



PROJET DE NORME INTERNATIONALE ISO/DIS 6962

ISO/TC 85/SC 5

Secrétariat: BSI

Début du vote
2001-06-07

Vote clos le
2001-11-07

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

Énergie nucléaire — Méthode d'essai normalisée de la stabilité à long terme à l'irradiation alpha des matrices de confinement des déchets radioactifs de haute activité

[Révision de la première édition (ISO 6962:1982)]

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

ICS 13.030.30; 13.280

iTeh STANDARD PREVIEW
(standards.iteh.ai)

[ISO/DIS 6962](#)

<https://standards.iteh.ai/catalog/standards/sist/30f5d121-527d-436b-b870-80e8330bb839/iso-dis-6962>

Pour accélérer la distribution, le présent document est distribué tel qu'il est parvenu du secrétariat du comité. Le travail de rédaction et de composition de texte sera effectué au Secrétariat central de l'ISO au stade de publication.

To expedite distribution, this document is circulated as received from the committee secretariat. ISO Central Secretariat work of editing and text composition will be undertaken at publication stage.

CE DOCUMENT EST UN PROJET DIFFUSÉ POUR OBSERVATIONS ET APPROBATION. IL EST DONC SUSCEPTIBLE DE MODIFICATION ET NE PEUT ÊTRE CITÉ COMME NORME INTERNATIONALE AVANT SA PUBLICATION EN TANT QUE TELLE.

OUTRE LE FAIT D'ÊTRE EXAMINÉS POUR ÉTABLIR S'ILS SONT ACCEPTABLES À DES FINS INDUSTRIELLES, TECHNOLOGIQUES ET COMMERCIALES, AINSI QUE DU POINT DE VUE DES UTILISATEURS, LES PROJETS DE NORMES INTERNATIONALES DOIVENT PARFOIS ÊTRE CONSIDÉRÉS DU POINT DE VUE DE LEUR POSSIBILITÉ DE DEVENIR DES NORMES POUVANT SERVIR DE RÉFÉRENCE DANS LA RÉGLEMENTATION NATIONALE.

Sommaire

1 Objet et domaine d'application.....1

2 Référence normatives.....1

3 Principe1

4 Méthodologie des tests2

4.1 Calcul de la dose à intégrer.2

4.2 Choix de l'isotope à utiliser.....2

5 Composition de l'échantillon2

6 Préparation de l'échantillon2

7 Mesures avant stockage.....3

8 Stockage3

9 Mesures mises en oeuvre pendant et après le stockage.....3

9.1 Vitesse initiale d'altération de la matrice.....3

9.2 Masse volumique3

9.3 Energie stockée.....4

9.4 Intégrité structuraleError! Bookmark not defined.

9.5 La mesure de la chaleur dégagée.....4

9.6 Propriétés mécaniques4

9.7 Dégagement d'hélium4

10 Procès-verbal d'essai5

10.1 Caractéristiques du solide5

10.2 Méthode de préparation5

10.3 Conditions de stockage.....5

10.4 Résultats d'essais5

ITeH STANDARD PREVIEW
(standards.iteh.ai)

[ISO/DIS 6962](https://standards.iteh.ai/catalog/standards/sist/30f5d121-527d-436b-b870-80e8330bb839/iso-dis-6962)

<https://standards.iteh.ai/catalog/standards/sist/30f5d121-527d-436b-b870-80e8330bb839/iso-dis-6962>

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 en général confiée aux comités techniques de l'ISO. Chaque comité membre intéressé par une étude a le droit de faire partie du comité technique créé à cet effet. Les organisations internationales, gouvernementales et non gouvernementales, en liaison avec l'ISO participent également aux travaux. L'ISO collabore étroitement avec la Commission électrotechnique internationale (CEI) en ce qui concerne la normalisation électrotechnique.

Les Normes internationales sont rédigées conformément aux règles données dans les Directives ISO/CEI, Partie 3.

Les projets de Normes internationales adoptés par les comités techniques sont soumis aux comités membres pour vote. Leur publication comme Normes internationales requiert l'approbation de 75 % au moins des comités membres votants.

iTeh STANDARD PREVIEW (standards.iteh.ai)

[ISO/DIS 6962](#)

<https://standards.iteh.ai/catalog/standards/sist/30f5d121-527d-436b-b870-80e8330bb839/iso-dis-6962>

Introduction

Il est généralement admis qu'un solide est la meilleure forme pour confiner ou entreposer les déchets de haute activité issus du retraitement des combustibles nucléaires usés. Ce solide sera de préférence conditionné dans un conteneur en acier sous forme de bloc pesant plusieurs centaines de kilogrammes. Devant être soumis à différents types de radiations et intégrer d'importantes doses, il est impératif que ces radiations n'affectent ne modifient pas de manière significative ses propriétés durant des périodes de temps très longues. C'est ainsi qu'il y a lieu de tester la stabilité sous rayonnements des compositions choisies.

Les désintégrations β provenant des Produits de Fission sont de loin plus nombreuses que les désintégrations α issues des actinides incorporés. Cependant, comme l'essentiel de l'énergie des particules β (électrons) est dissipée par ionisation des atomes le long de leur parcours, leur effet peut être considéré comme un effet transitoire. Par contre, presque tous les déplacements atomiques dans le solide seront causés par les désintégrations α et notamment par les noyaux de recul émis au cours de ces désintégrations. La désintégration alpha génère de l'hélium et les atomes d'hélium constituent un corps étranger dans la matrice. Durant le stockage à long terme, la pression d'hélium dans la matrice monte à plusieurs atmosphères. L'étude de la stabilité de la matrice soumise aux désintégrations α doit donc être abordée en priorité.

iTeh STANDARD PREVIEW (standards.iteh.ai)

[ISO/DIS 6962](https://standards.iteh.ai/catalog/standards/sist/30f5d121-527d-436b-b870-80e8330bb839/iso-dis-6962)

<https://standards.iteh.ai/catalog/standards/sist/30f5d121-527d-436b-b870-80e8330bb839/iso-dis-6962>

Énergie nucléaire — Méthode d'essai normalisée de la stabilité à long terme à l'irradiation alpha des matrices de confinement des déchets radioactifs de haute activité

1 Objet et domaine d'application

Cette norme internationale définit une méthode permettant d'évaluer la stabilité à long terme d'une matrice de confinement soumise aux désintégrations α . Elle est basée sur la détection de toutes les modifications de propriétés physiques pouvant intervenir dans des échantillons irradiés.

Le matériau jusqu'à présent retenu est un verre au borosilicate, mais les matériaux alternatifs suivants sont possible d'utilisation :

- céramiques ou vitrocéramiques
- verres de compositions différentes

ITeH STANDARD PREVIEW
(standards.iteh.ai)

2 Références normatives

ISO 16797 - Test de durabilité chimique en mode Soxhlet - Application aux matrices vitrifiées des déchets de haute activité ¹⁾
<https://standards.iteh.ai/catalog/standards/sist/30f5d121-527d-436b-b870-80e8330bb839/iso-dis-6962>

ASTM C 1220-92 – Standard test method for static leaching of monolithic waste forms disposal of radioactive waste

3 Principe

Parce que la plupart des déplacements atomiques sont causés par les noyaux de recul, une irradiation externe avec des particules α n'est pas considérée comme une simulation satisfaisante. Pour obtenir une simulation satisfaisante, il faut préparer des échantillons de la matrice choisie de façon aussi réaliste que possible en utilisant les mêmes proportions que les éléments constitutifs des produits de fission, les éléments radioactifs n'ayant pas d'isotopes inactifs pouvant être remplacés par des simulants spécifiques ; ces échantillons sont ensuite dopés avec des actinides de période relativement courte, de façon à ce qu'ils puissent intégrer en quelques années des doses équivalentes (nombre de désintégrations α par gramme) ou supérieures aux doses intégrables à long terme ²⁾. Il est alors possible d'examiner l'évolution des propriétés physiques importantes en fonction de la dose intégrée.

Il est à remarquer que c'est le changement détecté dans les propriétés de la matrice sous l'effet des radiations qui est important. Le test ISO 16797 de durabilité chimique en mode Soxhlet, permet de détecter, de façon satisfaisante, l'évolution de l'altération de la matrice étudiée, bien qu'il n'ait qu'une représentativité limitée dans le contexte environnemental du stockage.

¹⁾ Actuellement à l'état de Draft International Standard.

²⁾ La différence d'équivalent de dose entre le déchet réel et la forme dopée nécessite l'étude de cet aspect des choses.

4 Méthodologie des tests

4.1 Calcul de la dose à intégrer.

La dose maximale visée dépendant de la concentration et de la répartition isotopique des actinides provenant du combustible retraité, cette concentration et cette répartition isotopique doivent être calculées (code numérique), voire confirmées (retour d'expérience). En cas d'impossibilité, on considérera que tout le Curium et tout l'Américium, ainsi que 0,5 % à 1 % du Plutonium, sont les principaux radio éléments contribuant à la dose intégrée par la matrice après plusieurs milliers d'années. La durée de vieillissement sur laquelle la simulation est menée est un paramètre décisionnel. Cependant, il est recommandé d'envisager au moins plusieurs milliers d'années (entre 1000 et 10000 ans par exemple). Pour des durées plus courtes, ^{244}Cm et ^{241}Am sont les isotopes prépondérants.

4.2 Choix de l'isotope à utiliser

^{238}Pu , ^{241}Am , ^{242}Cm et ^{244}Cm peuvent tous être utilisés pour doper les verres de confinement simulés. Le choix effectué dépend souvent de la disponibilité des dopants. Les critères suivants sont néanmoins à considérer :

- le ^{238}Pu est plus facile à manipuler que les deux isotopes du curium,
- les périodes radioactives étant de

^{238}Pu	87.7 y
^{241}Am	433 y
^{242}Cm	163 d
^{244}Cm	18.1 y

iTeh STANDARD PREVIEW
(standards.iteh.ai)

pour un débit de dose donné, il faudra par ajouter plus d'américium ou de plutonium que de curium.

- La solubilité de l'oxyde de plutonium étant limitée dans certaines matrices complexes, la préparation de l'échantillon peut conduire à de l'oxyde de plutonium insoluble et les actinides risquent de se répartir de manière inégale dans la matrice. Pour vérifier qu'il n'y a pas de ségrégation globale, il convient de pratiquer une autoradiographie et un examen microscopique sur une éprouvette découpée à l'intérieur de l'échantillon.

Une fois la dose requise décidée, on détermine la concentration nécessaire de l'isotope choisi donnant cette dose dans un délai raisonnable ; le calcul se faisant, cas par cas, en raison des variations de pureté isotopique de l'actinide disponible.

5 Composition de l'échantillon

La composition des échantillons d'essai doit être aussi voisine que possible de celle des déchets industriels, l'objectif étant d'incorporer les éléments dopants sans altérer les caractéristiques chimiques de la matrice. Pour ce faire, on ajoute aux déchets simulés, sur la base d'un atome pour un atome le curium, en place et lieu des autres actinides et des éléments de terres rares. De même, le ^{238}Pu peut remplacer d'abord le Cérium ou l'Uranium, puis, si nécessaire, certaines terres rares. Des échantillons non dopés sont préparés par ailleurs, pour permettre d'effectuer des comparaisons.

6 Préparation de l'échantillon

La préparation de l'échantillon peut être testée, par exemple, par autoradiographie et examen au microscope. Il est essentiel de vérifier la distribution uniforme du dopant α dans le matériau. Pour un matériau non vitreux, la distribution des actinides dans les phases cristallines, doit être connue et homogène, sinon une bonne représentativité de la simulation ne peut être obtenue. En effet, les particules α , responsables en majorité de phénomènes d'ionisation, peuvent interagir avec les phases adjacentes à celles où la désintégration se produit. Alors que les noyaux de recul, qui génèrent les déplacements atomiques, parcourent de faibles distances (environ 100 Å) et provoquent des dommages uniquement 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 concernent :

- a) la vitesse initiale d'altération de la matrice,
- b) la masse volumique,
- c) l'examen optique et microscopique des échantillons,
- d) l'examen par diffraction des rayons X,
- e) la chaleur dégagée,
- f) les propriétés mécaniques (facultatif).

Les techniques à utiliser sont explicitées au paragraphe 9..

8 Stockage

Les échantillons doivent être stockés à température ambiante et sous air sec, pendant toute la période de l'essai, qui est souvent de quelques années. Il est souhaitable de stocker une seconde série d'échantillons, à une température plus élevée, appropriée aux conditions de stockage³.

9 Mesures mises en oeuvre pendant et après le stockage

Dans le contexte d'un stockage pour les matrices de confinement des déchets de haute activité, les propriétés les plus importantes à étudier sont : la vitesse initiale d'altération de la matrice, la masse volumique, l'énergie stockée et l'intégrité structurale voire, dans certains cas, le dégagement d'hélium.

Dans ce contexte, il est impératif de détecter les modifications dues au rayonnement et en conséquence, il convient de suivre la même procédure avant, pendant et après le stockage, sur les échantillons dopés et non dopés.

9.1 Vitesse initiale d'altération de la matrice

Un essai de lixiviation préconisé par une norme internationale (cf. Paragraphe 2) doit être effectué avant et après stockage, les résultats étant comparés sur des échantillons dopés et non dopés.

9.2 Masse volumique

Pour déterminer la masse volumique, on peut utiliser une technique fondée soit sur la poussée d'Archimède, soit sur la flottaison,. Cette mesure doit être effectuée sur le même échantillon avant et après stockage et, à intervalles donnés, au cours du stockage. En parallèle, doit être effectuée une mesure sur des échantillons non dopés pour vérifier aussi bien les techniques de mesure que les effets du stockage. Un minimum de trois mesures est requis, de manière à fournir une indication d'orientation.

³ En effet, si les déchets, qui ont été stockés pour décroissance pendant plusieurs années, ont été coulés dans des cylindres de grand diamètre, la vitesse de refroidissement au voisinage du centre du solide sera très lente et il peut s'avérer adéquat de conserver un échantillon à une température en rapport avec cette température à coeur. 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 au moins à la température minimale que connaîtra le solide dans son lieu de stockage .

9.3 Energie stockée

L'énergie stockée 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 trois mesures est nécessaire.

9.4 Examens optique, microscopique et cristallographique

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 un diagramme de diffraction est effectué, il devra l'être sur les échantillons fraîchement préparés, et répété au cours du temps. Un soin sera plus particulièrement apporté à la modification des pics de diffraction sur le plan des profils, qui sont susceptibles de révéler l'accroissement des contraintes, ainsi que sur celui des intensités, qui sont susceptibles d'indiquer les évolutions de phases. De même que ci-dessus, un minimum de trois mesures est nécessaire.

Pour suivre l'évolution de l'homogénéité des échantillons, des examens au microscope électronique à balayage (MEB) ou à la microsonde sont à envisager au cours du stockage. Dans ce type de mesure deux aspects sont à prendre en considération :

- a) les mesures réalisées par ces techniques étant très localisées, il est impératif qu'elles soient répétées sur un nombre suffisant de zones afin d'obtenir une statistique représentative ;
- b) comme ces techniques font appel à des faisceaux de particules (accroissement de la diffusion des alcalins sous rayonnement par exemple).

Il est donc préférable

- a) d'éviter de répéter les mesures sur les mêmes zones
- b) d'utiliser des faisceaux incidents de faible intensité.

9.5 Chaleur dégagée

Cette mesure, effectuée par calorimétrie, permet d'évaluer l'historique thermique des échantillons au cours du stockage. Elle a pour objet :

- a) de corroborer les informations concernant la composition du matériau en éléments actifs, en comparant les valeurs expérimentales, obtenues au début du stockage, aux résultats fournis par les codes de calculs, compte tenu de la composition ;
- b) d'évaluer l'ambiance thermique dans laquelle les défauts, créés par irradiation, évoluent.

9.6 Propriétés mécaniques

L'évolution au cours du temps des propriétés mécaniques est optionnelle et sera évaluée à partir de la mesure des grandeurs intrinsèques au matériau (module de Young, K1c, ...)

9.7 Dégagement d'hélium

La quantité d'hélium relâchée au cours du temps sera mesurée sur les échantillons dopés. Cette mesure est optionnelle. La géométrie de l'échantillon pouvant jouer un rôle non négligeable, ce paramètre devra être pris en considération pour interpréter les résultats.

10 Procès-verbal d'essai

Le procès-verbal d'essai doit faire état des informations suivantes, toutes les unités étant exprimées en unités du Système International :

10.1 Caractéristiques du solide

- Tableau comparatif de la composition des déchets réels et simulés.
- Intervalle de temps et dose simulés.
- Concentration et activité de l'isotope dopant.

10.2 Méthode de préparation

- Matériaux utilisés tant pour les déchets réels que pour les échantillons.
- Température de fusion/frittage ou de vitrification.
- Cycle de refroidissement après préparation, tant pour les déchets réels que pour les échantillons.
- Autoradiographie de l'échantillon.
- Eventuellement :
 - i) Micrographie optique de l'échantillon.
 - ii) Analyses des examens microscopiques (MEB, microsonde)
- Le cas échéant (sauf pour les matières totalement vitreuses), il y a lieu de mentionner
 - i) les résultats de l'analyse de diffraction des rayons X,
 - ii) l'identification et la proportion de toute phase cristalline observée.

10.3 Conditions de stockage

- Temps de stockage et graphique de dose cumulée en fonction du temps.
- Température de stockage avec variations éventuelles.

10.4 Résultats d'essais

Les dates de préparation des échantillons et des essais doivent être indiquées. En outre, 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, ainsi que, le cas échéant, le modèle utilisé pour convertir la dose en dpa.

10.4.1 Essais de lixiviation

Les résultats des essais de lixiviation seront mentionnés selon la manière spécifiée dans la norme ISO 16797.

10.4.2 Mesures de masse volumique

Techniques utilisées :

- a) Pour la méthode de la poussée d'Archimède :
 - 1) liquide utilisé,