

G 21 C

ROYAUME DE BELGIQUE

N° 779.364



MINISTÈRE DES AFFAIRES ÉCONOMIQUES

BREVET D'INVENTION

Le Ministre des Affaires Economiques,

Vu la loi du 24 mai 1854 sur les brevets d'invention;

Vu le procès-verbal dressé le 15 février 1972 à 10 h. 20
au Service de la Propriété industrielle;

ARRÊTE :

Article 1. — *Il est délivré à la Sté dite: BELGONUCLEAIRE,*
rue des Colonies, 35, 1000 Bruxelles,

un brevet d'invention pour : Particule sphérique à noyau fissile,
(Inv.: Mr. H. Bairiot).

Article 2. — *Ce brevet lui est délivré sans examen préalable, à ses risques et périls, sans garantie soit de la réalité, de la nouveauté ou du mérite de l'invention, soit de l'exactitude de la description, et sans préjudice du droit des tiers.*

Au présent arrêté demeurera joint un des doubles de la spécification de l'invention (mémoire descriptif et éventuellement dessins) signés par l'intéressé et déposés à l'appui de sa demande de brevet.

Bruxelles, le 29 février 1972

PAR DÉLÉGATION SPÉCIALE :

Le Directeur Général,


 J. HAMELS

MEMOIRE DESCRIPTIF

déposé à l'appui d'une demande

de

BREVET D'INVENTION

formée par

La Société Anonyme : BELGONUCLEAIRE

à Bruxelles, Belgique

pour

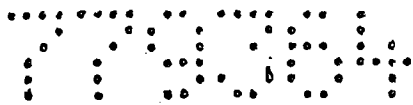
Particule sphérique à noyau fissile

Inventeur : Monsieur Hubert BAIRIOT

La présente invention se rapporte au matériau combustible pour réacteurs nucléaires et plus particulièrement au combustible utilisé dans les réacteurs refroidis au gaz.

Dans ces réacteurs, le combustible est généralement composé d'un amas de petites particules, entourées d'un gainage de forme appropriée. De telles particules (de forme généralement sphérique), sont constituées d'un noyau contenant le matériau fissile et/ou fertile, entouré d'une ou plusieurs couches de recouvrement, destinées à assurer la protection contre la contamination.

Hubert Bairiot

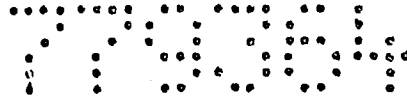


Dans le texte qui suit, le noyau contenant le matériau fissile et/ou fertile, sera désigné par "microsphère", et cette microsphère entourée par une ou plusieurs couches de recouvrement, sera désignée par "particule".

Il est connu que, pendant l'opération de recouvrement, généralement effectuée dans un four en lit fluidisé, les couches de recouvrement sont légèrement contaminées par les produits constituant des microsphères. En effet, les microsphères en mouvement lors de leur recouvrement, sont soumises à un frottement entre elles, qui provoque une contamination inévitable. Par ailleurs, les spécifications imposées par les utilisateurs des particules sont parfois très sévères en ce qui concerne la teneur en matière fissile dans les couches de recouvrement.

A cet effet, certains fabricants ont proposé des particules distinctes, basées sur des microsphères en matière fissile et d'autres en matière fertile. Il est évident que par ce moyen, la contamination en matière fissile des couches de recouvrement des particules à microsphères en matière fertile peut être évitée.

Cette solution, acceptable pour les réacteurs à gaz à haute température, ne convient toutefois pas pour les réacteurs rapides refroidis au gaz. En effet, pour ces réacteurs, les matières fissiles et fertiles doivent être intimement mélangées, afin d'obtenir une stabilisation de la réactivité par l'incidence de l'effet Doppler. D'autre part, le combustible pour réacteurs rapides refroidis au gaz, n'est généralement pas soumis à une température assez élevée pour permettre le fluage des constituants des microsphères. Les produits de fission libérés par ces microsphères provoquent alors un gonflement important de celles-ci (non repris par le fluage des constituants dans les porosités des microsphères) et créent ainsi des tensions mécaniques dans les couches de recouvrement non déformables, qui risquent par conséquent de fissurer ou casser.



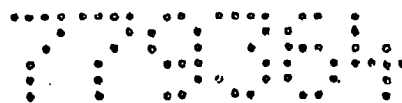
La présente invention a pour objet une nouvelle particule, constituée d'une microsphère en matière fertile et fissile, recouverte de couches imperméables qui ne sont pas contaminées par la matière fissile.

L'invention consiste en une particule, dont la microsphère est caractérisée par un noyau de matière fissile entouré de matière fertile. La microsphère selon l'invention peut contenir toute matière fertile telle que l'uranium naturel, l'uranium appauvri, le thorium etc., et toute matière fissile telle que le plutonium, l'uranium 235, l'uranium 233, etc. Ces matières fissiles et fertiles peuvent être sous forme d'oxyde, de carbure, de nitrure ou de tout autre composé chimique.

Il est clair qu'une microsphère selon l'invention peut être recouverte en lit fluidisé sans que le frottement des microsphères entre elles ne provoque une contamination en matière fissile. En effet, le frottement ne se fera que sur la partie fertile, sans que la partie fissile s'en trouve atteinte. Une telle particule pourra dès lors très bien être fabriquée en tenant compte des spécifications très sévères imposées par l'utilisateur.

D'autre part, ces particules conviennent parfaitement bien comme combustible pour réacteurs rapides refroidis au gaz, étant donné que le mélange de matière fertile et fissile est excellent, dû à la conception même de la particule.

Un autre avantage encore, et non le moindre, réside dans le fait que les particules selon l'invention, utilisées dans les réacteurs rapides refroidis au gaz, ne rencontrent pas de difficultés dues au gonflement du combustible et aux tensions mécaniques que celui-ci induit dans les couches de recouvrement, étant donné que la matière fissile est concentrée au centre de la microsphère et sera soumise à un taux de combustion très élevé, sous une densité de fission importante, d'où résulte une mobilité atomique



suffisante pour permettre un fluage de cette partie, évitant ainsi de soumettre les couches de recouvrement aux tensions élevées.

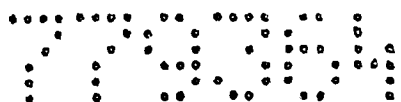
L'invention sera décrite ci-après plus en détail, à l'aide d'un exemple nullement limitatif en se référant aux figures jointes et en comparant cet exemple avec une particule de type classique, fabriquée selon les procédés faisant partie de l'état de la technique.

La figure 1 montre une coupe schématique d'une particule fabriquée selon l'état de la technique, et la figure 2 une coupe schématique d'une particule selon l'invention.

La particule de la figure 1 comprend une microsphère 1 de 800 microns de diamètre, constituée de 80 % d'oxyde d'uranium et de 20 % d'oxyde de plutonium, intimement mélangés, et ayant une densité de 80 % de la densité théorique. Cette microsphère est ensuite recouverte en lit fluidisé par des couches de protection, constituées d'une première couche 2 de carbone pyrolytique de faible densité de 20 microns déposés à partir d'acétylène à 1200°C et d'une deuxième couche 3 de carbure de silicium de 40 microns déposée à partir de trichlorométhylsilane à 1400°C.

Lors de l'irradiation de cette particule, elle subit un gonflement qu'on peut exprimer en une augmentation de volume de 1,8 % pour 10.000 MWj/t. Pour une irradiation de 100.000 MWj/t l'augmentation en volume atteint donc 18 %, c'est-à-dire que le diamètre de la particule augmente de près de 50 microns.

Ces données sont comparées maintenant avec une particule suivant l'invention, représentée à la figure 2. Celle-ci montre une microsphère 11, qui est composée d'un noyau sphérique 14 de 440 microns de diamètre constitué d'oxyde de plutonium de densité élevée par rapport à la densité théorique. Ce noyau 14 est recouvert d'une couche d'oxyde d'uranium 15 de 180 microns d'épaisseur, de densité relativement basse par rapport à la densité théorique.



L'ensemble de la microsphère 11 a une densité ou volume libre de 80 % de la densité théorique.

La microsphère 11 est ensuite recouverte d'une couche 12 de 20 microns de carbone pyrolytique de faible densité et d'une couche 13 de 40 microns de carbure de silicium ; les couches 12 et 13 ayant été déposées de la même façon que les couches 2 et 3 précitées.

Lors de l'irradiation de cette particule la densité de fission dans le noyau 14 d'oxyde de plutonium atteint une valeur extrêmement élevée qui détruit toute résistance mécanique des matériaux et leur donne des propriétés de fluage qu'ils n'ont normalement qu'à haute température. La majorité du gonflement de cette particule est donc due aux fissions dans l'oxyde d'uranium. Il a été déterminé que pour une irradiation de 100.000 MWj/t de cette particule, le taux de combustion dans la couche d'oxyde d'uranium peut être évalué à 20.000 MWj/t, ce qui correspond à un accroissement de volume (par gonflement) de 3,6 %, c'est-à-dire que le diamètre augmente de 10 microns.

La comparaison de ces deux particules montre clairement l'avantage de l'invention. En effet, le gonflement de la particule selon l'invention a été réduit jusqu'à 1/5ème du gonflement qui se produirait dans une particule selon l'état de la technique.

Par ailleurs, la particule selon l'invention présente encore l'avantage supplémentaire que l'application des couches de recouvrement peut se faire plus facilement. En effet, étant donné que la couche de carbure de silicium est déposée à partir d'un gaz chloriné, et que le chlore peut passer à travers la couche de pyrocarbone de basse densité, il risque d'attaquer le plutonium s'il s'agit d'une particule selon l'état de la technique. Pour les particules selon la présente invention ce danger n'existe pas, étant donné que le plutonium est protégé par la couche d'oxyde d'uranium.

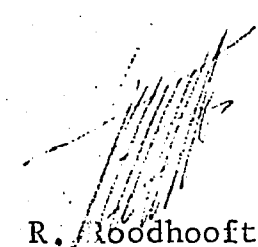
7204

REVENDEICATIONS

1. Particule combustible pour réacteur nucléaire constituée de matières fertile et fissile recouvertes d'au moins une couche imperméable, caractérisée en ce que la matière fissile est entourée de la matière fertile.
2. Particule combustible suivant la revendication 1 caractérisée en ce que la matière fertile est constituée d'uranium naturel, d'uranium appauvri ou de thorium sous forme d'oxyde, de carbure, de nitrure, ou de mélange de ces composés.
3. Particule combustible suivant la revendication 1 caractérisée en ce que la matière fissile est constituée de plutonium, d'uranium 235 ou d'uranium 233 sous forme d'oxyde, de carbure, de nitrure, ou de mélange de ces composés.
4. Particule combustible telle que décrite et illustrée.

Bruxelles, le 15 février 1972

B E L G O N U C L E A I R E


R. Roodhooft,
Chef du Service des Brevets.

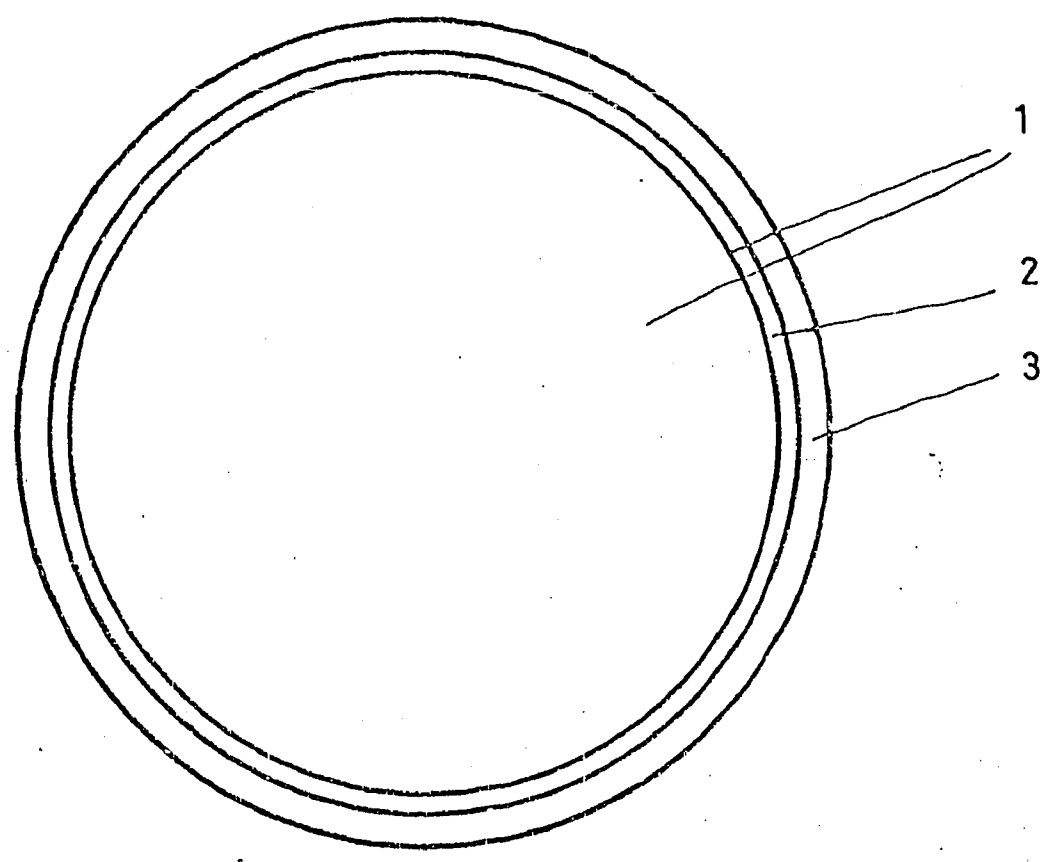


Fig. 1

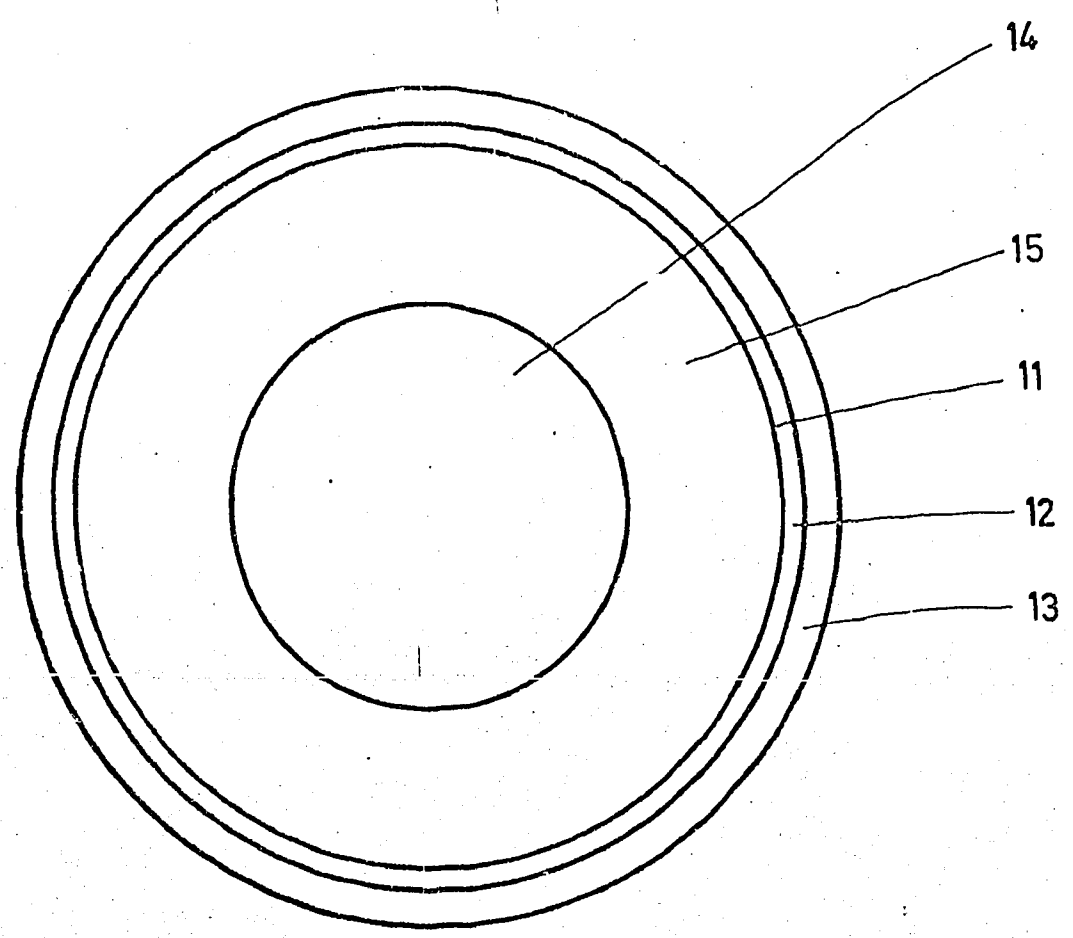


Fig. 2

Bruxelles, le 15 février, 1972.

R. Roodhooft