

A1

**DEMANDE
DE BREVET D'INVENTION**

(21)

N° 80 22163

(54)

Elément combustible pour réacteurs nucléaires de recherche et d'essais de matériaux.

(51)

Classification internationale (Int. Cl. ⁸). G 21 C 3/36.

(22)

Date de dépôt 16 octobre 1980.

(33) (32) (31)

Priorité revendiquée : RFA, 16 octobre 1979, n° P 29 41 878.8.

(41)

Date de la mise à la disposition du
public de la demande B.O.P.I. — « Listes » n° 18 du 30-4-1981.

(71)

Déposant : Société dite : NUKEM GMBH, résidant en RFA.

(72)

Invention de : Karl-Gerhard, Milan Hrovat, Hans Huschka, Karl Heinz Koch et Ottomar Pfahls.

(73)

Titulaire : *Idem* (71)

(74)

Mandataire : Cabinet Bert, de Keravenant et Herrburger,
115, bd Haussmann, 75008 Paris.

L'invention concerne un élément combustible pour réacteurs nucléaires d'essai des matériaux et de recherche, essentiellement constitué par des plaques de matière combustible contenant du combustible nucléaire et/ou de la matière fertile, et par des éléments de support, pour ces plaques de matière combustible.

L'élément combustible des réacteurs d'essai de matières (MTR) du type classique, est constitué par des plaques de matière combustible planes ou courbes. Chaque plaque de matière combustible représente une couche, dans laquelle la matière combustible proprement dite, habituellement un alliage aluminium-uranium, ou un aluminure d'uranium dispersé dans une matrice d'aluminium, est enrobé de tous côtés par l'aluminium de façon étanche. L'assemblage de ces plaques de matière combustible en un élément combustible peut s'effectuer au moyen d'éléments de support selon une disposition en caisse ou en tube. Les éléments combustibles standards comprennent entre douze et vingt-trois plaques disposées parallèles et également espacées les unes des autres, de telle sorte que de l'eau puisse circuler entre elles pour le refroidissement et la modération.

Les plaques de matière combustible ont en général une épaisseur de 1,27 mm et une largeur d'environ 72 mm. La zone de matière combustible proprement dite, (l'aliment), présente ici une épaisseur de 0,51 mm et une largeur d'environ 63 mm ; la longueur active se monte à 600 mm.

Les éléments MTR de cette conception se distinguent par une surface de transfert calorique grande, comme souhaitée.

La fabrication des plaques de matière combustible s'effectue normalement par laminage, selon la technique dite "d'encadrement".

L'utilisation d'uranium, avec enrichissement élevé en isotope U 235, comme matière combustible, s'est avérée optimale pour les éléments combustibles MTR, car la quantité élevée de matière de fission nécessaire ici, peut être obtenue simplement, avec des densités de matière combustible relativement faibles.

Un enrichissement élevé de l'uranium en U 235 conduit par ailleurs à une matière sensible, dont la diffusion doit être bien contrôlable et limitée. Pour des

raisons de protection contre la prolifération, il est exigé que pour les réacteurs MTR, on puisse également utiliser de l'uranium moins enrichi en U 235 (maximum 20 % en poids).

L'adaptation des réacteurs MTR à des enrichissements moins élevés en U 235 impose que, pour équilibrer la perte en neutrons plus élevée à cause de la plus grande teneur en U 238, la teneur en matière de fission soit plus élevée. Ceci, et la mise en oeuvre d'uranium moins enrichi, demande, si l'on ne change pas la géométrie des plaques, que la densité de matière combustible soit environ 5 fois plus grande. De ce fait, pour les matières combustibles MTR actuelles, à base d'aluminure d'uranium, on dépasse les limites que la technique de transformation peut encore dominer.

On a proposé à cet effet de mettre en oeuvre des plaques de matière combustible qui contiennent, comme matière combustible, du dioxyde d'uranium, sous forme de petites plaquettes minces frittées, ensachées dans de petites enveloppes en alliage. Les plaques de matière combustible de ce type sont surtout adaptées pour ajuster les réacteurs MTR d'un enrichissement élevé à un enrichissement plus faible. L'inconvénient ici c'est que les plaquettes en UO_2 doivent présenter, pour des raisons de technique de transformation, une épaisseur minimale de plus de 2 mm. Ceci conduit à des plaques de matière combustible, dans lesquelles le rapport entre la surface de transfert calorique et le volume de matière combustible est bien moins favorable qu'avant. Il s'en suit des inconvénients considérables pour la technique de refroidissement. De plus, l'épaisseur relativement grande de la plaque conduit à une modération détériorée et une température de matière combustible plus élevée. En outre, le respect des tolérances très strictes dans les mesures des plaquettes minces, conduit à des coûts de finition très élevés.

L'invention s'est fixé pour objectif de mettre au point un élément combustible pour réacteurs nucléaires d'essai des matériaux et de recherche essentiellement constitué par des plaques de matière combustible contenant du combustible nucléaire et/ou de la matière fertile, et par des éléments de support, qui ne pose pas de problème concernant le fonctionnement du réacteur lorsqu'on passe d'un enrichissement élevé en U 235, à un enrichissement moindre. Il est important en parti-

culier, qu'avec une épaisseur de plaque aussi faible que possible, on puisse assurer un rapport aussi élevé que possible de la surface de transfert calorique au volume de matière combustible.

5 A cet effet, l'invention propose un élément combustible caractérisé en ce que les plaques de matière combustible individuelles sont constituées par une combinaison de plusieurs cellules plates, non divisées elles-mêmes, contenant la matière combustible et/ou nucléaire sous revêtement
10 étanche maintenues entre des éléments de support.

Ces cellules, dont la grandeur de passage, ou écartement entre les parois recevant la matière combustible et/ou fertile, sera de préférence inférieure à 2 mm, peuvent être disposées de façon soit perpendiculaire, soit parallèle,
15 à l'axe longitudinal de l'élément combustible.

Les cellules contiennent de préférence l'uranium et/ou le thorium, sous forme de composés non métalliques, mais on peut également utiliser des composés métalliques d'uranium et/ou de thorium. Il s'est avéré particulièrement
20 avantageux que la densité de ces composés d'uranium et/ou de thorium soit supérieure à 4 g/cm^3 .

Les cellules contiennent la matière combustible et/ou fertile de préférence sous la forme de particules sphériques discrètes. Il est avantageux d'utiliser,
25 en cas de cellules disposées perpendiculairement à l'axe longitudinal de l'élément combustible, un remblai mou de particules, et en cas de cellules disposées parallèlement à cet axe, des particules enrobées dans une matrice.

Par la mise en oeuvre de particules de
30 matière combustible ayant un diamètre situé de préférence entre 0,2 et 0,7 mm, il est possible de maintenir à un faible niveau l'épaisseur totale de la plaque. On assure ainsi que, par suite du rapport favorable entre la surface de matière combustible et le volume de matière combustible, la température de la matière
35 combustible peut être maintenue basse. Ceci est valable en particulier lorsque les particules de matière combustible sont incorporées avantageusement dans une matrice bonne conductrice thermique. Un autre avantage de l'élément combustible selon l'invention consiste en ce que, grâce à la disposition compacte
40 des plaques minces, on peut assurer une modération favorable,

c'est-à-dire un bon rapport des atomes hydrogène aux atomes U 235.

Un autre avantage essentiel de la conception d'élément combustible selon l'invention consiste en ce que, les particules de matière combustible peuvent être obtenues de façon économiquement rentable dans un vaste domaine, à l'intérieur de limites étroites, avec des dimensions définies avec précision, de sorte que la teneur en U 235 peut être ajustée simplement et avec une grande souplesse aux exigences qui pèsent sur les réacteurs MTR.

A cela s'ajoute la possibilité de remplacer l'isotope U 238 partiellement par du thorium, et de rendre ainsi encore plus difficile la diffusion du plutonium rendu fertile par formation de l'uranium 233.

Les figures 1 à 4 représentent schématiquement des modes de réalisation, donnés à titre d'exemple, des plaques de matière combustible selon l'invention.

- La figure 1 montre une plaque de matière combustible 1, constituée par les cellules 2 individuelles, disposées perpendiculairement à l'axe longitudinal de l'élément combustible, qui sont fixés dans deux éléments latéraux de support 3.

- La figure 2 est une vue latérale correspondant à la figure 1.

- La figure 3 représente deux cellules 2 reliées par joint soudé 4, contenant les particules de matière combustible 5 sous forme de remblai mou.

- La figure 4 montre une cellule dans laquelle les particules 5 sont enrobées dans une matrice 6.

Au lieu de joint soudé 4, les cellules 2 peuvent être reliées entre elles par une conformation du type languette et rainure, ou bien posées seulement librement les unes sur, ou à côté, des autres.

L'invention sera mieux comprise à l'aide des exemples décrits ci-après.

Pour la préparation de plaques de matière combustible avec des plaquettes en siliciure d'uranium comme matière combustible dans les cellules individuelles, on se sert comme poudre de départ, de siliciure d'uranium en poudre avec 4 % en poids de silicium et 96 % en poids d'uranium. La

poudre dont les grains ont une dimension inférieure à 125 microns est pressée en plaquettes dans une matrice carrée, sous une pression de 5,5 K bars, puis les ébauches sont frittées. Après frittage, les dimensions des plaquettes sont les suivantes :

5	Epaisseur	1,4 mm
	Largeur	14,8 mm
	Longueur	14,8 mm

La densité géométrique des plaques est de 12,5, ce qui correspond à une densité théorique de 80 %.

10 On fabrique par laminage des cellules à matière combustible de 60 mm de long, de 15 mm de large et de 1,5 mm d'ouverture, à partir de tubes d'aluminium ayant une épaisseur de paroi de 0,3 mm.

15 Les cellules sont chargées chacune de quatre plaquettes, soumises à une pression réduite, remplies d'hélium, et enfin, fermées par soudage. Ensuite, les cellules chargées de matière combustible sont glissées dans deux plaques latérales, perpendiculairement à l'axe longitudinal de l'élément combustible, et fermement serrées au moyen d'un outil
20 de laminage.

Pour la préparation de plaques de matière combustible avec des particules en oxyde et en carbure d'uranium, enrobées dans une matrice en aluminium-silicium, dans les cellules individuelles, on utilise comme matière combustible,
25 des particules sphériques constituées par UO_2 et UC_2 , dans un rapport en poids de 1 : 1. Les particules, ayant une teneur en uranium de 91,45 % en poids, une teneur en oxygène de 6,7 % en poids, et une teneur en carbone de 1,85 % en poids, présentent un diamètre moyen de 300 microns. La densité des particules est
30 de $10,5 \text{ g/cm}^3$, ce qui correspond à une densité théorique de 94 %.

Les particules sont obtenues selon un procédé connu, par coulée d'une solution de nitrate d'uranyl. Pour enrober les particules de matière combustible, on emploie
35 une poudre d'alliage aluminium-silicium, avec 12 % en poids de Si. Pour une grosseur de grain moyenne de 50μ , la densité en vrac de la poudre est de $1,1 \text{ g/cm}^3$.

Pour préparer les cellules destinées à recevoir la matière combustible, on soude d'abord ensemble deux
40 plaques d'aluminium de 0,4 mm d'épaisseur, avec une longueur

d'environ 600 mm et une largeur de 70 mm, en-dessous et sur les côtés, de telle façon qu'entre les plaques on obtienne une fente verticale de 1 mm de large. La fente est alors remplie avec un mélange homogène, constitué par 23,4 g de poudre d'alliage Al-Si, et 213,2 g de particules de matière combustible. Le procédé d'obtention d'un mélange homogène de ce type est décrit dans le brevet DT- 2.333.94.

Ensuite, les cellules chargées sont soumises à une pression réduite, elles sont fermées par soudage de leur extrémité supérieure, et assemblées par pressage à 590° C, sous une pression spécifique de 1 Kbar. Par cette opération, l'épaisseur nominale des plaques diminue de 1,8 à environ 1,6 mm.

Les essais métallographiques subséquents n'ont démontré aucune réaction entre les particules de matière combustible et la poudre d'alliage d'aluminium, dans les conditions de fabrication choisies. La zone d'environ 0,8 mm d'épaisseur, contenant la matière combustible, avait une conformation uniforme et elle était liée à l'enveloppe d'aluminium sans clivages. Les cellules individuelles sont alors fixées à leur petit côté, au moyen de deux plaques, et elles sont incorporées à l'élément combustible parallèlement à l'axe longitudinal de ce dernier.

Pour la préparation de plaques de matière combustible avec des particules libres en oxyde d'uranium dans les cellules individuelles, on se sert comme matière combustible de particules UO_2 obtenues selon un procédé connu, avec un diamètre moyen de 300 microns et une densité de $10,7 \text{ g/cm}^3$, ce qui correspond à une densité théorique de 98 %.

On prépare d'abord, à partir de tubes en alliage de zircon de 0,5 mm d'épaisseur de paroi, par laminage, des cellules plates avec une ouverture de 1 mm et une largeur de 15 mm.

Tous les quatre cellules, on ferme leur extrémité inférieure par soudage, et on les relie entre elles en les soudant latéralement à une plaque. On charge les cellules avec les particules de matière combustible, puis on les soumet à une pression réduite, on les remplit d'hélium et on les ferme par soudage.

Le degré de tassement des particules est de 50 % en volume, ce qui correspond à une densité d'uranium, dans la zone de matière combustible, de $4,7 \text{ g/cm}^3$.

Pour la préparation de plaques de matière
5 combustible avec des particules en vrac d'oxyde d'uranium et
de thorium, dans les cellules individuelles, on utilise des
particules de matière combustible obtenues par précipitation à
partir d'une solution de nitrate d'uranyl-thorium. Les parti-
10 cules se composent de 80 % en poids d' UO_2 et 20 % en poids de
 ThO_2 . Les particules ont une densité de $10,4 \text{ g/cm}^3$, ce qui
correspond à une densité théorique de 97 %. Le diamètre moyen
est de 320 microns. Le degré de tassement dans la zone de matière
combustible se monte à 45 % en volume, ce qui correspond à une
densité de métaux lourds de $4,7 \text{ g/cm}^3$. Le traitement ultérieur
15 s'effectue selon l'exemple 3.

REVENDEICATIONS

1.- Elément combustible pour réacteurs nucléaires d'essai des matériaux et de recherche, essentiellement constitué par des plaques de matière combustible contenant
5 du combustible nucléaire et/ou de la matière fertile, et par des éléments de support, caractérisé en ce que les plaques de matière combustible individuelles (1) sont constituées par une combinaison de plusieurs cellules (2) plates, non divisées elles-mêmes, contenant la matière combustible et/ou nucléaire sous
10 revêtement étanche maintenues entre des éléments de support (3).

2.- Elément combustible selon la revendication 1, caractérisé en ce que la hauteur du jour des cellules (2) est inférieure à 2 mm.

3.- Elément combustible selon l'une des
15 revendications 1 ou 2, caractérisé en ce que les cellules (2) sont disposées soit de façon seulement perpendiculaire, soit de façon seulement parallèle à l'axe longitudinal des éléments combustibles.

4.- Elément combustible selon l'une
20 quelconque des revendications 1 à 3, caractérisé en ce que les cellules individuelles (2) contiennent de l'uranium et/ou du thorium, sous forme de composés non métalliques.

5.- Elément combustible selon l'une
quelconque des revendications 1 à 4, caractérisé en ce que la
25 densité des composés d'uranium et/ou de thorium est supérieure à 4 g/cm^3 .

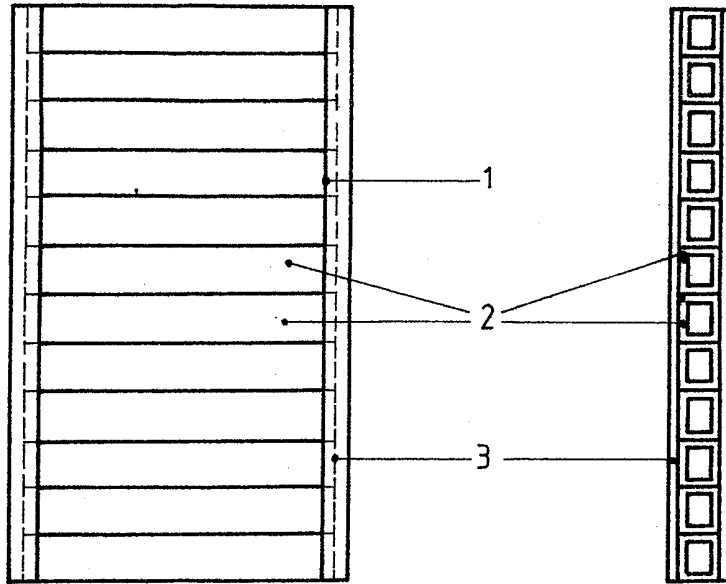
6.- Elément combustible selon l'une
quelconque des revendications 1 à 5, caractérisé en ce que, dans l'arrangement, les cellules (2) contiennent les matières
30 combustibles et/ou fertiles sous forme de particules (5) discrètes sphériques.

7.- Elément combustible selon l'une
quelconque des revendications 1 à 6, caractérisé en ce que, en disposant les cellules (2) de façon perpendiculaire à l'axe
35 longitudinal des éléments combustibles, les particules (5) se présentent sous forme de remblai mou.

8.- Elément combustible selon l'une
quelconque des revendications 1 à 6, caractérisé, en ce que, en disposant les cellules (2) de façon parallèle à l'axe
40 longitudinal des éléments combustibles, les particules (5) sont

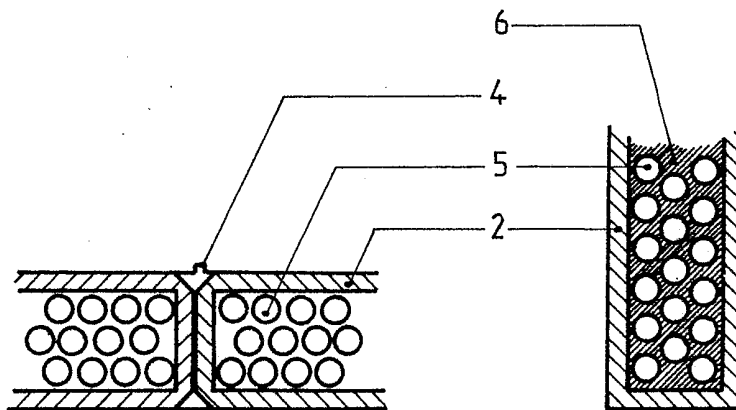
insérées dans une matrice (6).

9.- Elément combustible selon l'une quelconque des revendications 1 à 8, caractérisé en ce que les particules (5) présentent un diamètre de 0,2 à 0,7 mm.



FIG_1

FIG_2



FIG_3

FIG_4