

FR 8902678

CEA CEN-SACLAY
Service de Documentation
Groupe "Traductions"
91191 GIF sur YVETTE CEDEX

CEA-TR- 2444

P3

Cette traduction est fournie à titre bénévole et strictement réservée à l'usage privé du destinataire pour les besoins de sa documentation. Il ne peut la reproduire, ni la publier sans l'accord de l'auteur. La responsabilité du Commissariat à l'Energie Atomique ne saurait être engagée en cas de non respect des conditions ci-dessus définies.

VOLATILISATIONS DU ^{137}Cs ET DU ^{90}Sr DES DECHETS NUCLEAIRES
VITRIFIES DE HAUTE ACTIVITE

NAKAMURA H., KIKKAWA S., SATO M.,...

TRADUCTION DE : 30 pages
TRADUIT DU : Japonais en juin 1988
A PARTIR DU : Rapport JAERI - M - 84 - 141, août 1984, 22 p.

Traducteur : T.A.O. INTERNATIONAL

N° D'ENREGISTREMENT : 3.286.3

JAERI - M

84 - 141

VOLATILISATIONS DU ^{137}Cs ET DU ^{90}Sr DES DECHETS NUCLEAIRES

DE HAUTE ACTIVITE VITRIFIES

Haruto NAKAMURA, Shizuo KIKKAWA, Mamoru SATO,*
Hiroshi KAMIZONO, Muneaki SENOO et Shingo TASHIRO

Département de Recherche en Sécurité Environnementale,
Institut de Recherche Tokai, JAERI

(Date de réception: 13 juillet 1984)

Dans le cadre des tests d'évaluation de la sécurité pour le stockage des déchets nucléaires de haute activité vitrifiés, nous avons effectué des mesures des volatilités du ^{137}Cs et du ^{90}Sr qui sont les principaux radionucléides parmi les produits de fission nucléaire.

Il faut d'abord savoir qu'il est peu probable que les déchets nucléaires vitrifiés entrent en contact direct avec l'atmosphère extérieure à cause d'un endommagement grave des cartouches qui les contiennent. Le problème le plus sérieux sera alors celui des fuites provoquées par de petits endommagements de ces récipients. C'est pour cette raison que nous avons mis au point un système de mesure afin de simuler une telle situation. Pour ce faire, nous avons utilisé des doubles creuset et mesuré les radioactivités au niveau des creusets internes après avoir constaté qu'il n'y avait pas de fuite radioactive dans les creusets externes. Nous avons ainsi mesuré les volatilités des radionucléides en question.

En ce qui concerne la volatilité du ^{137}Cs à 800°C, elle est de l'ordre de $2 \times 10^{-2} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{jour}$. Le taux de fuite radioactive à partir d'un récipient simple représenté par un creuset fermé par un couvercle est alors de $1/10^5$. Par ailleurs, les volatilités apparentes à 400°C du ^{137}Cs et du ^{90}Sr sont presque identiques. Ceci nous amène à penser que pour ce qui concerne les pollutions atmosphériques par des déchets radioactifs, la dispersion des poudres de substances radioactives

.../...

dans l'atmosphère occupe une part plus importante que la volatilisation de ces éléments.

Par ailleurs, nous avons effectué dans le but d'élucider les propriétés chimiques de ces éléments volatils, des mesures de la quantité de dissolution de ^{137}Cs à partir des substances qui se sont volatilisées puis déposées à la surface des récipients en inox. En effet, après une immersion de ces récipients dans l'eau qui avait duré pendant 4 jours, nous avons pu constater qu'environ 30% de ^{137}Cs s'étaient dissouts dans le milieu aqueux, et que par conséquent ce radionucléide adhéré à la surface des récipients présentait une dissolubilité relativement importante.

Volatility of ^{137}Cs and ^{90}Sr from simulated high-level waste glass was examined in a closed system. The sample containing ^{137}Cs or ^{90}Sr was placed in a double-crucible, heated at a given temperature for 3 days and cooled to room temperature. Then the activity of ^{137}Cs or ^{90}Sr of the crucible was measured.

Volatility of ^{137}Cs at 800°C was measured to be about 2×10^{-2} g/cm²day. The amount of the leakage of ^{137}Cs from the inner crucible to the outer crucible was very small.

Volatility of ^{137}Cs at 400°C was about 1.6×10^{-6} g/cm²day, which was almost the same as that of ^{90}Sr at 400°C . This may indicate that fine particles adhering to the surface of the sample are the main cause of air contamination when the temperature is less than 400°C .

Part of the ^{137}Cs that was deposited on the surface of the outer crucible (stainless steel) dissolved in water at room temperature, which means that ^{137}Cs deposited on a stainless steel surface may be easily removed by a decontamination process.

Keywords: Volatilization, ^{137}Cs , ^{90}Sr , High-level waste, Borosilicate glass, Safety, High Temperature, Radioactive Waste Disposal

Sommaire

1. Introduction -----	4
2. Expériences -----	6
(1). Aperçu des expériences -----	6
(2). Préparation des échantillons -----	6
(3). Tests de volatilisation et conditions de chauffage -----	8
(4). Mesures des radioactivités -----	9
(5). Expériences de solubilisation des substances volatiles adhérees à la surface des creusets externes en inox et des capsules en platine -----	10
3. Résultats et considération -----	11
(1). Volatilités du ¹³⁷ Cs et du ⁹⁰ Sr -----	11
(2). Examens des substances volatiles déposées à la surface des récipients -----	13
4. Conclusion -----	15
Références -----	16

1. Introduction

Lors des examens des éventualités concernant les accidents qui peuvent survenir au moment du transport et du stockage des déchets nucléaires vitrifiés, on peut envisager comme situations dans lesquelles les matières radioactives sont exposées à haute température et se volatilisent en contaminant l'atmosphère environnante, d'une part le cas des incendies, et d'autre part celui des défaillances du système de réfrigération.

Par ailleurs, s'il s'agit d'une volatilisation de certains constituants des déchets nucléaires vitrifiés, nous devons également examiner les phénomènes qui se produisent dans le processus de vitrification de ces matières, indépendamment des cas mentionnés précédemment. En fait, ce dernier point sera discuté dans le cadre du projet de sûreté concernant les installations de retraitement des déchets nucléaires, et nous n'entrerons pas dans ces détails dans le présent article. Cependant, il est à noter que lors de la mise en cartouche des blocs de verre renfermant ces déchets nucléaires, il est possible qu'une partie des matières radioactives se volatilise et ensuite se dépose aux surfaces externe et interne du récipient provoquant ainsi une contamination de l'environnement à l'occasion du transport et du stockage de ces déchets. Ce dernier problème concerne donc la sécurité en matière de transport et de stockage des déchets nucléaires.

Dans cet article, nous avons étudié le comportement de ces substances volatiles sous différentes températures, et également leur comportement chimique en tenant compte des remarques citées plus haut.

En ce qui concerne le phénomène de volatilisation des matières contenues dans les déchets nucléaires vitrifiés, nous avons en possession les résultats d'un certain nombre d'études (réf.1 et 2) selon lesquels le principal radionucléide est le ^{137}Cs . Ainsi, dans notre rapport, cet élément constituera le principal objet de nos examens parallèlement au ^{90}Sr qui est, quant à lui, peu volatil.

Pour ce qui concerne les méthodes de mesure des volatilités des

éléments, il existe d'une part des méthodes des systèmes fermés, et d'autre part celles des systèmes ouverts. Il est à noter que pour les méthodes standards aux normes américaines MCC, ce sont uniquement celles des systèmes ouverts qui sont prises en compte (réf.3).

Les principales différences entre les systèmes fermés et les systèmes ouverts concernant les phénomènes physiques qui s'y produisent, résident d'une part dans la vitesse de diffusion des gaz radioactifs au niveau de l'interface solide-gaz qui diffère sensiblement entre ces deux types de système en raison de la différence de vitesse de courant d'air qui passe au-dessus des blocs de verre, et d'autre part dans le phénomène de freinage de la vaporisation dû à une saturation de l'atmosphère par les gaz radioactifs. Du point de vue des évaluations en sûreté nucléaire, ce sont les modèles des systèmes ouverts qui sont les mieux adaptés à la situation s'il s'agit de l'opération de mise en cartouche des matières radioactives vitrifiées, et ce seront au contraire les modèles des systèmes fermés qui l'emporteront si on envisage d'étudier les cas des accidents tels que les incendies et les défaillances du système de réfrigération à condition tout de même que l'on suppose que les récipients ne soient pas gravement détériorés. Autrement dit, nous considérons que en dehors du cas de la mise en cartouche des déchets nucléaires vitrifiés qui est un processus normal du retraitement, il s'agit essentiellement de modèles des systèmes fermés si nous voulons étudier ce type de problème. Par ailleurs, du point de vue des méthodes d'expérimentation, si on adopte les modèles des systèmes ouverts et met en place un courant de gaz quelconque, un certain nombre de paramètres supplémentaires tels que le taux de récupération des substances volatilisées, le problème de déposition de ces substances dans des conduits de l'appareillage et les caractéristiques des appareils supplémentaires utilisés, entreront en ligne de compte, et de ce fait, les erreurs

.../...

risqueraient d'augmenter à cause de l'incertitude inhérente aux mesures de ces paramètres supplémentaires. Et c'est précisément pour ces raisons que nous avons choisi pour notre étude une méthode d'expérience qui fait appel à un modèle de système fermé représenté par un dispositif simple.

Enfin, nous avons également étudié les caractéristiques de la solubilisation de ces substances volatiles à l'aide de l'eau distillée et d'une solution d'acide nitrique contenant une faible quantité d'acide fluorhydrique.

2. Expériences

(1). Aperçu des expériences:

On prépare les échantillons de bloc de verre renfermant soit le ^{137}Cs , soit le ^{90}Sr . Puis, on les taille en parcelles d'un diamètre de 20mm et d'une épaisseur de 5mm. Il est à noter que le taux de radioactivité d'un échantillon ainsi préparé est de l'ordre de 25mCi. Celui-ci est ensuite placé dans un creuset en porcelaine d'une capacité de 30ml, lequel sera fermé par un couvercle, puis placé à son tour dans un creuset en inox de 50mm de diamètre et de 70mm de hauteur. L'ensemble sera soumis pendant 3 jours à des températures préalablement fixées. Après cette étape, on évacue les échantillons des creusets internes, puis mesure la radioactivité de ces derniers. D'autre part, on mesure également la radioactivité au niveau des creusets externes en inox afin de s'assurer qu'il n'y a pas eu de fuite des gaz radioactifs au niveau des creusets internes en porcelaine.

Enfin, la solubilisation des substances volatiles qui se sont déposées à la surface de chacun des récipients sera effectuée à l'aide d'eau distillée dans un premier temps, puis de l'acide nitrique contenant de l'acide fluorhydrique.

(2). Préparation des échantillons:

Dans 2 creusets en platine (illustrés dans la figure 1), on met 50g de poudre de verre dont la composition est notée dans le tableau 1. Puis, on met dans le premier creuset une solution de Cs-137 à raison

de 300mCi, et dans le second celle de Sr-90 de la même manière que la précédente. D'autre part, on a veillé à ce que la somme des volumes de la solution RI et du liquide de rinçage du récipient RI soit de l'ordre de 12.5ml. Ensuite, on laisse reposer ces deux creusets en platine sur leurs socles pendant 24 heures afin que RI pénètre les verres. Puis, on place ces creusets dans un dispositif pour essais de volatilisation. La mise en place du creuset à l'intérieur de la cartouche à échantillon est illustrée dans la figure 2.

En ce qui concerne la température de ce dispositif, dans un premier temps, elle est maintenue à 130°C pendant 72 heures, puis on l'augmente jusqu'à 450°C et maintient ce niveau pendant 5 heures afin de chasser l'eau qui est contenue dans ces échantillons. Après cette étape de dessiccation, on augmente de nouveau la température jusqu'à 650°C, puis maintient ce niveau pendant 5 heures pour effectuer un dégazage (NO_x et Cl_2) des composés RI ($\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ et CsCl). Après cette cuisson préliminaire (étape de dégazage), on augmente encore la température jusqu'à 1150°C et maintient ce niveau pendant 2 heures afin d'obtenir une fusion complète des verres. Après cette cuisson, on laisse refroidir ces échantillons jusqu'à la température ambiante. Quant au programme de cuisson pour la préparation de ces échantillons, il est montré dans la figure 3. Enfin, la vitesse d'élévation de la température est de l'ordre de 100°C/h.

En ce qui concerne les échantillons vitrifiés contenant du Cs-137, nous avons examiné leur homogénéité à l'aide d'un scanner aux rayons γ (réf.5) installé dans la cellule N°1 (réf.4) de WASTE (installation pour les essais de sûreté des déchets radioactifs: réf.4). Les résultats de ces mesures sont indiqués dans la figure 4. On constate alors que le Cs-137 est réparti de façon homogène dans l'intérieur de ces échantillons vitrifiés.

Ensuite, on taille ces échantillons contenant du Cs-137 de même que ceux qui renferment le Sr-90 en pastilles d'un diamètre de 20mm et

.../...

d'une épaisseur de 5mm. Ces pastilles sont destinées aux essais de volatilisation de ces radionucléides. D'autre part, il est à noter que la face latérale de ces pastilles est recouverte de platine. Ensuite, nous avons effectué un polissage de la face de ces échantillons qui sera utilisée pour les tests de volatilisations. Les données relatives à cette préparation des échantillons sont notées dans le tableau 2. Par ailleurs, nous avons recueilli des parcelles de ces échantillons afin de déterminer leurs taux de radioactivité. Enfin, cette préparation des échantillons destinés aux tests de volatilisation a été effectuée dans la cellule N°3 de WASTEF.

(3). Tests de volatilisation et conditions de chauffage:

L'échantillon est placé dans une capsule de platine qui sera à son tour mise dans un creuset interne (creuset en porcelaine destiné aux tests de volatilisation). Ce dernier sera fermé par un couvercle, puis placé dans un creuset externe (creuset en inox destiné aux tests de volatilisation) qui sera à son tour fermé par un couvercle. Celui-ci sera ensuite mis dans une cartouche à échantillon destinée aux essais de volatilisation. Par ailleurs, les configurations des creusets interne et externe sont illustrées dans la figure 5. Quant à leurs mises en place à l'intérieur de la cartouche, elles sont montrées dans la figure 6. Ces cartouches à échantillon sont ensuite placées dans un dispositif spécialement conçu pour les tests de volatilisation. Les conditions de nos expériences sont notées dans le tableau 3. D'autre part, le programme de cuisson des échantillons est indiqué dans la figure 7. Les essais ont été effectués, comme nous l'avons mentionné plus haut, dans la cellule N°3 de WASTEF.

Après avoir terminé les tests de volatilisation, les cartouches à échantillon sont sorties du dispositif. De ces cartouches, on extrait les creusets N°2 (externes), puis successivement les creusets N°1 et les échantillons qui se trouvent à l'intérieur de ces derniers.

.../...

Enfin, ces creusets externes et internes ont été sortis de la cellule N°3 afin que l'on puisse déterminer la volatilité de ces échantillons à partir de leurs examens.

(4). Mesures des radioactivités:

(a). Mesures des radioactivités des échantillons vitrifiés:

On brise un échantillon pour obtenir une parcelle de 30 à 100g. Puis, on la sort de la cellule pour la mettre dans une capsule en platine. On y ajoute 5ml d'acide perchlorique concentré et 1ml d'acide fluorhydrique concentré, et chauffe ce mélange sur une plaque chauffante afin d'obtenir une dissolution complète du morceau d'échantillon. Au moment où une fumée blanche commence à s'en dégager, on y ajoute de nouveau l'acide fluorhydrique. On arrête le chauffage lorsqu'il n'y a plus de bulle et il reste uniquement une substance qui se présente sous forme d'une poudre noire dans la capsule. Ensuite, on dissout cette substance dans 100ml d'eau distillée. 10ml de cette solution ainsi préparée sera mise dans un récipient en polyéthylène pour servir d'échantillon pour les analyses aux rayons γ , et 1ml de celle-ci sera séchée dans une capsule en inox pour donner un échantillon destiné aux analyses aux rayons β .

Dans cette condition, on constate que la quantité de substance noire non dissoute est extrêmement faible. Nous pensons qu'il s'agit d'un élément appartenant à la famille du platine. Enfin, il est à noter que si on utilise un échantillon qui ne contient pas cet élément, on constate que ce résidu insoluble dans l'eau est absent au moment de cette préparation.

(b). Appareils de mesure:

Pour les mesures des rayonnements γ du ^{137}Cs , on utilise un analyseur d'amplitude de CANBERRA muni d'un scintillateur de type puits $3''\varnothing \times 3''$ NaI (Tl). D'autre part, pour les mesures des rayons β du ^{90}Sr (et de γ -90), on fait appel à un compteur à courant de gaz Zn fabriqué par ALOCA.

(c). Mesures des radioactivités des substances volatiles:

Nous avons mesuré les radioactivités des creusets internes et externes qui ont été utilisés pour les expériences de volatilisation du ^{137}Cs et du ^{90}Sr à l'aide des détecteurs des rayons β et γ . Au moment de ces mesures, le positionnement des creusets a été déterminé de façon à ce qu'il convienne aux analyses des creusets internes, et les creusets externes, quant à eux, ont été placés dans la même position que les précédents. Etant donné que les radioactivités des creusets externes étaient systématiquement inférieures à $1/10^3$ de celles des creusets internes correspondants, nous avons dissout uniquement les substances volatiles qui se sont déposées à la surface de ces derniers, afin de mesurer leurs radioactivités. Pour ce faire, les creusets internes ont été immergés pendant 1 à 2 jours dans une solution 3N d'acide nitrique à laquelle on avait ajouté quelques gouttes d'acide fluorhydrique. Ensuite, on mesure les radioactivités de ces creusets ainsi traités, dans les mêmes conditions que lors des mesures précédentes. On a alors constaté que plus de 90% des radioactivités à ce niveau ont bien été éliminées par ce traitement. Enfin, quant aux solutions des substances volatiles qui se sont déposées à la surface des creusets internes, on a effectué les mesures de leurs radioactivités de la même manière que lors de l'analyse de la dissolution d'une parcelle de l'échantillon vitrifié.

(5). Expériences de solubilisation des substances volatiles adhérentes à la surface des creusets externes en inox et des capsules en platine:

On met les creusets externes en inox qui ont été utilisés pour étudier le ^{137}Cs dans les béchers en polyéthylène de 200ml. Ensuite, on met de l'eau séparément à l'intérieur et à l'extérieur de ces creusets, et les laisse pendant 4 jours. Après ce délai, on extrait les dissolutions ainsi obtenues, puis on les filtre à l'aide d'un papier-filtre N°5. Enfin, on procède à des analyses de ces dissolutions

.../...

en séparant leurs parties liquides de leurs précipités radioactifs qui se présentent sous forme de granulations.

Par ailleurs, les manipulations comparables seront effectuées avec une solution 3N d'acide nitrique contenant quelques gouttes d'acide fluorhydrique. Mais dans ce cas, la durée de l'immersion est de l'ordre d'un jour.

Ensuite, on effectue les mêmes expériences avec les capsules en platine dans lesquelles les échantillons vitrifiés ont été placés lors des tests de volatilisation. Néanmoins, celles que l'on a utilisées pour les essais à 800°C portaient des traces de verre fondu, et de ce fait, elles n'ont pas pu être soumises à ces examens.

3. Résultats et considération

(1). Volatilités du ^{137}Cs et du ^{90}Sr :

A partir du taux de radioactivité des échantillons et des résultats des mesures des radioactivités des substances volatiles, nous avons calculé les volatilités de ces radionucléides à l'aide de la formule mentionnée ci-dessous. Par ailleurs, leurs résultats seront notés dans le tableau 4.

$$V_i = v_i / (A_i \times S \times T)$$

où V_i : volatilité du nucléide i ($\text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{jour}$)

v_i : quantité de nucléide i volatilisé (cpm)

A_i : taux de radioactivité du nucléide i au sein de l'échantillon (cpm/g)

S : superficie de l'échantillon (cm^2)

T : durée de l'expérience (jours)

Dans cette formule, la quantité de volatilisation est fonction du temps, et d'autre part on suppose que le phénomène de saturation de l'atmosphère ambiante par l'élément volatilisé ne se produise pas.

.../...

Par ailleurs, il est à noter que selon le rapport de WALMSLEY et de ses collaborateurs (réf.2), la volatilisation de l'élément est relativement importante pendant les 10 premiers jours, mais elle va diminuer après cette période. Par conséquent, la durée de nos expériences qui était de l'ordre de 3 jours appartiendra à la période de volatilisation importante.

Ensuite, on trace une courbe du logarithme du taux de volatilisation en fonction de l'inverse de la température. Cette courbe est illustrée dans la figure 8. On constate alors qu'elle n'est pas droite. Ceci indique qu'il s'agit d'un phénomène de volatilisation ordinaire. Quant au ^{90}Sr , comme il est très peu volatil, sa dépendance thermique dans sa volatilisation est pratiquement inexistante. Par conséquent, nous pensons que les radioactivités pouvant être attribuées à cet élément sont les conséquences d'un phénomène de dispersion des poudres de verre radioactives qui étaient adhérentes à la surface du verre.

En ce qui concerne l'évaluation des températures au moment des incendies la réglementation en matière de sécurité des transports prévoit une température de 800°C . A cette température, la volatilité calculée en quantité de verre correspondante est de l'ordre de $2 \times 10^{-2} \text{cm}^2/\text{jour}$. Dans les manipulations courantes des verres, de nombreuses précautions sont prises afin que la température ne dépasse pas les 400°C pour éviter tout phénomène d'opacification de ces matériaux. Dans ces conditions, les volatilités du ^{137}Cs et du ^{90}Sr sont presque identiques. Etant donné que le ^{90}Sr est très peu volatil, et que de ce fait, la contamination radioactive de l'environnement par ce radionucléide se fait vraisemblablement par la dispersion des poudres fines de verres qui le contiennent, nous considérons qu'à des températures inférieures à 400°C , c'est ce mode de contamination qui jouera le premier rôle plutôt que la volatilisation caractéristique du ^{137}Cs . La quantité en est alors de l'ordre de $1 \times 10^{-6} \text{g/cm}^2/\text{jour}$, ce qui

.../...

correspond approximativement à l'estimation de la quantité des éléments radioactifs non dissouts lors des expériences de solubilisation (réf.6).

(2). Examens des substances volatiles déposées à la surface des récipients:

Le tableau 5 montre les résultats des mesures des radioactivités des solutions et des précipités obtenus par la solubilisation des substances volatiles qui se sont déposées à la surface des récipients. Ces expériences de solubilisation ont été effectuées à l'aide de l'eau et d'une solution d'acide nitrique contenant de l'acide fluorhydrique. Les valeurs indiquées correspondent aux quantités de radionucléides qui sont converties en quantité de verres qui les enferment. D'autre part, il est à noter que les taux de radioactivités mesurés au niveau des récipients après les expériences de solubilisation des substances déposées à leurs surfaces, étaient inférieurs à 5% de ceux qui avaient été relevés avant ces traitements. On a également remarqué que la surface des creusets soumis à 800°C était fortement oxydée, et que l'exfoliation d'une couche de substance poudreuse noire se produisait à ce niveau. Par ailleurs, dans le tableau 5, on constate que les taux de radioactivité correspondant respectivement à la solution nitro-fluorhydrique des substances déposées à la surface interne des creusets en inox pour 800°C-2, et à la solution également nitro-fluorhydrique des substances déposées à la surface des capsules en platine pour Sr-2 sont excessivement élevés. Ceci nous amène à penser que dans ces cas, il y avait une contamination due à la présence des particules de verres radioactifs à ce niveau. Ensuite, nous indiquons dans le tableau 6, les quantités des radionucléides mesurées au niveau respectivement des creusets internes (totalité des matières volatilisées), et des surfaces externes et internes des creusets en inox (sommées des quantités de radionucléides des solutions et et des précipités correspondants qui sont notées dans le tableau 5). Les valeurs sont converties en quantités de verres qui enferment ces éléments.

.../...

On y constate que le degré de contamination des faces externes des creusets en inox reste presque identique pour tous les cas de figure. Nous pensons que ceci est dû au fait que nous avons utilisé un même four électrique pour la préparation des différents échantillons, et que de ce fait, une certaine quantité de substances radioactives est déposé à ce niveau au moment des manipulations.

Par ailleurs, nous avons également calculé pour chacun des cas, le taux de transfert de radioactivité entre le creuset interne et la paroi interne du creuset en inox correspondant. Les résultats de ces calculs sont notés dans le tableau 6. On constate alors que la mise en place d'un dispositif de fermeture simple représenté par un couvercle posé sur le creuset interne a fait baisser ce taux de transfert de radioactivité à moins de 0.3%. Ce taux diminue jusqu'à $1/10^5$ dans le cas des essais à 800°C dans lesquels la volatilisation du radionucléide en question est très importante.

D'autre part, nous avons mesuré les concentrations du ^{137}Cs dans l'atmosphère à l'intérieur des cartouches chauffées à des températures différentes. Selon les résultats de ces mesures, ces concentrations sont faibles (réf.6). Lors des présentes expériences, nous avons ainsi estimé qu'en ce qui concerne les radioactivités relevées au niveau des creusets internes, elles se concentraient dans les substances déposées à la surface des récipients, et que les taux de radioactivités atmosphériques étaient faibles. Il est à noter que ce phénomène s'accroît au fur et à mesure de l'élévation de la température.

Enfin, nous avons calculé le taux de solubilisation des radionucléides par l'eau par rapport à la quantité totale de ces éléments pour chacun des cas. Ces résultats sont notés dans le tableau 7. Quant aux capsules en platine, il y a d'importantes fluctuations au niveau des valeurs obtenues. Ceci est vraisemblablement dû à une contamination directe des récipients par des poudres de verres radioactifs.

.../...

Par ailleurs, ce tableau montre qu'en ce qui concerne les taux de solubilisation du ^{137}Cs au niveau des substances déposées à la surface des creusets en inox, il atteint environ 30% au niveau de leurs parois internes, et environ 50% au niveau de leurs faces externes. Ceci suggère que d'une manière générale, les matières volatilisées puis déposées à la surface des récipients présentent une solubilité relativement importante. Cependant, il faut remarquer que dans le cas des creusets internes en porcelaine qui ont été soumis à 800°C, les taux de solubilisation de ces substances par l'eau n'excédaient pas quelques %. La raison en est vraisemblablement que le ^{137}Cs déposé à la surface de ces récipients est entré en réaction avec la glaçure de ces derniers.

4. Conclusion

Nous avons procédé à des mesures des volatilités des radionucléides contenus dans des bloc de verre à l'aide d'un modèle du système fermé. La raison de ce choix est que d'une part, la vitesse du courant d'air qui passe au-dessus de la surface des déchets nucléaires de haute activité vitrifiés et contenus dans des cartouches est lente à condition que ces récipients ne soient pas gravement détériorés, et que d'autre part, le ^{137}Cs volatilisé a tendance à saturer l'atmosphère à l'intérieur de ces cartouches.

En ce qui concerne la volatilité du ^{137}Cs , celle-ci est de l'ordre de $2 \times 10^{-2} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{jour}$ à 800°C, et de $1 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{jour}$ à 400°C. Il faut alors remarquer qu'à 400°C, elle prend la même valeur que celle du ^{90}Sr qui est un élément très peu volatil. Ceci nous indique qu'à des températures inférieures à 400°C, c'est la dispersion des poudres de verres radioactifs qui va jouer le premier rôle plutôt que la volatilisation dans les contaminations atmosphériques par le ^{137}Cs .

Quant aux méthodes d'expériences, nous avons adopté un système de creusets doubles. La présence de la totalité des substances volatilisées à l'intérieur des creusets internes a été confirmée par les résultats des mesures des fuites radioactives dans les creusets externes qui

affichaient des valeurs suffisamment faibles. Par ailleurs, le taux de transfert des radioactivités depuis les creusets internes vers les creusets externes était inférieur à 0.3%, et en particulier dans le cas des essais à 800°C, il était de l'ordre de $1/10^5$. Ceci nous montre que même en cas de détériorations des cartouches qui contiennent les déchets nucléaires vitrifiés, les fuites radioactives seront extrêmement faibles si les endommagements des récipients ne sont pas trop importants.

Enfin, selon les résultats des tests de solubilisation du ^{137}Cs déposé à la surface des creusets en inox, environ 30% de cet élément se dissolvent dans l'eau après 4 jours d'immersion. Ceci nous montre que la solubilité dans l'eau du ^{137}Cs qui a subi une volatilisation suivie d'une solidification est importante.

Bibliographie

- (4). Tashiro et coll: "Installations pour les essais de sûreté des déchets nucléaires (WASTEF) (Plans et spécifications des bâtiments et des cellules)" JAERI - M 83 - 175 (1983)
- (5). Ootsuka et coll: "Mise au point d'un scanner aux rayons γ destiné aux examens des corps vitrifiés" JAERI - M 84 - 067 (1984)
- (6). Baba et coll: "Solubilisation des substances radioactives vitrifiées" JAERI - M 84 - 140 (1984)
- (7). "Tests d'évaluation de la sûreté pour le stockage des matières radioactives - N°1; Concentration de ^{137}Cs dans l'atmosphère à l'intérieur des cartouches. En cours de préparation.

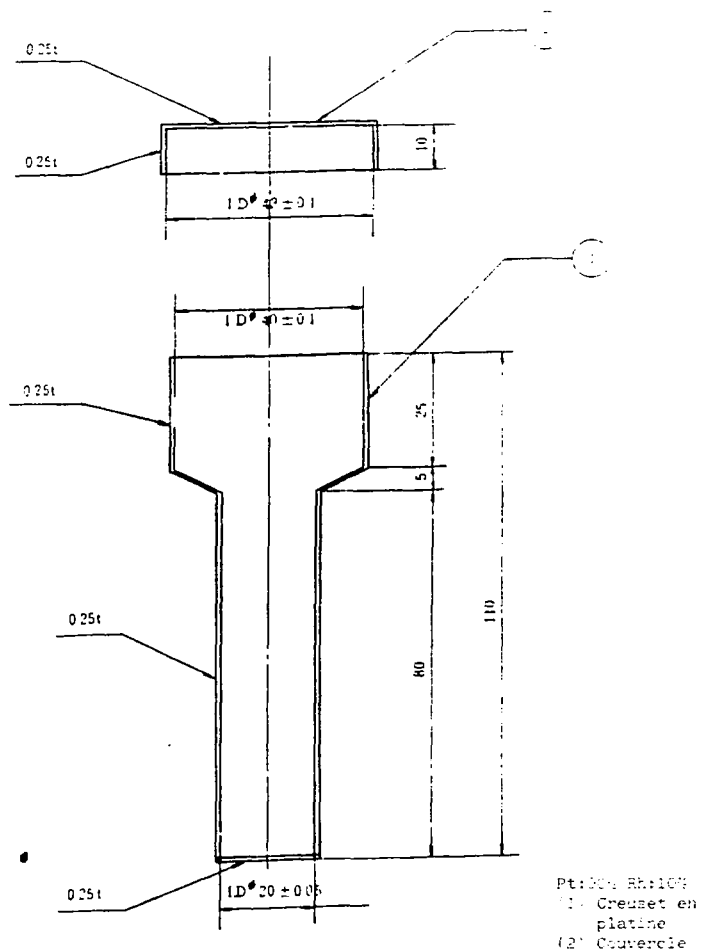
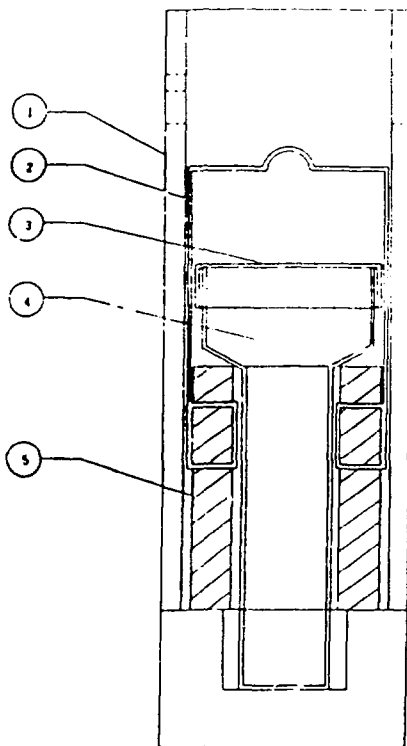


Fig. 1 Creuset en platine

JAERI-M 84-141

	JW - A
SiO ₂	49.49 %
B ₂ O ₃	18.58
Al ₂ O ₃	2.00
Li ₂ O	1.865
Na ₂ O	11.30
CaO	1.865
Fe ₂ O ₃	2.96
Zr - fine (en ZrO ₂)	1.22
Rb ₂ O	0.115
SrO	0.320
Y ₂ O ₃	0.189
ZrO ₂	1.553
MoO ₃	1.640
MnO ₂	0.244
RuO ₂	0.922
Rh ₂ O ₃	0.192
PdO	0.504
TeO ₂	0.215
Cs ₂ O	0.924
BaO	0.591
La ₂ O ₃	0.480
CeO ₂	1.282
Pr ₆ O ₁₁	0.469
Nb ₂ O ₅	1.560
Sm ₂ O ₃	0.309
SeO ₂	0.020
As ₂ O ₃	0.028
CdO	0.029
SnO ₂	0.018
Sb ₂ O ₃	0.005
Eu ₂ O ₃	0.052
Gd ₂ O ₃	0.026
	99.98 %



- (1) Cartouche à échantillon
- (2) Anse
- (3) Couverture du creuset
- (4) Creuset
- (5) Support

Fig. 2 Mise en place du creuset en platine à l'intérieur de la cartouche à échantillon

Table 1 Composition des échantillons vitrifiés

.../...

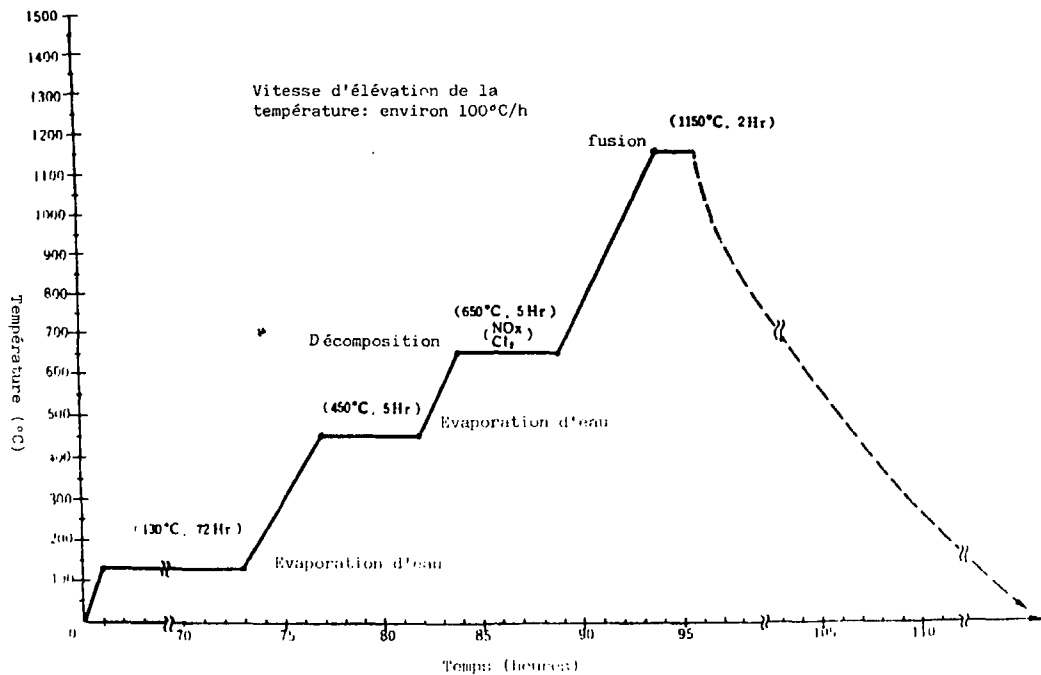


Fig. 3 Programme de cuisson pour la préparation des échantillons

JAERI-M 84-141

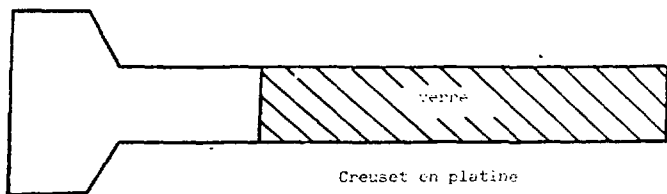
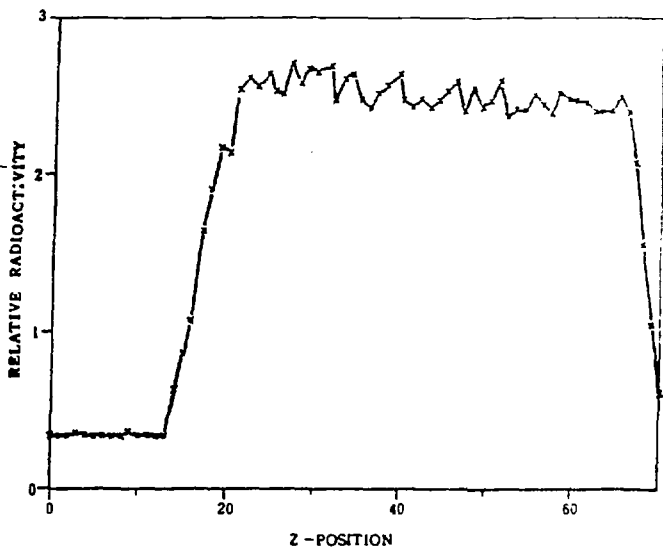


Fig. 4 Répartition du ^{137}Cs mesurée par scanner aux rayons X

.../...

Table 2 揮発率測定用試験体の重量及び研磨条件

温度(°C) 種 用	400				600				800			
	No. 1		No. 2		No. 1		No. 2		No. 1		No. 2	
	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr
試験体の白金 を含む重量(g)	6.3962	6.2453	5.2098	6.1234	5.9979	6.0572	6.0352	6.1315				
試験体の厚さ (mm)	5.52	5.38	5.35	5.28	5.17	5.22	5.20	5.29				
試験体の重量 (g)	4.6675	4.5767	4.5412	4.4878	4.3863	4.4329	4.4135	4.4884				
研磨条件(μm)	25 μm (D.P.)	25 μm (D.P.)	400	400	400	400	400	400				

* D.P.: ダイヤモンドペースト

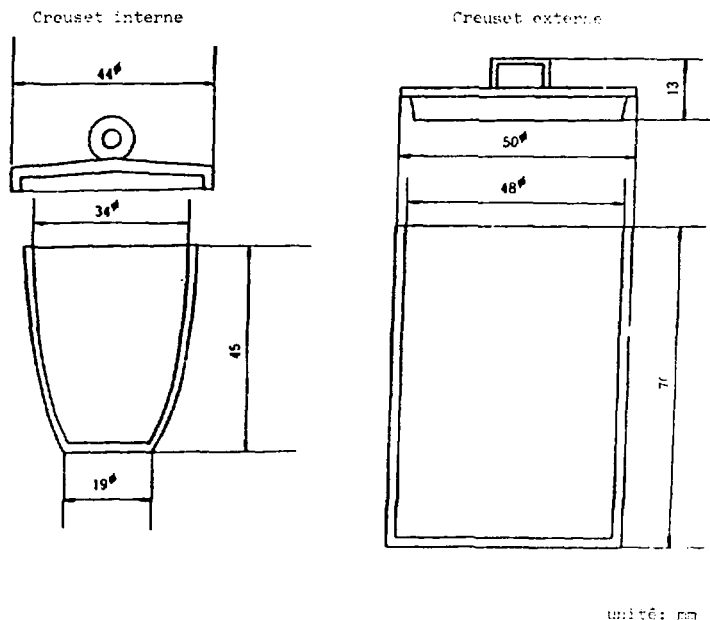
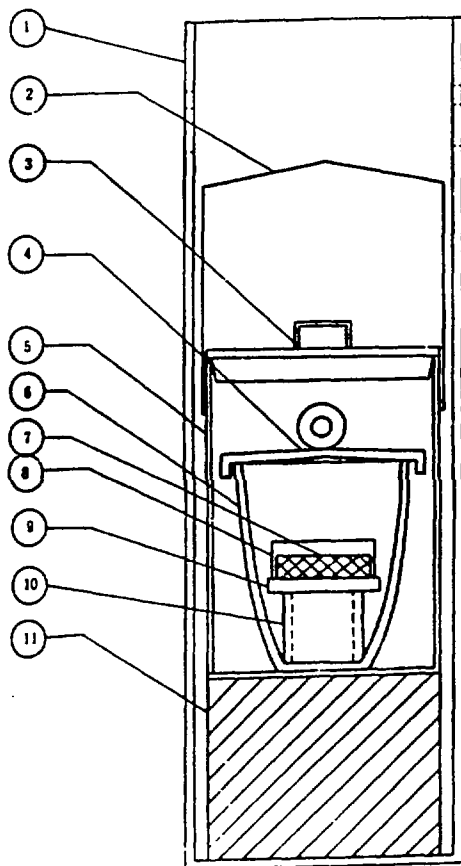


Fig. 5 Crucibles

.../...



- ① Cartouche à échantillon
- ② Anse
- ③ Couvercle du creuset inox
- ④ " du creuset porcelaine
- ⑤ Creuset externe
- ⑥ Creuset interne
- ⑦ Echantillon
- ⑧ Capsule
- ⑨ Plaque support
- ⑩ Socle (pour capsule)
- ⑪ Socle (pour creuset externe)

Fig. 6 Mise en place des creusets et de l'échantillon à l'intérieur de la cartouche

JAERI-M 84-141

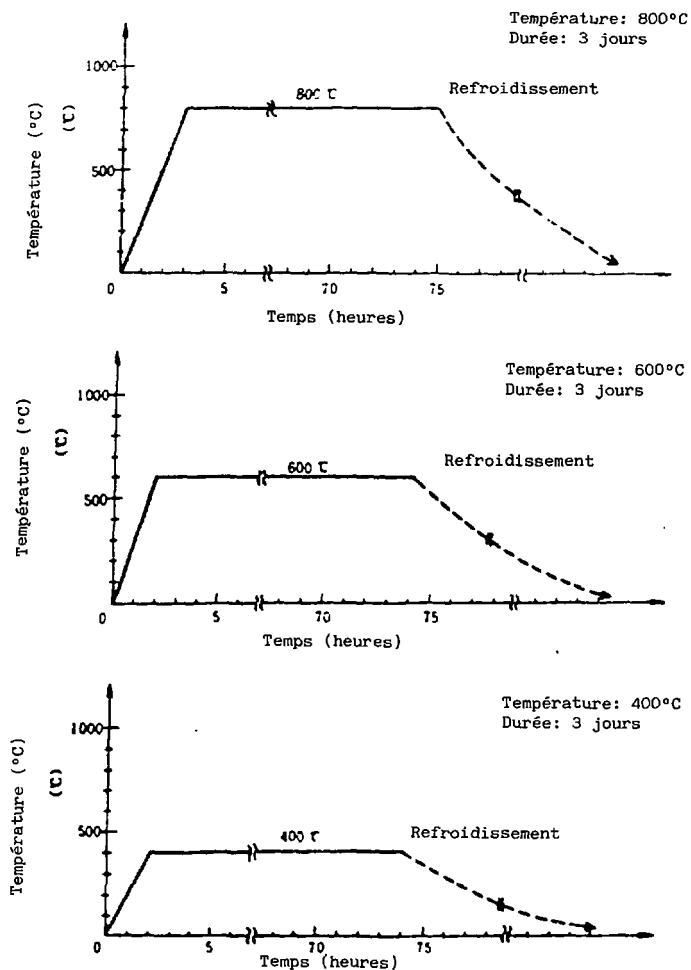


Fig. 7 Programme de cuisson

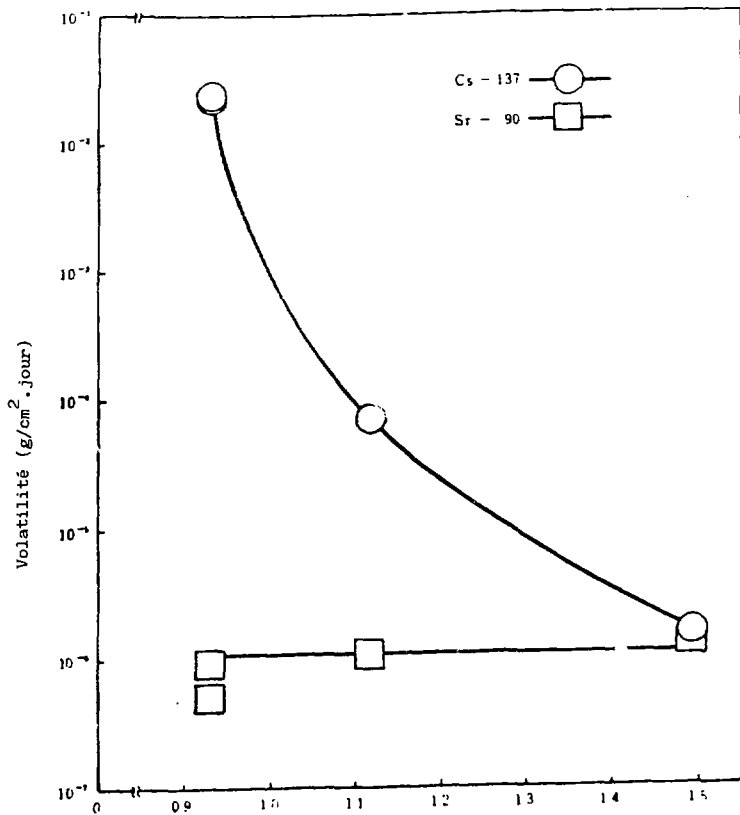


Fig. 8 Relation entre la volatilité et la température

.../...

Tableau 2: Poids et polissage des échantillons

(1) (2)	400		600		800			
	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	No 1		No 2	
					¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr
(3)	6.3962	6.2453	5.2098	6.1234	5.9979	6.0572	6.0352	6.1315
(4)	5.52	5.38	5.35	5.28	5.17	5.22	5.20	5.29
(5)	4.6675	4.5767	4.5412	4.4878	4.3863	4.4329	4.4135	4.4884
(6)	25 µm (D.P*)	25 µm (D.P*)	400	400	400	400	400	400

- (1). Température (°C)
 (2). Radionucléide
 (3). Poids (avec platine) (g)
 (4). Epaisseur (mm)
 (5). Poids (échantillon seul) (g)
 (6). Polissage

Nota: D.P* pâte de diamant

Tableau 3: Conditions des mesures des volatilités

(1)		400	500	600	
				1h 1	1h 2
(2)	(3)	20 mm ϕ x 5 mm t			
	(4)	3.14 cm ²			
	(5)	1.57 cm ³			
	(6)	4.24 g			
	(7)	25 mCi (6 mCi/g glass)			
	(8)	Cs-137 et Sr-90*			
(9)	¹³⁷ Cs	1	1	2	
	⁹⁰ Sr	1	1	2	
(10)		3	3	3	

- (1). Température (°C)
 (2). Echantillon
 (3). Dimension
 (4). Superficie
 (5). Volume
 (6). Poids
 (7). Radioactivité
 (8). Marqueur radioactif
 (9). Nombre d'échantillons
 (10). Durée de l'expérience (jours)

Nota: * additionnés séparément

Tableau 4: Résultats des mesures des volatilités du Cs-137 et du Sr-90

(1)	400	500	800		
			No 1	No 2	
(2)	3 14	3 14	3 14	3 14	
(3)	3	3	3	3	
(4)	¹³⁷ Cs	1.57×10^{-4}	7.04×10^{-4}	2.27×10^{-3}	2.41×10^{-3}
	⁹⁰ Sr	1.29×10^{-4}	1.06×10^{-4}	5.12×10^{-3}	9.34×10^{-3}

- (1). Température (°C)
 (2). Superficie des échantillons (cm²)
 (3). Durée de l'expérience (jours)
 (4). Volatilité (g/cm².jour)

Tableau 5: Solubilisation des substances volatiles (convertie en poids de verre en g)

(1)		(2)	(3)	(4)	(5)
800°C - 1	H ₂ O	4.1×10^{-1}	7.3×10^{-1}	2.1×10^{-6}	4.7×10^{-1}
	HNO ₃ +HF	1.9×10^{-1}	0.1×10^{-1}	1.2×10^{-6}	1.8×10^{-1}
800°C - 2	H ₂ O	4.1×10^{-1}	2.3×10^{-6}	7.4×10^{-6}	9.8×10^{-1}
	HNO ₃ +HF	9.9×10^{-6}	1.3×10^{-1}	1.5×10^{-6}	5.1×10^{-1}
600°C	H ₂ O	0.4×10^{-1}	0.7×10^{-1}	2.7×10^{-6}	4.8×10^{-1}
	HNO ₃ +HF	0	0	1.2×10^{-6}	0
400°C	H ₂ O	0.9×10^{-1}	0.9×10^{-1}	3.9×10^{-6}	3.8×10^{-1}
	HNO ₃ +HF	2.3×10^{-1}	0.3×10^{-1}	2.0×10^{-6}	0.3×10^{-1}

(6)		(7)	(8)
Cs - 1	H ₂ O	2.4×10^{-6}	3.4×10^{-6}
	HNO ₃ +HF	1.9×10^{-6}	0.9×10^{-1}
Cs - 2	H ₂ O	4.9×10^{-1}	6.0×10^{-6}
	HNO ₃ +HF	7.9×10^{-1}	0.1×10^{-1}
Sr - 1	H ₂ O	4.2×10^{-1}	1.3×10^{-6}
	HNO ₃ +HF	1.1×10^{-2}	0.5×10^{-1}
Sr - 2	H ₂ O	5.7×10^{-1}	1.6×10^{-6}
	HNO ₃ +HF	3.0×10^{-4}	3.5×10^{-6}

- (1). Creuset externe en inox
- (2). Solution des substances adhérees à la paroi interne du creuset inox
- (3). Précipités de la solution (2)
- (4). Solution des substances adhérees à la paroi externe du creuset inox
- (5). Précipités de la solution (4)
- (6). Capsule en platine
- (7). Solution des substances déposées à la surface de la capsule en platine
- (8). Précipités de la solution (7)

Tableau 6: Degré de contamination superficielle de chacun des creusets
(converti en poids de verre en g)

	(1)	(2)	(3)	(4)
800°C - i	2.1×10^{-1}	1.3×10^{-2}	4.0×10^{-3}	6.2×10^{-4}
600°C	6.6×10^{-4}	1.0×10^{-1}	4.4×10^{-2}	1.5×10^{-1}
400°C	1.5×10^{-4}	4.3×10^{-1}	6.3×10^{-2}	2.9×10^{-1}

- (1). (A) creuset interne
 (2). (B1) face interne du creuset externe
 (3). (B2) face externe du creuset externe
 (4). Taux de transfert (B1)/(A)

Tableau 7: Solubilisation du ^{137}Cs par l'eau à partir des substances
dépôtées à la surface du creuset (durée: 4 jours) (%)

(1)	(2)	(3)
800°C - 1	32	53
600°C	35	61
400°C	20	62

(4)	(5)
Cs - 1	31
Cs - 2	7
Sr - 1	15

- (1). SUS Creuset externe
 (2). Face interne
 (3). Face externe
 (4). Capsule en platine
 (5). Surface totale