

①9 RÉPUBLIQUE FRANÇAISE
INSTITUT NATIONAL
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE
PARIS

①1 N° de publication :
(à n'utiliser que pour les
commandes de reproduction)

2 695 507

②1 N° d'enregistrement national :

92 11010

⑤1 Int Cl⁵ : G 21 C 3/07, 3/20

①2

DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

A1

②2 Date de dépôt : 10.09.92.

③0 Priorité :

④3 Date de la mise à disposition du public de la
demande : 11.03.94 Bulletin 94/10.

⑤6 Liste des documents cités dans le rapport de
recherche préliminaire : *Se reporter à la fin du
présent fascicule.*

⑥0 Références à d'autres documents nationaux
apparentés :

⑦1 Demandeur(s) : URANIUM PECHINEY — FR.

⑦2 Inventeur(s) : Diez Philippe, Morel Bertrand et Netter
Pierre.

⑦3 Titulaire(s) :

⑦4 Mandataire : Pechiney Maurice Daniel.

⑤4 Gaine pour combustible nucléaire revêtue d'un piège à produit de fission et son procédé d'obtention.

⑤7 Gaine métallique pour combustible nucléaire revêtue
d'un agent piégeant les produits de fission, apparaissant
en cours d'irradiation dans un réacteur nucléaire, à base
d'oxyde métallique (par exemple du type silico-zirconate) et
procédé d'obtention du revêtement par CVD ou PVD en
évitant toute élévation de température préjudiciable de la
gaine.

FR 2 695 507 - A1



GAINÉ POUR COMBUSTIBLE NUCLEAIRE REVETUE D'UN PIEGE A PRODUIT DE FISSION
ET SON PROCEDE D'OBTENTION

DOMAINE TECHNIQUE

L'invention concerne une gaine pour combustible nucléaire revêtue extérieurement ou de préférence intérieurement d'une couche d'un agent piégeant les produits de fission à longue durée de vie, tels que Cr, Sr..., générés en cours d'irradiation dans un réacteur nucléaire. Elle
5 concerne particulièrement son mode d'obtention.

ETAT DE LA TECHNIQUE

Les réacteurs du type PWR, BWR, à neutrons rapides, utilisant des
10 pastilles combustibles à base d'oxyde fritté UO_2 ou d'oxydes mixtes génèrent "in situ" des produits de fissions dont certains ne sont pas spécifiquement gazeux dans le coeur du réacteur. En fonctionnement normal, ces produits de fission solides restent généralement en place
15 dans les pastilles, bien qu'il puisse se produire, pour certains d'entre eux, des migrations, dues aux écarts de température entre le coeur et la périphérie d'une pastille, vers l'extérieur de ladite pastille. Mais, même dans ce cas, la majeure partie d'entre eux reste confinée dans les pastilles combustibles.

20 Les produits de fissions apparaissent dans les pastilles sous forme élémentaire et peuvent former des composés, relativement stables à la température du coeur du réacteur (300-900°C), avec les oxydes combustibles constituant lesdites pastilles.

25 Cependant en cas d'accident majeur provoquant une élévation de température excessive du coeur d'un réacteur suivi d'un endommagement voire de la fusion dudit coeur, de tels composés sont insuffisamment stables et les produits de fission se voient alors libérés avec des
30 risques importants de dissémination dans, et de contamination de, l'environnement; le risque est d'autant plus grand que ces produits de fission ont des durées de vie longues (quelques dizaines d'années). C'est le cas par exemple de Cs 137 et Sr 90.

Un dispositif permettant de piéger le césium, en fonctionnement normal, dans un réacteur à neutrons rapides a été proposé dans le brevet FR 2438319 (Westinghouse); il consiste à intercaler entre les pastilles combustibles fissiles et fertiles des capteurs de Cs formés de pastilles, de faible densité et de forme particulière, constituées de
5 TiO_2 ou Nb_2O_5 . Ces oxydes fixent Cs à la température habituelle du coeur du réacteur et la forme des pastilles permet d'éviter toute contrainte, due à un gonflement apparaissant en cours de fonctionnement normal du réacteur, sur le gainage du combustible. Dans ce dispositif, il apparaît que le césium doit atteindre les pastilles ds capteurs pour être piégé
10 et que seul le Cs ayant suffisamment migré est effectivement piégé.

Par ailleurs en cas d'accident majeur un tel dispositif se révélerait insuffisamment efficace pour éviter toute dissémination du Cs; en effet tout le Cs, non encore piégé, présent dans les pastilles combustibles,
15 pourrait s'échapper hors du gainage et contaminer l'environnement, la vitesse de piégeage n'étant pas assez rapide.

DESCRIPTION DE L'INVENTION

Pour éviter un tel risque de dissémination la demanderesse a mis au
20 point une gaine métallique pour combustible nucléaire caractérisé en ce qu'elle est revêtue d'un agent piégeant les produits de fission, apparaissant en cours d'irradiation, à base d'oxydes métalliques.

Vu la solidité et l'excellente adhérence du revêtement selon
25 l'invention, la gaine peut être revêtue sur sa paroi extérieure, mais de préférence sur sa paroi interne, éventuellement sur les deux.

Cet agent piégeant forme avec les produits de fission à piéger un composé suffisamment stable pour que lesdits produits de fission ne
30 soient pas relargués à des températures pouvant dépasser 1600°C ou en cas de fusion du coeur du réacteur.

Les agents piégeant utilisés sont généralement un mélange ou un composé constitué de deux au moins des oxydes suivants: Al_2O_3 , CeO_2 , Nb_2O_5 ,
35 SiO_2 , TiO_2 , UO_{2+x} , V_2O_3 , Y_2O_3 , ZrO_2 , et de préférence Al_2O_3 , Nb_2O_5 , SiO_2 , TiO_2 , ZrO_2 .

L'agent piégeant, qui est donc un mélange ou un composé constitué doit avoir une faible section de capture et donner un composé stable et non volatil avec le produit de fission à piéger.

5 Ainsi des couples d'oxydes les plus intéressants sont ceux des métaux du type: Al/Si (silico-aluminate), Zr/Si (silico-zirconate), Al/Ti (titano-aluminate) etc...

En particulier la combinaison des ces oxydes peut amener à utiliser des agents piégeants conduisant après piégeage à des composés du type:

- 10 . pollucite (de formule approchée $CsAlSi_2O_6$)
 . ou zéolite contenant Cs dénommée Cs-F (de formule approchée $CsAlSiO_4$),
 . ou silico-aluminate de Cs riches en alumine,
 . ou silico-zirconate, titano-aluminate (ayant par exemple des
 15 structures du type hollandite) de Cs,
 . titano-niobate, urano-zirconate de Sc.

On peut utiliser des solutions équivalentes pour piéger le strontium.

20 Par ailleurs le revêtement selon l'invention doit être mis en place et lié de façon la plus adhérente possible à la gaine qui est en général à base d'alliage de Zr, sans en modifier ses caractéristiques mécaniques ou de résistance à la corrosion. Ceci n'est possible qu'en évitant toute élévation intempestive de température.

25 La demanderesse a donc recherché des procédés, pour obtenir un tel revêtement, qui préservent la qualité métallurgique de la gaine sur laquelle il est déposé.

30 Le revêtement de l'invention est effectué par des procédés permettant de limiter, voire d'éviter, tout échauffement de la gaine support généralement en alliage de Zr du type Zircalloy, afin de ne pas modifier sa structure, donc de conserver ses caractéristiques (mécanique, étanchéité, résistance à la corrosion, ...).

35 Parmi ces procédés, on utilise de préférence des méthodes de dépôt en

phase vapeur par voie chimique ou par voie physique, connus respectivement sous les noms de CVD (Chemical Vapor Deposition) ou PVD (Physical Vapor Deposition) et en particulier la CVD assistée par plasma RF (radio fréquence) ou micro-onde, ou assistée par laser, et la PVD assistée par laser (par exemple dépôt pas ablation d'une cible à l'aide d'un laser pulsé). Ces procédés sont particulièrement intéressants compte tenu de l'aspect des gaines, ou crayons, qui sont habituellement longs (plus de 4 m.) et étroits (diamètre environ 9 mm).

Pour les revêtements effectués par des procédés de CVD réactive, on utilise des composés précurseurs permettant d'obtenir par décomposition et réaction l'agent piégeant à déposer; il est préférable que lesdits précurseurs aient une tension de vapeur suffisante pour qu'ils soient gazeux à des températures inférieures à 400°C pour la raison évoquée plus haut.

Ainsi par exemple quand l'agent piégeant est un silico-zirconate, qui représente un mode avantageux de réalisation de l'invention compte tenu de ses qualités de rétention des produits de fission à très haute température, on peut utiliser comme mélanges précurseurs

- de la silice:

d'une part un précurseur de Si tel que SiH_4 , SiCl_4 , un organométallique du type alkyloxysilane, comme le tétraéthylorthosilicate (TEOS), l'octaméthylcyclotetrasiloxane (OMCTS);

d'autre part un oxydant, réagissant avec le précurseur précédent, tel que O_2 , O_3 , CO_2 , N_2O , H_2O (vapeur), $\text{CO}_2 + \text{H}_2$, qui peut être dilué par un gaz neutre.

- de la zircone

d'une part un précurseur de Zr tel que ZrCl_4 , un organométallique comme l'acétylacétonate, le tétraméthylheptadionate, le trifluoroacétylacétonate ou l'hexafluoroacétylacétonate de Zr; d'autre part un oxydant comme précédemment.

Pour obtenir des dépôts d'autres agents piégeant, on choisit des précurseurs adaptés, par exemple TiCl_4 pour TiO_2 , AlCl_3 pour Al_2O_3 etc...

Concernant le précurseur contenant l'élément métallique, il est souvent avantageux de le former seulement au moment de son emploi, par exemple dans un réacteur adjacent à l'enceinte de dépôt, par réaction entre ses éléments constitutifs par exemple entre HCl ou Cl₂ et le métal voulu (Si, Zr...).

5

Cette variante présente l'avantage de pouvoir régler la proportion des réactifs de façon, par exemple, à se trouver en défaut d'halogène pour obtenir un sous halogénure susceptible de réagir à plus basse température avec l'oxydant et donner plus facilement le dépôt final d'agent piégeant.

10

Pour obtenir une gaine revêtue selon l'invention par CVD thermique, on introduit un mélange des gaz précurseurs permettant d'obtenir l'agent piégeant souhaité par exemple à l'intérieur de la gaine à revêtir intérieurement tout en la chauffant de façon à obtenir le dépôt, ou dans une enceinte contenant les gaines à revêtir extérieurement également chauffée, ou les deux simultanément.

15

En alternative la CVD assistée par plasma RF ou micro-onde ou par laser est surtout intéressante pour effectuer un dépôt selon l'invention à partir de précurseurs se décomposant à des températures supérieures à 400°C, de façon à préserver la qualité métallurgique des gaines de Zr ou zircalloy.

20

Ainsi pour effectuer un dépôt selon l'invention sur la paroi intérieure des gaines, on peut opérer par CVD assistée par plasma micro-onde généré dans un mélange de gaz précurseurs, avec post-décharge dans la gaine. Pour cela on crée un plasma à l'aide de micro-ondes dans les gaz précurseurs à l'intérieur d'une enceinte dans laquelle débouche une extrémité des gaines à revêtir intérieurement; ce plasma est véhiculé dans les gaines, par pompage effectué par l'autre extrémité desdites gaines par l'intermédiaire d'une autre enceinte dans laquelle débouche lesdites gaines, et va s'y post-décharger pour constituer le dépôt recherché.

30

35

Etant donné la grande longueur des gaines il est avantageux de procéder de la sorte successivement à partir de chaque extrémité.

La figure 1 illustre un dispositif apte à effectuer un tel dépôt par post-décharge. Il comprend deux enceintes étanches (1) et (2) assujetties respectivement à chacune des extrémités des gaines (3) à revêtir intérieurement, généralement en zircalloy. Ces enceintes sont en matériau conducteur de l'électricité ; elles servent alternativement de cavité génératrice de plasma micro-onde et de volume de pompage.

Elles comportent chacune une face munie de moyens de fixation étanches (4) (5) des extrémités des gaines à revêtir (3). Ces moyens sont isolants au passage des micro-ondes ; ils comprennent généralement un bloc de matériau isolant muni d'orifices compatibles avec le diamètre des gaines (3).

Elles comportent également des orifices de pompage (13,23), d'introduction des gaz précurseurs (11,12,21,22), des embouchures de guide d'onde (14,24) reliés à des générateurs micro-ondes (15,25) et des moyens de chauffage (non représentés) pour leur maintien en température lorsqu'elles sont utilisées comme cavité génératrice de plasma.

Ces enceintes sont mises sous vide à une pression d'environ 10^{-4} / 10^{-5} torr. Elles fonctionnent généralement en alternance comme générateur de plasma et comme enceinte de pompage ; ainsi pendant que l'enceinte (1) fonctionne en générateur, un pompage est effectué en permanence dans l'enceinte (2).

Après mise sous vide de l'ensemble, le pompage n'est maintenu que dans une enceinte, par exemple (2), les gaz précurseurs sont introduits à la température voulue dans l'autre enceinte (1), tandis que fonctionne le générateur micro-onde (15).

Au cours du dépôt, la pression dans l'enceinte à plasma peut être située dans un intervalle assez large pouvant aller de 10^{-3} à 100 torr.

Dans le cas où l'on veut effectuer un dépôt selon l'invention sur la paroi extérieure des gaines, on peut procéder à un dépôt par CVD assisté

par plasma RF (radio fréquence).

La figure 2 illustre schématiquement un tel dispositif.

5 On y voit une enceinte de réaction (21) fermée, généralement cylindrique, comportant à l'intérieur une gaine concentrique (32) polarisée en RF (22) reliée à un générateur RF (non représenté) par l'intermédiaire d'un adaptateur d'impédance (23). Dans la gaine polarisée en RF (22) prennent place les gaines à revêtir (3) qui sont mises à la masse (27).

10

Après avoir fait le vide par le conduit (25) dans l'enceinte de réaction (21) on y introduit les gaz précurseurs jusqu'à une pression de 10^{-2} à 10 torr par un ou plusieurs conduits débouchant par exemple en plusieurs endroits le long de la gaine polarisée (22) au voisinage des gaines (3).

15 Par application d'un champ électrique HF sur la gaine polarisée (22), il se forme alors un plasma à partir des gaz précurseurs et le dépôt de l'agent piégeant se fait à la surface des gaines (3).

20 Ainsi les gaines selon l'invention présentent l'avantage d'avoir un revêtement d'agent piégeant très adhérent permettant, en particulier, l'introduction des pastilles combustibles sans le détériorer et résistant aux conditions de fonctionnement du réacteur nucléaire ; ce revêtement, de plus, ne nécessite pas d'usinage préalable à l'introduction des pastilles combustibles dans la gaine.

25

On peut aussi effectuer le dépôt selon l'invention à l'intérieur des gaines par un procédé PVD assisté laser, par exemple par ablation par laser d'un agent piégeant à partir d'une cible.

30 La figure 3 illustre une telle technique.

Tout d'abord, on réalise une cible, par exemple sous forme d'une pastille cylindrique de diamètre inférieur à celui de la gaine (de façon à ce qu'elle puisse y pénétrer) et de hauteur pouvant atteindre 100 mm, de composition identique à celle du dépôt que l'on veut effectuer; ainsi
35 cette pastille peut être en $\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2$, $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$, $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2$ obtenue

par frittage de poudre ou CVD thermique classique.

Il est toutefois souhaitable d'utiliser ladite CVD thermique pour obtenir une cible de haute pureté ; la cible peut être alors constituée d'un dépôt épais dudit composé effectué sur un support de forme
5 appropriée (par exemple pastille de W ou de graphite).

Par ailleurs on dispose d'une enceinte étanche (31) dans laquelle la gaine (3) est maintenue à l'aide de supports (32). L'enceinte (31) comporte une fenêtre (33) transparente à la radiation d'un laser
10 excimère (généralement ArF, KrF ou autres halogénures de gaz rare) située dans l'axe de la gaine (3) et un conduit (34) pour y faire le vide (de l'ordre de 10^{-10} torr). La cible (35) est introduite dans la gaine (3) et fixée sur un moyen lui permettant de se déplacer en rotation sur elle-même et le long de la gaine (3).

15 Ce moyen est généralement programmable par l'intermédiaire d'un automate (46). Pour conserver l'étanchéité on peut utiliser une succession de sas à pressions différentes de plus en plus basses.

Le faisceau laser est dirigé sur la cible (35). Généralement il est
20 pulsé, avec des fréquences de l'ordre de la nanoseconde, et délivre des impulsions de haute puissance (de l'ordre de 100W). Ceci provoque l'ablation et l'éjection des molécules de l'agent piégeant de la cible, sous forme de plasma dans un angle solide dépendant de la puissance du laser, de la nature dudit composé etc... Un effet thermique localisé
25 peut se superposer provoquant une vaporisation et augmentant ainsi la quantité de plasma.

Les particules éjectées à grande vitesse vont se déposer sur la paroi pour former le dépôt selon l'invention.

30 Ce type de dépôt s'effectue sans accroissement de la température de la gaine généralement en zircalloy et donc ne provoque pas de transformation métallurgique notable de celle-ci. Tout type d'agent piégeant peut être déposé par cette technique (qu'il ait une évaporation congruente ou pas) sous réserve qu'il existe une méthode pour fabriquer
35 une cible de composition identique à celle du dépôt désiré.

On peut encore réaliser un dépôt d'agent piégeant selon l'invention sur la paroi extérieure d'une gaine par un procédé de CVD assisté par un laser pulsé, consistant en une pyrolyse locale des gaz précurseurs à l'aide d'une radiation laser pulsée.

5 Pour cela, comme précédemment, les gaines sont placées dans une enceinte étanche dans laquelle on peut faire un vide poussé et on peut introduire les gaz précurseurs (généralement à une pression d'environ 10^{-3} torr). Ces derniers sont par exemple $ZrCl_4$, $SiCl_4$ et O_2 , pour un dépôt de silico-zirconate.

10 La radiation laser arrive perpendiculairement aux gaines à travers une (ou plusieurs) fenêtres disposées ainsi parallèlement à la grande longueur des gaines.

15 Elle est constituée d'impulsions à haute fréquence et de très forte puissance, provoque la réaction chimique des gaz précurseurs et ainsi le dépôt de l'agent piégeant souhaité. Il est à remarquer que cette activation thermique de la réaction chimique ne produit pas d'échauffement néfaste de la masse de la gaine, seule la surface subit un échauffement local sans effet nocif sur la gaine. Les vitesses de
20 dépôt peuvent atteindre $10 \mu\text{m/h}$.

Les gaines sont généralement montées sur un barillet tournant, qui les fait passer les unes après les autres devant la ou les fenêtres tout en les faisant tourner sur elles-mêmes autour de leur axe.

25 Les fenêtres sont équipées d'un ou plusieurs lasers mobiles, par exemple du type CO_2 , YAG, excimère..., se déplaçant parallèlement aux gaines.

30 Une variante de ce procédé consiste à déposer l'agent piégeant par photolyse d'un mélange de gaz précurseurs à l'aide d'un laser excimère ou d'un rayonnement UV incohérent.

L'équipement utilisé est le même que précédemment par contre l'activation photochimique de la réaction de dépôt entre les gaz précurseurs se fait à l'aide d'un laser spécifique dont la radiation,
35 choisie spécialement, permet ladite activation photochimique, ou à l'aide d'un rayonnement UV incohérent permettant de traiter de plus

grandes surfaces grâce à une pénétration plus profonde du faisceau dans le mélange précurseur.

On obtient des vitesses de croissance du dépôt un peu plus faibles que précédemment.

- 5 Par contre en combinant les deux méthodes (par pyrolyse et par photolyse) on obtient des cinétiques de dépôt supérieures à 10 $\mu\text{m}/\text{h}$.

L'avantage d'utiliser des procédés de dépôt tels que décrits ci-dessus vient du fait que l'on peut déposer simultanément plusieurs composés
10 oxygénés de métaux, ce qui permet d'utiliser une grande variété d'agents piégeant, pouvant contenir par exemple plus de deux constituants.

15

20

25

30

35

REVENDICATIONS

1. Gaine métallique pour combustible nucléaire, caractérisée en ce qu'elle est revêtue d'un agent piégeant les produits de fission, apparaissant en cours d'irradiation, à base d'oxydes métalliques.
- 5 2. Gaine métallique selon la revendication 1, caractérisée en ce que l'agent piégeant est un mélange ou un composé contenant deux au moins des oxydes suivants: Al_2O_3 , CeO_2 , Nb_2O_5 , SiO_2 , TiO_2 , UO_{2+x} , V_2O_3 , Y_2O_3 , ZrO_2 et de préférence Al_2O_3 , Nb_2O_5 , SiO_2 , TiO_2 , ZrO_2 .
- 10 3. Gaine métallique selon l'une quelconque des revendications 1 ou 2, caractérisée en ce que la gaine est revêtue sur sa paroi intérieure.
4. Gaine métallique selon l'une quelconque des revendications 1 ou 2, caractérisée en ce que la gaine est revêtue sur sa paroi extérieure.
- 15 5. Gaine métallique selon l'une quelconque des revendications 1 à 4, caractérisée en ce que le revêtement est obtenu par CVD ou PVD.
- 20 6. Gaine métallique selon la revendication 5 caractérisé en ce que la CVD est une CVD thermique.
7. Gaine métallique selon l'une quelconque des revendications 2 ou 5, caractérisée en ce que la CVD est assistée par plasma micro-onde généré dans un mélange de gaz précurseurs, avec post-décharge dans la gaine.
- 25 8. Gaine métallique selon l'une quelconque des revendications 4 ou 5, caractérisée en ce que la CVD à partir de gaz précurseurs est assistée par plasma RF généré à l'extérieur des gaines.
- 30 9. Gaine métallique selon l'une quelconque des revendications 2 ou 5, caractérisée en ce que la PVD est effectuée par ablation à l'aide d'un faisceau laser, d'un agent piégeant situé sur une cible se déplaçant à l'intérieur de la gaine.
- 35 10. Gaine métallique selon l'une quelconque des revendications 4 ou 5,

caractérisée en ce que la CVD à partir de gaz précurseurs est assistée par un laser provoquant une pyrolyse et/ou une photolyse desdits gaz précurseurs.

113

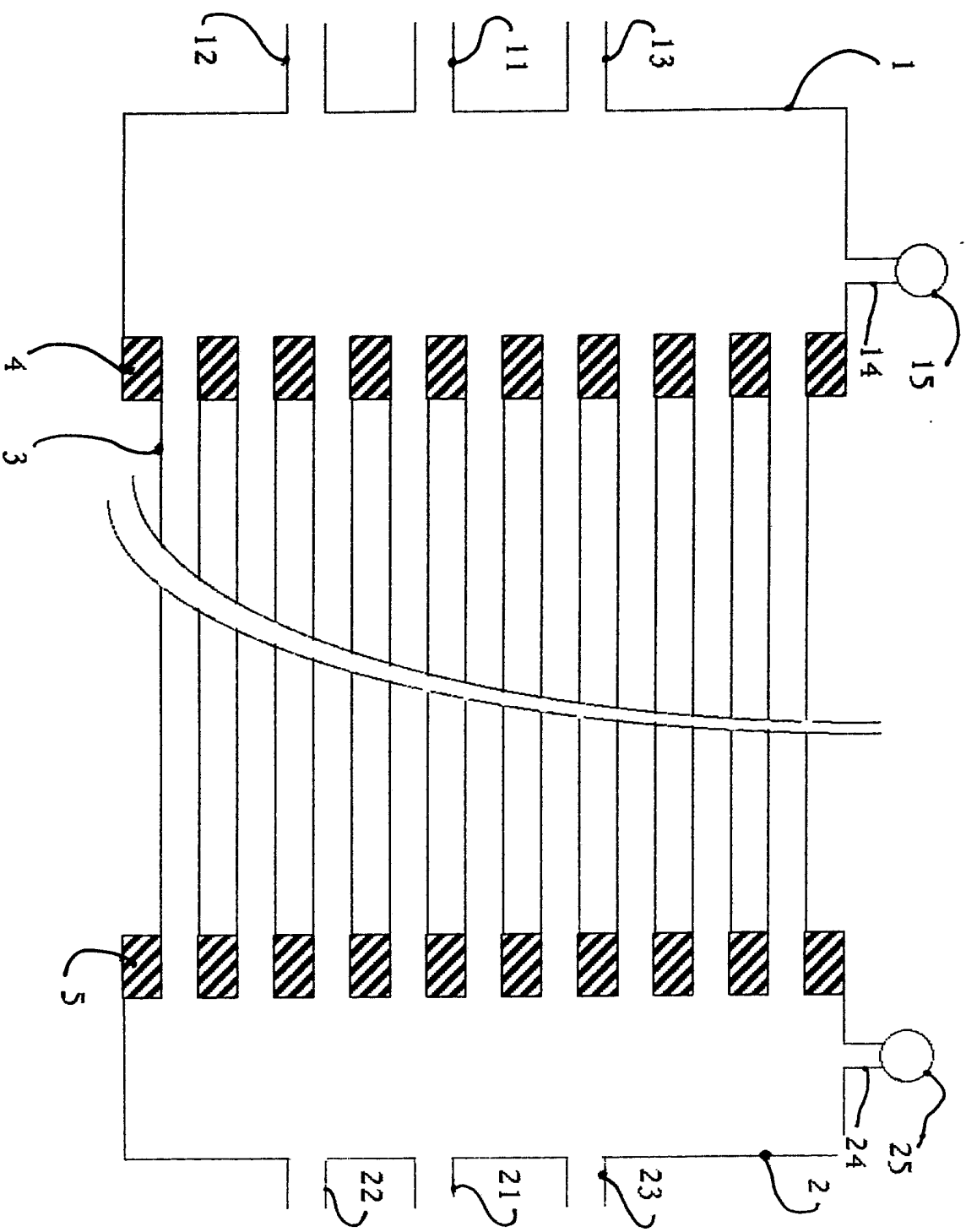


FIGURE 1

213

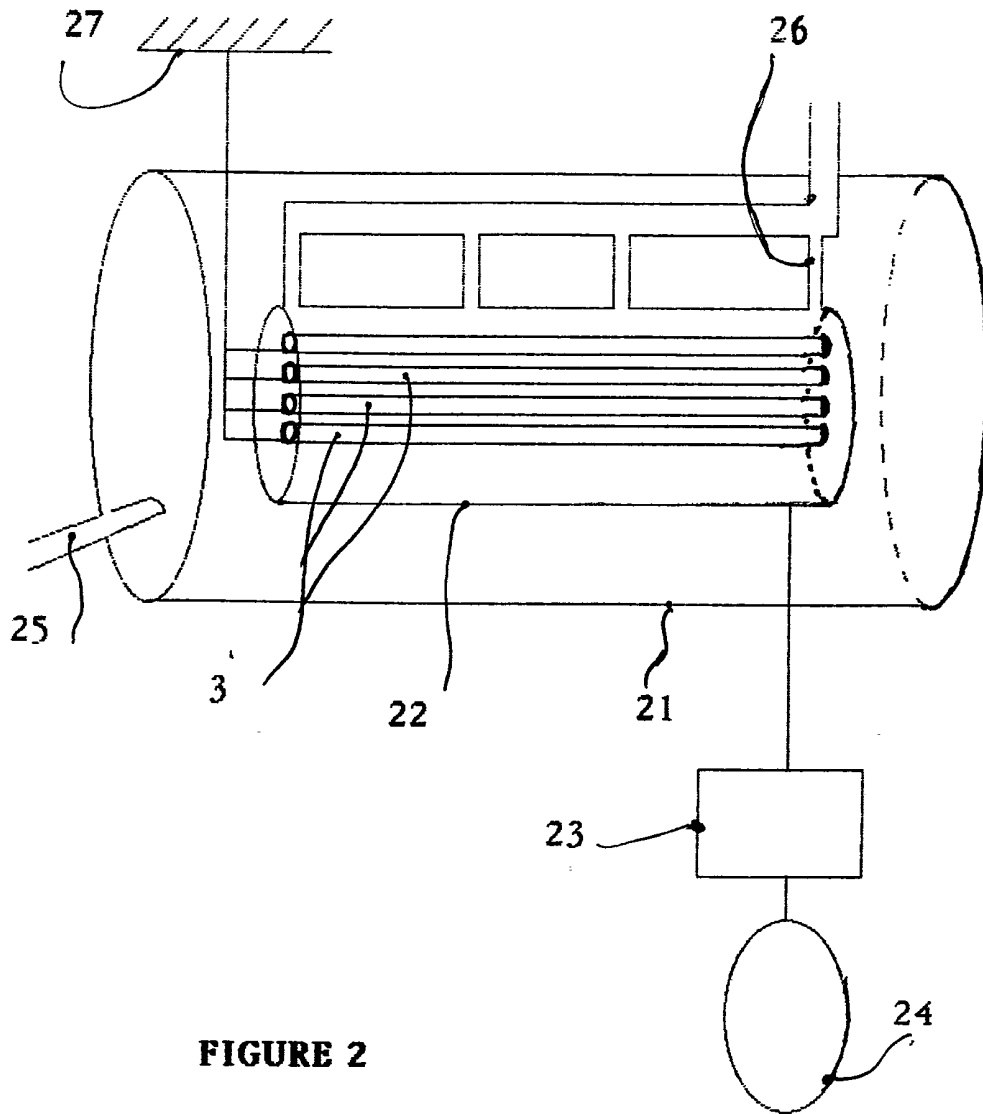


FIGURE 2

313

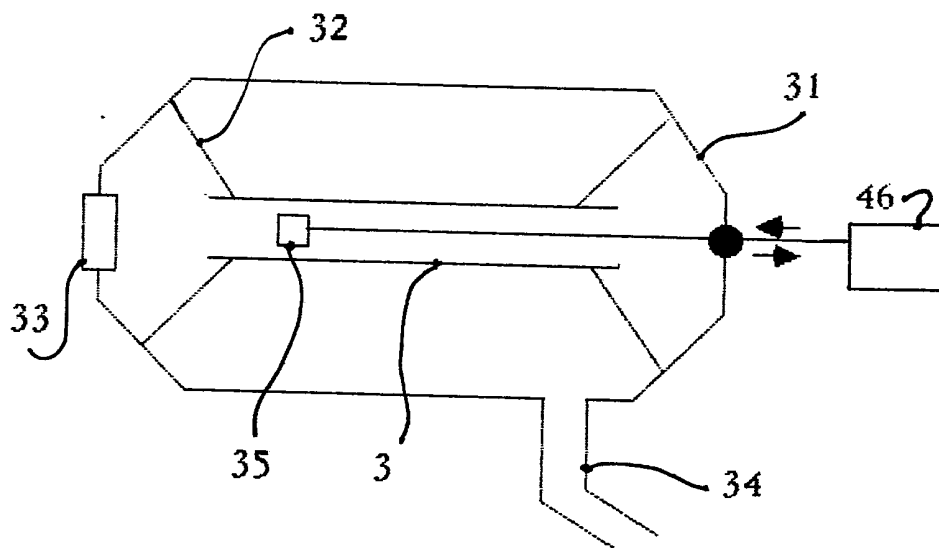


FIGURE 3

INSTITUT NATIONAL
de la
PROPRIETE INDUSTRIELLE

RAPPORT DE RECHERCHE
établi sur la base des dernières revendications
déposées avant le commencement de la recherche

FR 9211010
FA 479818

| DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS | | Revendications concernées de la demande examinée |
|---|---|--|
| Catégorie | Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes | |
| X | DE-A-2 245 113 (GESELLSCHAFT FÜR KERNENERGIEVERWERTUNG IN SCHIFFBAU UND SCHIFFFAHRT GMB) * page 6; figure 2 * --- | 1,2,4,5 |
| X | GB-A-1 248 184 (WESTINGHOUSE ELECTRIC CORPORATION) * page 4, ligne 59 - ligne 64 * * page 6, ligne 32 - ligne 45 * * page 6, ligne 98 - ligne 105; figure 8 * --- | 1-3 |
| A | US-A-4 032 400 (JOHNSON ET AL.) * colonne 2, ligne 20 - ligne 54; figure 1 * * colonne 3, ligne 20 - ligne 29 * --- | 1-3,5 |
| A | FR-A-2 394 146 (DORYOKURO KAKUNENRYO KAIHATSU JIGYODAN) * page 3; figure 1 * --- | 1-3,5 |
| A | FR-A-1 532 581 (COMMISSARIAT À L'ÉNERGIE ATOMIQUE) * page 1 colonne de droite; page 2 colonne de gauche; figures 1,2 * --- | 1,5,6,9 |
| A | FR-A-2 276 662 (GENERAL ELECTRIC COMPANY) * page 9, ligne 6 - page 10, ligne 15; figures 2,3 * --- | 1-3,5,7,10 |
| D,A | FR-A-2 438 319 (WESTINGHOUSE ELECTRIC CORPORATION) ----- | |
| Date d'achèvement de la recherche | | Examineur |
| 18 MAI 1993 | | JANDL F. |
| <p>CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES</p> <p>X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : pertinent à l'encontre d'au moins une revendication ou arrière-plan technologique général O : divulgation non-écrite P : document intercalaire</p> <p>T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet bénéficiant d'une date antérieure à la date de dépôt et qui n'a été publié qu'à cette date de dépôt ou qu'à une date postérieure. D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons & : membre de la même famille, document correspondant</p> | | |

EPO FORM 1503 03.82 (P0413)