

Brevet N°
du ... 27 MARS 1981
Titre délivré ... 24 JUIN 1981

GRAND-DUCHÉ DE LUXEMBOURG



Monsieur le Ministre de l'Économie Nationale
Service de la Propriété Industrielle,
LUXEMBOURG

Demande de Brevet d'Invention

I. Requête

COMMUNAUTE EUROPEENNE DE L'ENERGIE ATOMIQUE (EURATOM) (1)

Bâtiment Jean Monnet, Plateau du Kirchberg

Boîte Postale 1907, Luxembourg (2)

à 15,40 dépôse ce 27 MARS 1981 (3)

heures, au Ministère de l'Economie Nationale, à Luxembourg :

1. la présente requête pour l'obtention d'un brevet d'invention concernant :

(4)

Spannungsarmer Kernbrennstoff auf Karbidbasis
mit materialeigenem, metallischen Korngrenzfilm

déclare, en assumant la responsabilité de cette déclaration, que l'(es) inventeur(s) est (sent) :

(5)

Hansjoachim MATZKE

Burgunder Weg 6, 7504 Weingarten, Deutschland

2. ~~Excellente et exacte description de l'invention~~

tex

3. la description en langue allemande de l'invention en deux exemplaires ;

4. ~~Planches techniques aux deux exemplaires~~

5. la quittance des taxes versées au Bureau de l'Enregistrement à Luxembourg,

le 27 MARS 1981

(6) revendique pour la susdite demande de brevet la priorité d'une (des) demande(s) de déposée(s) en (7)

le (8)

au nom de EURATOM (9)

élit domicile pour lui (elle) et, si désigné, pour son mandataire, à Luxembourg Communauté Européenne de l'Energie Atomique, Bâtiment Jean Monnet, Boîte Postale 1907 (10)
sollicite la délivrance d'un brevet d'invention pour l'objet décrit et représenté dans les annexes susmentionnées, — avec ajournement de cette délivrance à mois.

Le Fondé de pouvoir

G. LANNOY

II. Procès-verbal de Dépôt

La susdite demande de brevet d'invention a été déposée au Ministère de l'Economie Nationale, Service de la Propriété Industrielle à Luxembourg, en date du :

27 MARS 1981

à 15,40 heures

Pr. le Ministre de l'Economie Nationale,
p. d.

Le Chef du Service de la Propriété Industrielle,

A 68007



(1) Nom, prénom, firme, adresse — (2) s'il y a lieu „représente par ..” agissant en qualité de mandataire — (3) date du dépôt en toutes lettres — (4) titre de l'invention — (5) noms et adresses — (6) brevet, certificat d'addition, modèle d'utilité — (7) pays — (8) date — (9) déposant originaire — (10) adresse — (11) 6, 12 ou 18 mois.

EUROPAEISCHE ATOMGEMEINSCHAFT (EURATOM)

Patentanmeldung

Erfinder: Hansjoachim MATZKE

Spannungsarmer Kernbrennstoff auf Karbidbasis
mit materialeigener, metallischen Korngrenzfilm

Die üblichen keramischen Karbid-Reaktorbrennstoffe werden in Form von Tabletten mit formschlüssiger Korngefügestruktur hergestellt, wobei im Raktorbetrieb bei hohen Temperaturen durch thermoelastische Spannungen grosse innere Zug-Druck-Werkstoffspannungen entstehen. Diese führen zu katastrophal und unkontrolliert verlaufenden Brüchen, häufig durch die ganz Tablette in Form von radialen (oder auch konzentrischen) Rissen gehend. Die so entstehenden Tablattenbruchstücke verursachen durch Reibung und Verkantung örtlich weit überhöhte Hüllohrspannungen und Dehnungen, die zum Bruch des Hüllohrs führen und auf diese Art die Lebensdauer des Brennstabs begrenzen. Ein Brennstoff,

der ein niedrigeres Spannungsfeld entwickelt und feinkörnig zerbricht, verursacht eine geringere Hüllrohrbelastung und verspricht somit eine erhöhte Lebenserwartung des Brennstabes.

Es ist bekannt, dass man, um die eigentlich entgegengesetzte Werkstoff-eigenchaften, d.h. Härte und Zähigkeit, zu steigern, bisher geringere Mengen von Fremdzusätzen, meist auf oxidischer Basis, eingesetzt hat. Einlagerungen von Fremdsubstanzen sind in einem Kernbrennstoff aus neutronenphysikalischen, Oxideinlagerungen aus thermodynamischen Gründen unerwünscht. Ein fortgeschrittener Kernbrennstoff mit erniedrigter Bruchfestigkeit und geringer reaktorbestrahlungsinduzierter Spannungs-entwicklung kann jedoch auch ohne Zusätze von Fremdstoffen durch Ab-weichungen der Zusammensetzung von der Stöchiometrie erreicht werden. Dies ist im Falle von erheblichem Kohlenstoffüberschuss und Bildung einer M_2C_3 -Phase (M = Metall, d.h. Uran und Plutonium) durch Ausbildung eines Korngrenzennetzwerks möglich. Für den Fall, dass M_2C_3 -Bildung an den Korngrenzen unerwünscht ist, z.B. zur Herabsetzung der Aufkohlung des Hüllrohrs, wird im folgenden eine andersartige Lösung vorgeschlagen.

Im Falle des einphasigen Karbidbrennstoffes (z.B. UC für thermische Reaktoren wird durch Bildung eines Mikrofilmes (Filmdicke weniger als 1 μm) von Uranmetall an den Korngrenzen ein stark ausgeprägtes Korn-grenzenbruchverhalten erzielt. Dies ermöglicht den Abbau thermoelasti-scher und durch Bestrahlung im Reaktorkernentstandener Spannungen im Brennstoff ohne katastrophal verlaufende Rissbildung, da durch die so erhaltene abgerundete Grobkornstruktur von ungefähr 100 μm Korngrösse und den bei Belastung (Spannung) auftretenden Korngrenzenrissen für einen Grossteil dieser Kornstruktur im Vergleich zur verzahnten korn-förmigen Struktur der kraftschlüssige Bindungszusammenhang (Bindungs-kräfte) herabgesetzt wird. Dabei entsteht bei Anliegen einer äusseren Spannung ein labiler Kornbeharrungszustand und damit Drehmomente je Korn, die vorzugsweise die Zugspannungsempfindlichkeit dieses Kernbrennstoffes wesentlich erhöhen. Dieses Materialverhalten bewirkt bei wieder-holter Bildung von thermoelastischen Spannungen eine ebenso wiederkehrende Vielzahl von Krongrenzenrissen, wodurch die Bildung durchgehender

katastrophal verlaufender radialer und konzentrischer Risse in den Brennstofftabletten vermieden wird und ein Grossteil der an die Korngrenzen als Korngrenzendekoration gewanderten Spaltgasblasen ihr Spaltgas über das Rissvolumen abgeben. Dadurch wird die Grösse des Spannungsfeldes im Brennstoff verringert.

Somit kann die obenbeschriebene Grobkornstruktur im Gegensatz zur formschlüssigen globularen Gefügestruktur ihre positiven Eigenschaften zum Spannungsabbau auch für den Fall beibehalten, dass M_2C_3 -Bildung an den Korngrenzen unerwünscht ist. Dabei wird durch die vorher beschriebene U-Filmbildung bei der Entstehung von Spannungen die Löslösung von Matrix-Körnern aus dem Strukturverbund bewirkt und dadurch die Spannung weitgehend beseitigt.

Das vorgeschlagene einphasige UC-Material mit praktisch stöchiometrischer Zusammensetzung (U-Metallfilm weniger als 1 μm) vermeidet die Nachteile unterstöchiometrischer Karbide wie hohe Schwellrate und schlechte Verträglichkeit mit dem Hüllrohrwerkstoff sowie das schlechte Bruchverhalten der sonst üblichen Karbide. Die Bindungskräfte im Karbid nehmen mit sinkendem Kohlenstoffgehalt nicht nur im Kristallgitter ab, auch die atomare Beweglichkeit an den Korngrenzen wird grösser.

Aufgrund des so geschwächten Kornzusammenhaltes der Struktur, zusammen mit der zur Kornverlagerung günstigen Kornform, wird ebenfalls eine Plastifizierung der Keramik erreicht, die Spannungsabbau ohne kritische Rissbildung ermöglicht.

Karbidischer Hochleistungsbrennstoff mit Uran-Mikrofilm an den Korngrenzen erlaubt einen erhöhten Wirkungsgrad bzw. Abbrand durch den geringeren Aufbau innerer Spannungen. Der maximal zulässige Abbrand ist beim heutigen Stand der Technik durch die Standfestigkeit des Brennstoffhüllrohrs bestimmt. Durch den Einfluss der entdeckten Uran-Metallmikrofilm-Korngrenz-Netzwerkstrukturen werden darüberhinaus Sicherheitsaspekte bezogen auf den Kühlkreislauf und den Umweltschutz (Entweichen von Spaltgasen und radioaktiven Partikeln oder Aerosolen im Falle des Hüllrohrbruchs bei Ueberbeanspruchung) günstig beeinflusst.

Patentansprüche

- 1) Keramischer Uran-Karbid-Kernbrennstoff UC_x ($x \sim 1$), gekennzeichnet durch einen Uranmetall-Mikrofilm dünner Schichtdicke als weiche Korngrenzschicht zur Herabsetzung der Korngrenzbindungs Kräfte und zur Begünstigung von Korngrenz-Gleitbewegungen.
- 2) Keramischer Uran-Karbid-Kernbrennstoff wie beschrieben in Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Uranmetall-Mikrofilm eine Schichtdicke von weniger als 1 μm hat.

*

*

*

J. LANNOY