

19



Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets

11 Numéro de publication:

**0 211 779
A1**

12

DEMANDE DE BREVET EUROPEEN

21 Numéro de dépôt: 86420187.6

51 Int. Cl.4: **G21F 1/08**

22 Date de dépôt: 09.07.86

30 Priorité: 11.07.85 FR 8510983

43 Date de publication de la demande:
25.02.87 Bulletin 87/09

64 Etats contractants désignés:
AT BE CH DE GB IT LI LU NL SE

71 Demandeur: **Fonderles Montupet**
55, rue Deguingand
F-92300 Levallois Perret(FR)

72 Inventeur: **Planchamp, Claude**
4, rue Victor Hugo
F-60500 Chantilly(FR)

74 Mandataire: **Vanlaer, Marcel**
PECHINEY 28, rue de Bonnel
F-69433 Lyon Cédex 3(FR)

54 **Absorbeur de radiations nucléaires.**

57 L'invention est relative à un absorbeur de radiations nucléaires.

Elle est caractérisée en ce que cet absorbeur est constitué par un alliage de gadolinium et d'aluminium.

Elle trouve son application dans tous les problèmes d'absorption de rayonnements qu'ils soient du domaine civil ou militaire tels que par exemple la réalisation de paniers de transport et de stockage de déchets radioactifs, de racks de piscine pour réacteurs nucléaires, de blindages de véhicules militaires et d'abris anti-atomiques, etc...

EP 0 211 779 A1

ABSORBEUR DE RADIATIONS NUCLEAIRES

La présente invention est relative à un absorbeur de radiations nucléaires.

Avec le développement des techniques nucléaires, de nombreuses recherches ont été menées à travers le monde pour concevoir et fabriquer des absorbeurs de radiations efficaces et compétitifs. Pour atteindre ce but, il faut que les matériaux mis en oeuvre pour les réaliser répondent aux critères suivants :

-posséder des propriétés nucléaires particulières : grande section efficace de capture, faible émission secondaire, bonne stabilité dans le temps par rapport au rayonnement.

-avoir un point de fusion élevé pour supporter l'échauffement engendré par l'absorption des rayonnements, notamment des rayonnements neutroniques.

-être bons conducteurs de chaleur pour assurer une évacuation rapide des calories créées.

-présenter des caractéristiques mécaniques permettant une mise en forme aisée.

-résister à la corrosion dans l'atmosphère ou le milieu de travail.

-coûter le moins cher possible.

Parmi tous les matériaux utilisés pour absorber les neutrons, les plus connus sont le cadmium, le samarium, l'euprotium, le bore et le gadolinium.

Le cadmium a l'inconvénient d'être un produit très toxique et d'avoir une température de fusion - (321 °C) et une température d'ébullition (765 °C) très basses. Le samarium et l'euprotium n'ont pratiquement pas donné lieu à un développement industriel à cause de leur prix trop élevé.

Le plus largement répandu d'entre eux est le bore qui est utilisé sous différentes formes : bore élémentaire, borures, carbure de bore, acide borique, etc... D'ailleurs, de nombreux brevets ont été déposés à ce sujet. Toutefois, ce matériau a de très mauvaises propriétés mécaniques et doit être fortement dilué dans une matrice métallique telle que l'aluminium, par exemple, afin d'acquies les qualités nécessaires pour pouvoir prendre la forme requise par chaque type d'absorbeur. Mais ainsi, son pouvoir absorbant se trouve grandement diminué et doit être compensé par une augmentation du volume de matériau utilisé ce qui, en définitive, élève sensiblement le prix de l'absorbeur. De toute façon, le bore étant pratiquement insoluble dans l'aluminium, le matériau obtenu est un produit com-

posite dont la réalisation nécessite de recourir à des procédés de fabrication très élaborés si on veut obtenir une dispersion régulière du bore dans la matrice d'aluminium et éviter une hétérogénéité de la capacité d'absorption.

Le gadolinium et son oxyde sont déjà utilisés depuis de nombreuses années dans diverses installations nucléaires où, mélangés au combustible, ils jouent le rôle de modérateurs. Mais, leur application à la confection d'absorbeurs de radiation pose des problèmes.

En ce qui concerne l'oxyde, généralement disponible sous forme de poudre, il doit être mélangé à d'autres produits en utilisant des technologies très complexes et ses propriétés mécaniques très mauvaises rendent son application, lors de la réalisation d'absorbeurs de forme complexe, à la fois délicate et coûteuse. De plus, cet oxyde a une mauvaise conductibilité thermique et sa capacité d'absorption est relativement réduite par rapport à celle du gadolinium élémentaire.

Quant au métal lui-même, son prix reste élevé et sa mise en oeuvre difficile à cause de sa très grande oxydabilité.

Cependant, le gadolinium présente dans le spectre de neutrons lents la section efficace de capture la plus élevée de tous les absorbeurs connus. Notamment, comparée au bore, sa section pour des neutrons thermiques d'énergie 10^{-2} eV est 100 fois plus grande. Quant aux neutrons rapides, son efficacité est aussi bonne que celle du bore.

C'est pourquoi la demanderesse, consciente de l'intérêt du gadolinium, mais aussi de ses inconvénients, a cherché et trouvé le moyen d'en faire des absorbeurs de radiation nucléaires intéressants.

Cet absorbeur est caractérisé en ce qu'il est constitué par un alliage de gadolinium avec un aluminium choisi dans le groupe comprenant l'aluminium pur, l'aluminium allié, l'aluminium pur ou allié contenant une phase dispersée.

Il s'agit donc d'un alliage à base de gadolinium et d'aluminium dans lequel la proportion de gadolinium se situe entre 0,05 % et 70 % en poids. En-dessous de 0,05 % l'effet absorbant s'avère trop réduit et au-dessus de 70 % se produisent des difficultés d'élaboration de l'alliage. De préférence, cette fourchette se situe entre 0,1 et 15 % et dépend de la nature et du flux de radiations à absorber.

L'aluminium utilisé peut être pur soit qu'il ait été raffiné par un moyen quelconque tel que l'électrolyse trois couches ou la cristallisation fractionnée ou simplement tel qu'il est recueilli à la sortie des cuves d'électrolyse avec ses impuretés habituelles comme le fer et le silicium.

Mais cet aluminium peut aussi être un alliage classique tel que ceux désignés par les nombres 1000, 5000 et 6000 dans les normes de l'Aluminium Association, ce qui permet de renforcer les propriétés mécaniques des absorbeurs obtenus, ou encore un alliage d'aluminium avec au moins un autre métal ayant également des qualités absorbantes tel que le cadmium, le samarium, l'europlium, le lithium, l'hafnium, le tantale, ces derniers alliages pouvant également être obtenus à partir d'alliage des types 1000, 5000 et 6000.

De plus, l'aluminium allié ou non peut contenir une phase dispersée telle que des fibres de carbone ou autres destinées à renforcer la tenue mécanique des absorbeurs, ou encore, combiné ou

non à ces fibres, un produit absorbant des radiations tel que, par exemple, le bore et ses dérivés qui peut représenter jusqu'à 30 % de la masse d'aluminium mise en oeuvre.

Les alliages de gadolinium-aluminium ainsi réalisés permettent, en raison de leurs bonnes propriétés mécaniques, d'être facilement transformés en absorbeurs de forme quelconque par l'un au moins des procédés de fabrication choisis parmi le moulage, que ce soit en sable, en coquille, sous basse ou haute pression, le laminage à chaud ou à froid, l'extrusion et le forgeage.

Ces alliages donnent des structures parfaitement homogènes avec des sections efficaces de capture très régulières. De plus, leur densité, qui est variable en fonction du pourcentage de Gd donne, pour des teneurs en Gd allant jusqu'à 30 % en poids, une valeur proche de celle de l'aluminium, ce qui permet la réalisation de barrières neutroniques très légères. Le Tableau I donne des valeurs de densité pour deux alliages binaires Al-Gd, l'un à 11 % de Gd, l'autre à 23 % de Gd.

TABLEAU I : DENSITE D'ALLIAGES BINAIRES Al-Gd

| <u>% pondéral de Gd</u> | <u>Densité</u> |
|-------------------------|----------------|
| 11 | 2,92 |
| 25 | 3,12 |

Le matrice aluminium confère aux produits finis une excellente conductibilité thermique (de 120 à 180 W/m² K₂ suivant la matrice aluminium choisie) permettant ainsi d'évacuer rapidement la chaleur créée par l'absorption vers des systèmes refroidisseurs extérieurs.

Le point de début de fusion des alliages Al-Gd testés est très élevé, dans la plupart des cas supérieur à 620°C; cette caractéristique permet aux barrières neutroniques ainsi fabriquées de supporter aisément l'échauffement provoqué par l'absorption des neutrons ou d'autres rayonnements.

La masse atomique de Gd étant très élevée (156,9 g), les rayons γ et X notamment sont fortement absorbés.

La résistance à la corrosion, d'une manière générale, n'est pas ou peu affectée par la présence de gadolinium, et les propriétés de corrosion sont proches de celles des matrices aluminium utilisées. Les alliages de série 1000, 5000 et 6000 présentent une excellente tenue à la corrosion contre les agents atmosphériques ou en atmosphère marine. Cette tenue peut encore être améliorée par des traitements de surface appropriés (anodisation, alodine, peinture, revêtements plastiques ...).

Les caractéristiques mécaniques sont élevées et sont fonction de la matrice aluminium choisie. Dans le cas d'alliages aluminium-gadolinium binaires, les propriétés mécaniques varient avec la teneur en gadolinium; le tableau II donne des résultats obtenus sur alliages moulés, l'un avec une teneur en Gd de 12 % en poids, l'autre avec un pourcentage pondéral de 25 %.

TABLEAU II - PROPRIETES MECANQUES D'ALLIAGES BINAIRES Al-Gd

| % pondéral de Gd | Rm MPA | Rp 0,2 MPA | A % | HB |
|------------------|--------|------------|-----|----|
| 12 % | 140 | 60 | 17 | 40 |
| 25 % | 80 | 55 | 0,8 | 54 |

Le Tableau III présente les résultats obtenus sur alliages laminés à 11% de Gd en poids. 15

TABLEAU III - CARACTERISTIQUES MECANQUES DE TRACTION SUR ALLIAGE AL-Gd LAMINE

| % pondéral de Gd | Sens long | | | Sens travers long | | | HB |
|------------------|-----------|------------|-----|-------------------|------------|-----|----|
| | Rm MPA | Rp 0,2 MPA | A % | Rm MPA | Rp 0,2 MPA | A % | |
| 11 | 130 | 110 | 15 | 130 | 110 | 10 | 42 |

En utilisant des matrices aluminium dopées avec des éléments tels que le cuivre, le silicium, le zinc, le magnésium, etc..., le niveau de résistance et de limite élastique peut être fortement augmenté pour atteindre les valeurs suivantes : 35

| | |
|--------|---------------|
| Rm | 280 à 320 MPA |
| Rp 0,2 | 220 à 260 MPA |
| A % | de 3 à 10 % |

Les valeurs supérieures ci-dessus ne sont pas limitatives, étant bien entendu que des compositions d'alliages ternaire, quaternaire, quinaire, etc..., comportant du gadolinium pourraient donner des valeurs bien supérieures à celles-là. 50

L'usinage de ces alliages métalliques ne pose aucun problème, les paramètres et les vitesses de travail à prendre en compte étant les mêmes que celles généralement utilisées pour les alliages d'aluminium. 55

Les applications de cette invention sont multiples et touchent tous les domaines où un problème d'absorption de rayonnement se pose (neutrons, rayons γ , rayons X, que ces domaines soient militaires ou civils.

A titre d'exemples d'application on peut citer : les paniers de transport et de stockage de déchets nucléaires, les racks de piscine pour le stockage des éléments combustibles de réacteurs nucléaires, le blindage d'installation de décontamination, le blindage de véhicules militai-

res, les abris anti-atomiques, les éléments de réacteurs nucléaires, le blindage d'appareils de contrôle utilisant des rayonnements ou des sources radioactives, etc... Cette liste ne saurait en aucun cas être limitative.

Revendications

1. Absorbeur de radiations nucléaires caractérisé en ce qu'il est constitué par un alliage de gadolinium avec un aluminium choisi dans le groupe comprenant l'aluminium pur, l'aluminium allié, l'aluminium pur ou allié contenant une phase dispersée.

2. Absorbeur selon la revendication 1, caractérisé en ce que la proportion de gadolinium est comprise entre 0,05 % et 70 % en poids.

3. Absorbeur, selon la revendication 2, caractérisé en ce que la proportion de gadolinium est comprise entre 0,1 et 15 %.

4. Absorbeur selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'aluminium allié est choisi parmi les alliages désignés par les nombres 1000, 5000 et 6000 dans les normes de l'Aluminium Association.

5. Absorbeur selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'aluminium allié renferme au moins un métal absorbeur de radiations nucléaires.

6. Absorbeur selon la revendication 5, caractérisé en ce que le métal appartient au groupe constitué par le cadmium, le samarium, l'euporium, le lithium, le hafnium, le tantale.

7. Absorbeur selon la revendication 1, caractérisé en ce que la phase dispersée renferme au moins un produit absorbeur de radiations nucléaires.

8. Absorbeur selon la revendication 7, caractérisé en ce que la phase dispersée est constituée par le bore ou un de ses dérivés.

9. Absorbeur selon la revendication 8, caractérisé en ce que le bore représente jusqu'à 30 % en poids de l'aluminium.

10. Absorbeur selon la revendication 1 caractérisé en ce que la phase dispersée est sous forme de fibres.

11. Absorbeur selon la revendication 1, caractérisé en ce qu'il est obtenu suivant l'un au moins des procédés de fabrication choisi parmi le moulage, le laminage, l'extrusion, le forgeage.

5

10

15

20

25

30

35

40

45

50

55

5



| DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS | | | |
|---|--|---|--|
| Catégorie | Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes | Revendication concernée | CLASSEMENT DE LA DEMANDE (Int. Cl. 4) |
| A | DE-A-3 024 892 (THYSSEN INDUSTRIE) * Revendications 1,2; pages 2,7 * | 1-3,5,6 | G 21 F 1/08 |
| A | EP-A-0 055 371 (TOKYO SHIBAURA DENKI) * Page 7, ligne 21 - page 9, ligne 31; abrégé * | 1-3,5-9 | |
| A | CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 97, no. 12, 20 septembre 1982, pages 548,549, résumé no. 100403e, Columbus, Ohio, US; & JP-A-82 38 367 (TOSHIBA CERAMICS CO. LTD.) 03-03-1982 * Résumé * | 1 | |
| A | SINTERED METAL-CERAMIC COMPOSITES, New Delhi, India, 6-9, décembre 1983, pages 159-179, Elsevier Science Publishers, Amsterdam, NL; C. GANGULY et al.: "Dispersion type composites for nuclear reactors" | 1 | DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (Int. Cl. 4) G 21 F 1/00 C 22 C 21/00 |
| A | WO-A-8 401 390 (FONDERIES MONTUPET) * Abrégé * | 1,8,9 | |
| A | GB-A-2 147 729 (KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH) | | |
| Le présent rapport de recherche a été établi pour toutes les revendications | | | |
| Lieu de la recherche LA HAYE | | Date d'achèvement de la recherche 17-10-1986 | Examineur 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 : arrière-plan technologique O : divulgation non-écrite P : document intercalaire</p> <p>T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet antérieur, mais publié à la date de dépôt ou après cette date D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons</p> <p>& - membre de la même famille, document correspondant</p> | | | |