse de lixiviation

Un essai de lixiviation normalisé ISO (voir ISO 6961) doit être mis en route dès que les échantillons sont prêts.

L'essai doit être répété à la fin de la période nécessaire de stockage. Si cette dernière est brève, les deux essais peuvent se recouper dans le temps. Des essais comparatifs doivent également avoir lieu sur des échantillons non dopés. Un essai de lixiviation au Soxhlet (voir ISO 6963) doit être effectué avant et après stockage, les résultats étant comparés sur des échantillons dopés et non dopés.

9.2 Masse volumique

On peut utiliser une technique fondée soit sur la poussée d'Archimède soit sur la flottaison. On mesure la masse volumique du même échantillon avant et après stockage, et à intervalles donnés au cours du stockage. On mesure également, en même temps à chaque fois, la masse volumique des échantillons non dopés pour vérifier aussi bien les techniques de mesure que les effets du stockage. Un minimum de quatre mesures est requis, de manière à fournir une indication d'orientation.

9.3 Énergie emmagasinée

Elle peut se mesurer par analyse thermique différentielle ou à l'aide d'un calorimètre à balayage différentiel, depuis la température de stockage jusqu'à une température proche du point de ramollissement. Un échantillon de même composition, après recuit ou provenant d'un lot non dopé constitue une référence idéale. De même, un minimum de quatre mesures est nécessaire.

9.4 Propriétés optiques et cristallographiques

Une microscopie optique doit être effectuée pour détecter les microfissures. Les micrographies de la même zone doivent être exécutées avant, pendant et après irradiation. Si l'on observait un diagramme de diffraction sur des échantillons fraîchement préparés, il faudrait répéter l'exposition et les diagrammes seraient examinés pour détecter les modifications, spécialement les profils des lignes de diffraction qui peuvent indiquer une déformation accrue et des lignes d'intensité qui peuvent indiquer une instabilité des phases. De même que ci-dessus, un minimum de quatre mesures est nécessaire.

9.5 Essai de broyage-concassage (facultatif)

Un essai de broyage-concassage permet de détecter les modifications grossières des propriétés mécaniques du solide ainsi que les amorces de fissurations. Il n'existe actuellement aucun essai normalisé agréé mais une méthode en usage est décrite dans l'annexe C.

9.6 Dégagement d'hélium (facultatif)

S'il y a dégagement d'hélium dans le solide (provenant des particules α), il est possible que le conteneur se mette en pression, surtout si peu d'espace vide y a été laissé, au-dessus du solide. Ce phénomène s'étudie en stockant un échantillon dans une capsule étanche à l'hélium. À la fin de la période de stockage, on mesure la quantité d'hélium échappée de l'échantillon qui s'est accumulée dans la capsule, la mesure étant faite de préférence par spectrométrie de masse.¹⁾

10 Procès-verbal d'essai

Le procès-verbal d'essai doit faire état des informations suivantes exprimées en unités SI.

10.1 Caractéristiques du solide

Tableau comparatif de la composition des déchets réels et simulés.

Intervalle de temps et dose simulée.

Concentration et activité de l'isotope dopant.

10.2 Méthode de préparation

Matériaux utilisés à la fois dans l'usine et pour les échantillons.

Température de fusion.

Cycle de refroidissement après préparation, tant pour les déchets réels que pour les échantillons.

Autoradiographie de l'échantillon.

Éventuellement :

micrographie optique de l'échantillon.

Le cas échéant (sauf pour les matières totalement vitreuses) :

- a) résultats de l'analyse de diffraction des rayons X;
- b) identification et proportion de toute phase cristalline observée.

10.3 Temps de stockage

Temps de stockage et graphique de dose cumulée en fonction du temps.

Température de stockage, avec variations éventuelles.

1) Il semble peu probable qu'un verre stocké à température ambiante puisse laisser échapper une fraction significative d'hélium.

10.4 Résultats d'essai

Date de préparation des échantillons et dates des essais.

Les résultats seront représentés graphiquement en fonction de la dose α [éventuellement, en fonction des déplacements par atome (dpa)]. La précision des résultats sera fournie. Le modèle utilisé pour convertir la dose en dpa doit être référencé.

10.4.1 Essais de lixiviation

On mentionnera les résultats des essais ISO normalisés de lixiviation de la manière spécifiée dans l'ISO 6961 et l'ISO 6963.

10.4.2 Mesures de masse volumique

Technique utilisée :

a) méthode de la poussée d'Archimède :

- liquide utilisé;
- masse volumique et température du liquide;
- poids de l'échantillon dans l'air et dans le liquide;
- masse volumique résultante.

b) méthode de flottaison :

- liquides utilisés;
- température;
- proportions des liquides utilisés;
- masse volumique résultante.

10.4.3 Énergie emmagasinée

- technique utilisée;
- méthode d'étalonnage;

— taille de l'échantillon et méthode de préparation pour l'essai;

— graphique de l'énergie dégagée en fonction de la température;

— énergie totale emmagasinée.

10.4.4 Examen cristallographique (sauf pour les matières totalement vitreuses)

Résultats de l'examen cristallographique, effectué après stockage et comparaison de ces résultats avec ceux d'essais effectués sur l'échantillon fraîchement préparé, en notant tout spécialement les modifications de largeur et profil et intensité des lignes.

10.4.5 Essai de broyage-concassage (facultatif)

— dimensions de l'échantillon;

— diamètre interne de l'anneau du dispositif de broyage-concassage;

— pression de rupture de l'échantillon et pression finale;

— diamètre moyen de particules résultant.

10.4.6 Dégagement d'hélium (facultatif)

— dimensions de l'échantillon;

— détail de la capsule;

— température de stockage;

— méthode de détection de l'hélium;

— quantité d'hélium détecté ou limite inférieure de détection si aucune teneur en hélium n'est détectée;

— fraction de dégagement calculé.

ITeH STANDARD PREVIEW
(standards.iteh.ai)

<https://standards.iteh.ai/catalog/standards/sist/e6544e75-503b-49f8-a631-ec08ef711c41/iso-6962-1982>

Annexe A

Calcul du nombre de désintégrations α par gramme de verre de confinement de déchets réels

L'exemple considéré ici concerne les déchets d'un réacteur à eau légère pressurisée (PWR) à combustible à base d'oxyde d'uranium enrichi à 3,2 % de ^{235}U , irradié jusqu'à un taux total de combustion de 33 000 megawatts jours/tonne de métaux lourds, pour une puissance moyenne de combustion de 27 megawatts/tonne (MW/t).

La quantité d'actinides d'origine diverse retrouvés dans le combustible a été calculée à l'aide d'un code informatique. Le code utilisé pour les résultats ci-dessous est le code HYLAS [1] mais d'autres codes, tel ORIGEN [2], donnent des résultats similaires (voir ci-dessous).

On part ensuite de l'hypothèse qu'un temps de refroidissement donné est nécessaire avant traitement. Cela permet en effet de laisser se désintégrer les produits de fission à courte période et de réduire ainsi la quantité de blindage et de réfrigération nécessaire au niveau de l'usine de retraitement. Pour ce qui concerne les actinides, on observe les effets suivants :

- ^{242}Cm se désintègre en ^{238}Pu avec une période de 163 jours.
- ^{241}Pu (émetteur β) se désintègre en ^{241}Am avec une période de 15 ans. Le premier de ces effets réduit la dose absorbée par le verre; le second l'augmente.

On fait également un certain nombre d'hypothèses concernant l'usine de retraitement, à savoir :

- que tous les actinides sauf Pu et U sont envoyés aux déchets fortement radioactifs, et

b) que 1 % du Pu et de l'U du combustible irradié se retrouve dans les déchets (il s'agit d'une hypothèse très prudente et sans grandes conséquences en ce qui concerne la dose absorbée par le verre dans les quelques premiers milliers d'années).

Le verre fabriqué est censé contenir 12,5 % en poids de produits de fission, soit environ 15,6 % en poids d'oxydes de produits de fission. Le verre contient également des actinides et d'autres éléments de déchets comme produits de corrosion, poisons absorbant les neutrons et produits chimiques de traitement.

On porte sur la figure 1 le nombre de désintégrations α par gramme de solide en fonction du temps de stockage, à trois intervalles de temps de refroidissement pris en hypothèse avant retraitement, soit 6 mois, 2 ans et 10 ans. On considère que la solidification est faite immédiatement après retraitement. On peut ainsi voir qu'un bref intervalle de refroidissement donne initialement une dose plus élevée absorbée par le solide, en raison de la désintégration de ^{242}Cm , mais que le temps de stockage augmentant, plus le temps de stockage augmente, plus la dose est élevée en raison de la plus grande quantité de ^{241}Am se trouvant dans les déchets.

La verticale tracée sur le graphique à 1 000 ans montre la dispersion des valeurs obtenues pour un combustible refroidi pendant 6 mois et pendant 10 ans, selon les codes informatiques employés et la bibliographie.

Annexe B

Dose absorbée par les échantillons selon les isotopes de dopage

La figure 2 indique la dose que pourrait absorber le verre en cas de dopage du solide à l'aide de quelques concentrations possibles de ^{242}Cm , ^{244}Cm ou ^{238}Pu .

L'exemple donné pour utiliser les deux graphiques est celui d'un solide contenant 12,5 % en poids de produits de fission

d'un combustible refroidi pendant 2 ans avant traitement et vitrification et qui reçoit $1,5 \times 10^{18}$ désintégrations α par gramme au cours des 1 000 premières années. Ce processus peut être simulé sur environ 6 mois en dopant un échantillon à l'aide de 0,1 % en poids de ^{242}Cm , sur environ 1,5 an en le dopant à l'aide de 1 % en poids de ^{244}Cm ou sur environ 3,5 ans à l'aide de 2 % en poids de ^{238}Pu .

Annexe C

Essai de broyage-concassage

Cet essai permet de détecter les déformations et amorces de fissurations en mesurant de façon semi-reproductible la dimension des particules après écrasement d'un échantillon de solide. En cas de déformation ou de fissuration, l'échantillon s'écrase en effet en fine poudre. Le mode opératoire de l'essai est décrit en référence [3].

On introduit dans le dispositif d'essai, qui ressemble à un outil de pastillage (anneau et piston presseur), un échantillon de forme cylindrique ou cubique, coulé ou découpé sur un échantillon plus grand. Les dimensions de l'échantillon cylindrique sont telles que le rapport hauteur/diamètre soit environ égal à 1 et que le rapport surface de la presse/surface transversale de l'échantillon soit environ égal à 10. L'échantillon et le piston

sont soumis à une pression dix fois plus grande que la pression nécessaire pour amener la rupture de l'échantillon. On procède ensuite à un tamisage et à une analyse granulométrique de l'échantillon écrasé, dont les résultats sont évalués en fonction de la distribution granulométrique de Rosin-Rammler-Sperling (RRS). Pour pouvoir comparer différents types d'échantillons, il faut normaliser comme diamètre moyen de grain, le diamètre correspondant à un volume de $1 \times 10^{-6} \text{ m}^3$ par échantillon, étant donné que l'écrasement des éprouvettes après rupture dépend du volume total de particules. Il est également souhaitable que les dimensions des échantillons soient les mêmes pour les essais avant et après stockage. Le diamètre moyen de grain après essai est une mesure des propriétés de résistance à la rupture du matériau.

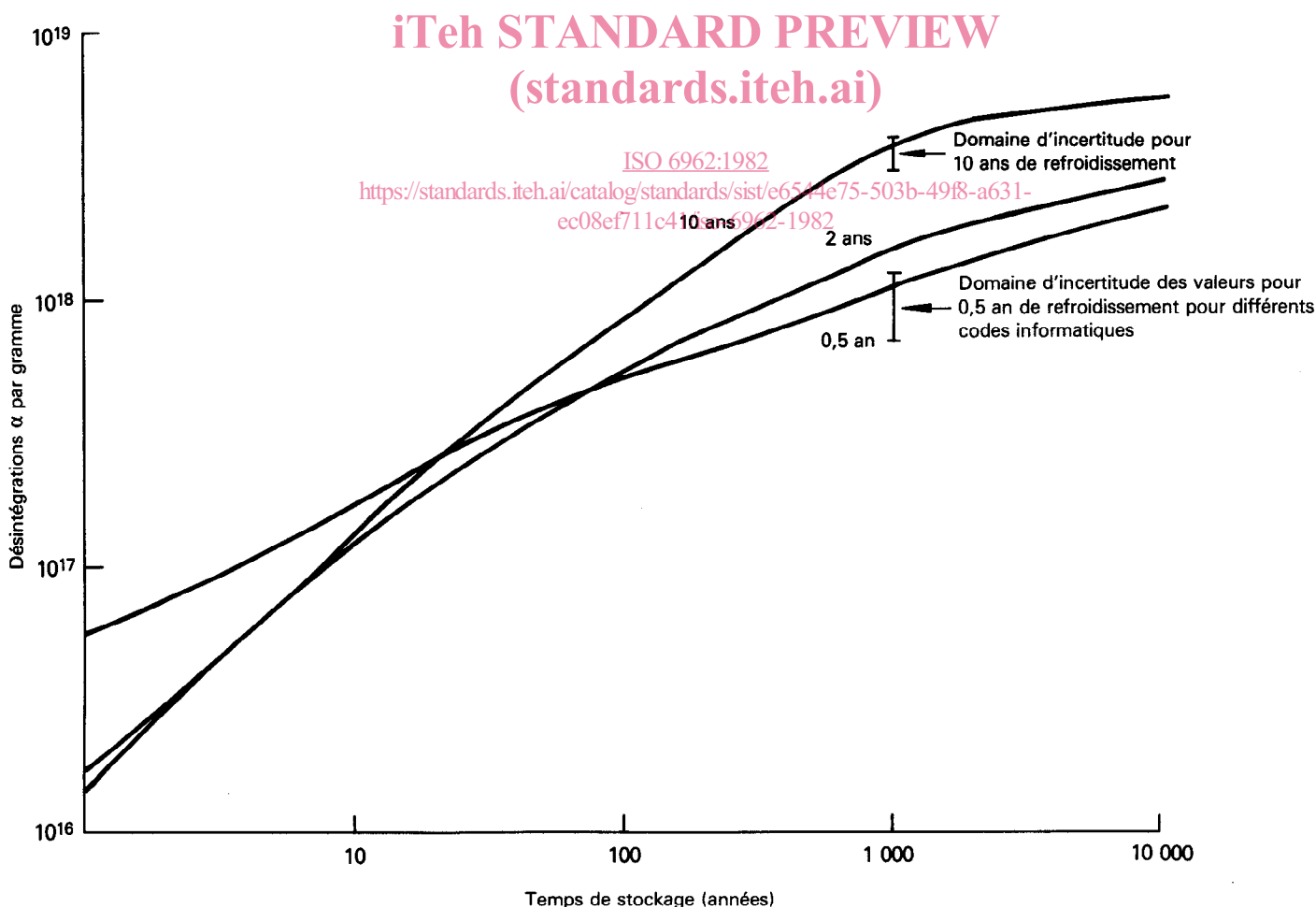


Figure 1 — Nombre de désintégrations α par gramme en fonction du temps de stockage pour différents temps de refroidissement

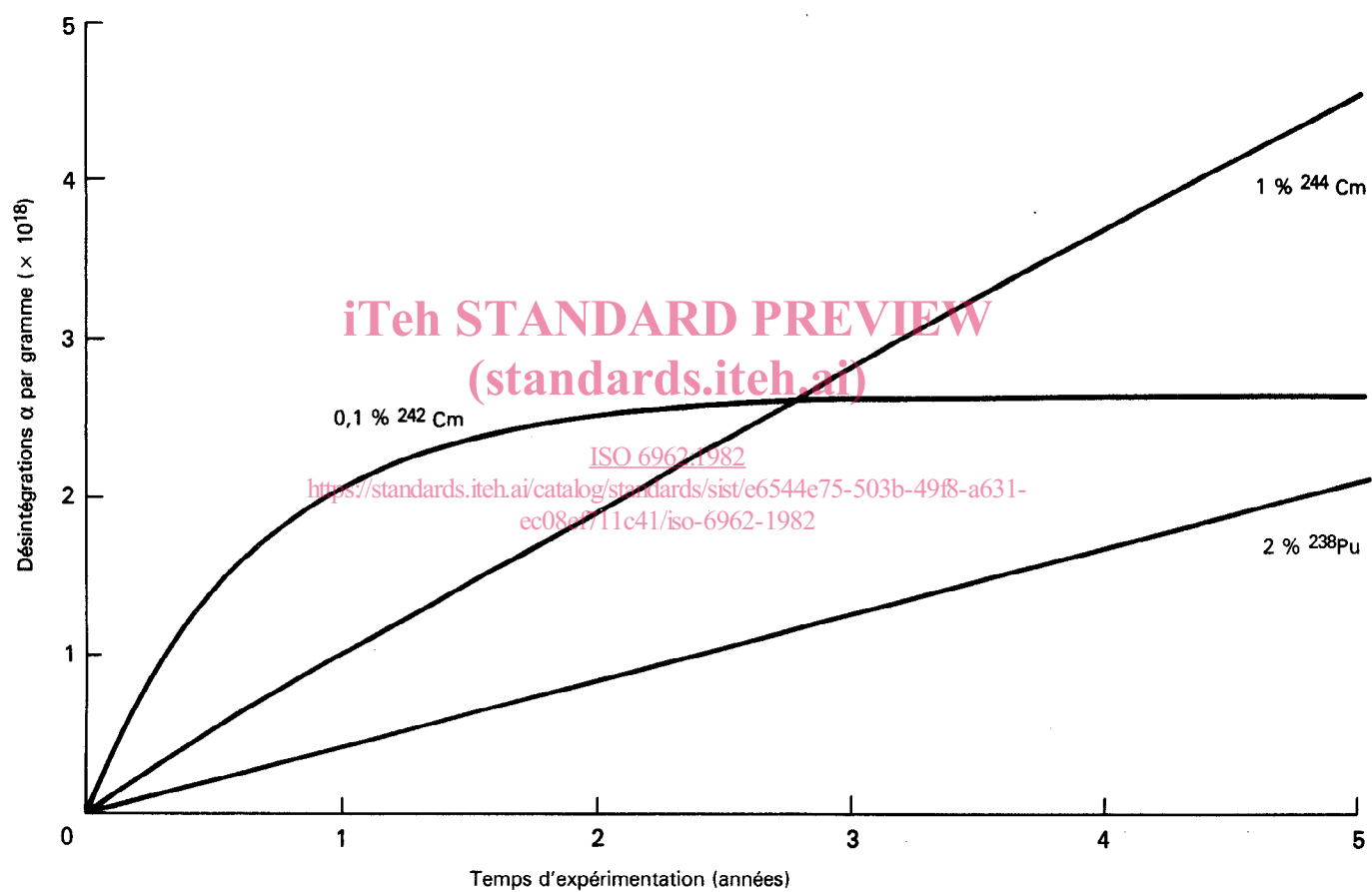


Figure 2 — Courbe des désintégrations α par gramme en fonction du temps d'expérimentation pour différents éléments de dopage (en pourcent en poids)