

A1

**DEMANDE
DE BREVET D'INVENTION**

②

N° 75 29712

⑤④ Perfectionnements à la préparation d'éléments de combustible nucléaire avec addition d'un mélange à mouler à des particules de combustible.

⑤① Classification internationale (Int. Cl.²). G 21 C 3/64; C 04 B 35/00; G 21 C 21/00.

②② Date de dépôt 29 septembre 1975, à 13 h 10 mn.

③③ ③② ③① Priorité revendiquée : *Demande de brevet déposée aux États-Unis d'Amérique le 30 septembre 1974, n. 510.282 aux noms de Gary Norris Miertschin et David Frederick Leary.*

④① Date de la mise à la disposition du public de la demande B.O.P.I. — «Listes» n. 17 du 23-4-1976.

⑦① Déposant : Société dite : GENERAL ATOMIC COMPANY, résidant aux États-Unis d'Amérique.

⑦② Invention de :

⑦③ Titulaire : *Idem* ⑦①

⑦④ Mandataire : Cabinet J. Bonnet-Thirion, L. Robida et G. Foldés.

La présente invention concerne des corps carbonés de combustible nucléaire et, plus particulièrement, des procédés pour préparer des éléments de combustible nucléaire renfermant plusieurs corps de combustible nucléaire distincts, en particulier des éléments combustibles destinés à être utilisés dans un réacteur nucléaire à haute température refroidi par un gaz.

Les brevets des Etats-Unis d'Amérique n° 3 274 068 et n° 3 413 196 décrivent différents types d'éléments combustibles pouvant être utilisés dans les réacteurs nucléaires à température élevée refroidis par un gaz, qui utilisent des éléments combustibles constitués d'un bloc d'une matière réfractaire qui est généralement du graphite dense, comportant plusieurs chambres de combustible renfermant un combustible nucléaire fissile et/ou fertile. Le dernier brevet cité décrit un élément combustible sous forme d'un gros bloc hexagonal mesurant, par exemple, 38,1 à 40,6 cm de haut, dont les faces hexagonales opposées sont distantes d'environ 35,6 cm. Chacun de ces éléments combustibles hexagonaux peut renfermer, par exemple, environ 900 trous de réfrigération et 240 chambres de combustible, le diamètre des chambres de combustible étant compris entre 1,27 et 1,91 cm.

Ces chambres de combustible peuvent être remplies de lits de garnissage de particules combustibles enrobées, d'une pâte constituée d'un mélange de particules combustibles enrobées et d'une matrice carbonée, par exemple du brai de houille ou d'éléments moulés ou de corps de combustible conçus pour s'y adapter. Un des procédés de préparation des corps de combustible nucléaire de ce type général est décrit dans le brevet des Etats-Unis d'Amérique n° 3 558 750, et consiste à remplir des cavités de moulage de particules enrobées de combustible nucléaire, puis à injecter sous pression, dans la cavité de moulage, un mélange à mouler constitué d'un liant carboné. Le mélange à mouler peut être constitué d'une résine polymère organique appropriée, par exemple d'une résine phénol-formaldéhyde, avec une charge telle que du graphite ou de la poudre de charbon.

On considère comme important que les corps combustibles utilisés dans ces éléments combustibles permettent à la fois une bonne rétention des produits de fission dans les particules enrobées et un bon transfert de la chaleur de fission vers le courant de refroidissement utilisé pour l'échange de chaleur. On cherche en permanence à améliorer les caractéristiques de ces éléments combus-

tibles.

L'invention a pour objets :

- un mélange à mouler amélioré pour réaliser des corps combustibles carbonés renfermant des particules de combustible nucléaire ;
- un procédé pour préparer des éléments de combustible nucléaire renfermant plusieurs corps de combustible nucléaire disposés dans des chambres et permettant un bon transfert de la chaleur et une bonne rétention des produits de fission ;
- 10 - un mélange à mouler permettant d'obtenir, avec des particules de combustible nucléaire enrobées, des corps combustibles à l'état vert que l'on peut cuire in situ dans les chambres des éléments en combustible nucléaire pour réaliser un élément combustible ayant des caractéristiques de fonctionnement améliorées ; et
- 15 - un procédé pour mouler des corps combustibles verts renfermant des particules de combustible nucléaire enrobées, ces corps verts se prêtant excellemment à la cuisson in situ dans les chambres d'éléments combustibles en formant des corps de combustible nucléaire carbonés dont les performances d'utilisation dans les
- 20 réacteurs sont améliorées.

La demanderesse a découvert qu'on peut préparer un mélange à mouler qui, lorsqu'on le combine à des particules de combustible nucléaire enrobées, peut être utilisé pour préparer des corps combustibles convenant excellemment à l'utilisation dans les réac-

25 teurs nucléaires à haute température. En plus des composants habituels que sont le brai et une matière carbonée en particules telle que de la poudre de graphite, ces mélanges à mouler renferment un additif réduisant le rendement final en coke qui, après ses décomposition et carbonisation finales avec le brai, laisse un résidu

30 ne dépassant pas environ 25 % du poids de la matière moulée d'origine moins les particules de combustible et les particules de carbone.

On choisit l'additif réduisant le rendement final en coke parmi trois catégories de matières organiques. La première catégorie

35 de matières est constituée par le polystyrène et les copolymères de styrène-butadiène ayant un poids moléculaire compris entre environ 500 et 1 000 000, et l'on préfère cette catégorie car elle permet non seulement de diminuer le rendement en coke mais également d'obtenir une viscosité constante dans une gamme de températures

40 étendue. Les copolymères de styrène et de butadiène appro-

priés renferment les monomères dans un rapport molaire compris entre 10 à 1 et 1 à 1. La seconde catégorie est constituée de composés aromatiques (de préférence des hydrocarbures) ayant un poids moléculaire compris entre 75 et 300 tels que, par exemple, 5 le camphre, le naphthalène, l'antracène, le phénanthrène et le téréphtalate de diméthyle. On peut utiliser un mélange de deux ou plus de ces composés. La troisième catégorie est constituée des polymères d'hydrocarbures saturés ayant un poids moléculaire compris entre, environ, 5 000 et 1 000 000 tels que, par exemple, le 10 polyéthylène, le polypropylène et leurs mélanges.

L'invention concerne donc un mélange à mouler approprié destiné à être ajouté à des particules de combustible nucléaire pour préparer des éléments de combustible nucléaire, ce mélange renfermant du carbone en particules et du brai, et l'amélioration con- 15 sistant en l'incorporation d'un additif réduisant la teneur finale en coke du corps combustible formé, cet additif choisi parmi (1) le polystyrène et les copolymères de styrène et de butadiène ayant un poids moléculaire compris entre environ 500 et 1 000 000, (2) les composés aromatiques ayant un poids moléculaire compris entre 20 75 et 300 et (3) les polymères d'hydrocarbures saturés ayant un poids moléculaire compris entre environ 5 000 et 1 000 000.

L'invention est particulièrement utile avec les particules de combustible nucléaire portant des revêtements extérieurs de carbone pyrolytique ou similaires. Plus particulièrement, l'invention 25 permet d'obtenir par moulage des tiges ou des barres vertes de combustible que l'on démoule, puis que l'on cuit in situ dans la chambre de combustible d'un élément combustible en matière réfractaire. Il est souhaitable qu'il n'existe qu'un faible intervalle entre la barre combustible et la surface intérieure de la chambre 30 de combustible, de façon à maintenir la température du combustible à une valeur aussi faible que possible en obtenant le transfert de chaleur maximal avec le courant de refroidissement qui peut s'écouler, soit à travers des passages de refroidissement ménagés dans la masse de l'élément combustible, ou immédiatement à l'exté- 35 rieur de cet élément. Cependant, plus les dimensions extérieures de la barre de combustible sont proches de la dimension intérieure de la chambre de combustible, plus la tendance à des unions localisées est grande, et il est indésirable qu'il se produise une union entre la barre de combustible et la paroi intérieure de la 40 chambre de l'élément combustible. En réduisant la production du

coke dans la barre combustible cuite et en incorporant un agent de démoulage à la composition à mouler, on réduit considérablement cette tendance à l'union.

Des agents de démoulage appropriés sont des alcools (saturés ou insaturés) ayant une chaîne comportant 12 à 30 atomes de carbone, des acides gras (saturés ou insaturés) ayant une chaîne comportant 12 à 30 atomes de carbone, des amines primaires (saturées ou insaturées) ayant une chaîne de 12 à 30 atomes de carbone, et des hydrocarbures saturés dérivant du pétrole ayant un poids moléculaire compris dans la gamme d'environ 350 à environ 1400. Si l'agent de démoulage est une amine, elle comporte de préférence 12 à 26 atomes de carbone. On préfère tout particulièrement que les alcools, les acides gras et les amines comportent 12 à 20 atomes de carbone. On peut citer comme exemples d'agents de démoulage appropriés l'octadécanol-1, l'hexadécanol-1, l'acide oléique, l'acide stéarique, l'octadécyl-1 amine, la vaseline et leurs mélanges.

L'élément qui est peut-être le plus important est le comportement du corps de combustible cuit lors de l'irradiation. La diminution de la teneur en coke se traduit par une union nettement plus faible entre les revêtements des particules de combustible et la matrice, ce qui évite la création de contraintes et de fissurations potentielles des revêtements des particules de combustible lors d'un retrait éventuel de la matrice pendant le rayonnement.

Plus particulièrement, l'invention concerne surtout des éléments combustibles dans lesquels on utilise une multitude de petites particules comportant chacune son enrobage retenant les produits de fission, et qui sont actuellement bien connus de l'homme de l'art. On peut utiliser des particules combustibles enrobées d'une taille appropriée quelconque ; cependant, on utilise généralement de préférence des particules combustibles mesurant de 250 à 1000 μm . L'enrobage des particules de combustible peut être constitué d'une série de revêtements distincts de carbone pyrolytique et de carbures réfractaires tels que du carbure de silicium et du carbure de zirconium, dont l'ensemble constitue un petit récipient résistant à la pression qui renferme les produits gazeux de fission accumulés formés des réactions de fission nucléaire qui se produisent pendant la durée de vie du combustible.

Le carbone en particules qu'on utilise peut être du carbone activé, de la houille ou du carbon-black, mais on utilise de pré-

férence de la poudre de graphite. Généralement le carbone en particules constitue entre 20 et 50 % du mélange à mouler, et il est généralement en particules mesurant moins de 45 μm . On utilise généralement de la poudre de graphite en particules mesurant moins
5 de 40 μm .

Le brai utilisé peut être un quelconque des résidus obtenus par distillation destructive de la houille, du pétrole ou du bois. On utilise généralement un brai ayant un point de ramollissement inférieur à 149°C et une viscosité comprise entre 100 et 1 000
10 poises, à 175°C, cette valeur étant mesurée avec un rhéomètre capillaire Instron, avec un taux de cisaillement de 100 s^{-1} . Généralement le brai constitue 20 à 75 % du poids du mélange à mouler, de préférence 30 à 50 %.

On utilise généralement 2 à 30 % en poids (de préférence 5 à
15 10 %) d'un agent de démoulage facilitant le démoulage du corps vert du moule où on l'a formé et qui réduit également fortement la tendance à l'union de la barre combustible à l'intérieur de la chambre de combustible pendant la cuisson.

Comme précédemment indiqué, on se propose de cuire la barre
20 ou le corps de combustible vert in situ dans un bloc poreux de matière réfractaire. De façon générale, le bloc peut être constitué d'une matière réfractaire appropriée conservant sa résistance structurale et sa stabilité dimensionnelle dans les conditions de fonctionnement à température élevée d'un réacteur nucléaire, ayant
25 une conductivité thermique relativement bonne, de bonnes caractéristiques de modération des neutrons et une faible section efficace de capture des neutrons. De préférence, on utilise du graphite dense. Le graphite artificiel du commerce ayant une masse volumique comprise entre environ 1,7 g/cm^3 et 1,9 g/cm^3 convient pour
30 réaliser un élément combustible permettant la carbonisation in situ des barres combustibles vertes.

La combinaison de brai et de l'additif réduisant le rendement final en coke est importante en ce qui concerne le mélange à mouler. Le brai apporte la force de liaison et la stabilité dimensionnelle nécessaires aux tiges ou barres combustibles vertes ; cependant on a constaté que si l'on utilise du brai seul, la liaison
35 entre les revêtements des particules individuelles et la matrice a tendance à être trop forte. Cette liaison trop importante crée des contraintes indésirables dans les revêtements des particules
40 combustibles, par suite du retrait de la matrice qui se produit

lors de l'irradiation dans le coeur du réacteur nucléaire. L'additif réduisant le rendement final en coke a pour effet d'affaiblir l'union entre les revêtements des particules combustibles et la matrice, si bien que, lors du retrait de la matrice sous 5 l'effet de l'irradiation, les contraintes des revêtements des particules combustibles sont moindres. Il se produit au contraire une rupture de l'union entre la matrice et le revêtement.

De plus, l'additif réduisant le rendement final en coke assure la formation d'un intervalle reproductible et très faible 10 entre la barre combustible et la paroi de la chambre de combustible lors de la cuisson in situ. La nature du brai est telle qu'il se produit un certain gonflement lors de la cuisson initiale des barres combustibles vertes destinées à produire les corps combustibles, suivi d'un certain retrait par rapport aux parois de la 15 chambre de combustible lorsque l'on atteint des températures plus élevées. En l'absence d'additif réduisant le rendement final en coke, l'intervalle final entre la surface extérieure de la barre combustible et la paroi intérieure de la chambre de combustible est d'environ 75 % de l'intervalle initial entre la barre combustible 20 verte et la paroi de la chambre. L'incorporation d'un additif réduisant le rendement final en coke produit un retrait dont l'importance est reproductible, et qui est inférieur à celui qui se produirait en l'absence d'un tel additif, si bien qu'on peut maintenir l'intervalle final entre la surface extérieure de la 25 barre combustible et la surface intérieure de la chambre de combustible à une valeur aussi faible que 25 % de l'intervalle entre la barre combustible verte et la paroi de la chambre.

L'utilisation de l'additif réduisant le rendement final en coke permet de réduire fortement l'intervalle final sans qu'il se 30 forme d'union indésirable entre la barre combustible et la paroi de la chambre. Pour obtenir cet effet souhaitable, on incorpore de préférence l'additif réduisant le rendement final en coke au mélange à mouler, à raison de 5 à 50 % en poids. De plus, du fait de la relation mutuelle entre l'effet du brai et l'effet de l'ad- 35 ditif réduisant le rendement final en coke, on introduit de préférence cet additif dans le mélange, en une quantité comprise entre 8 % et 200 % du poids du brai.

Généralement, on remplit le moule des particules combustibles enrobées puis on y injecte le mélange à mouler. Dans ce cas, la 40 viscosité du mélange à mouler est très importante, et la régulation

de cette viscosité, qu'apporte l'utilisation du polystyrène ou d'un copolymère de styrène et de butadiène, constitue un gros avantage. En variante, on peut préparer le mélange à mouler et le granuler au préalable, puis former une composition à mouler constituée d'un mélange des particules de combustible enrobées et du mélange à mouler. Dans tous les cas, on chauffe le mélange à mouler à une température appropriée pour qu'il se fluidifie, sa température dépendant généralement des caractéristiques du brai utilisé. Généralement la température de moulage est comprise dans la gamme d'environ 100 à 300°C. Si l'on utilise un mélange, on le comprime dans des moules sous une pression appropriée pour que les moules soient pleins. Les moules sont généralement constitués d'une matière métallique résistante appropriée telle que de l'acier inoxydable.

15 L'invention est illustrée par les exemples non limitatifs suivants.

Exemple I

On prépare un lot de 600 g d'un mélange à mouler constitué de 45 % en poids de brai de houille (Ashland Oil N° A240), 30 % en poids de poudre de graphite, 5 % en poids d'octadécaneol comme agent de démoulage et 20 % en poids de camphre comme agent réduisant le rendement final en coke. La poudre de graphite est en particules mesurant entre 0,4 et 40 microns. On mélange pendant 30 mn avec un mélangeur à pales en sigma à une température de 200°C, avec une vitesse de mélange d'environ 100 tr/mn.

Lorsque le mélange est achevé, on refroidit le lot puis on le broie et on le tamise en recueillant les particules mesurant entre 4,7 et 0,7 mm. On remplit des moules d'acier inoxydable comportant des cavités en forme de cylindre droit ayant un diamètre de 1,57 cm avec des particules de combustible nucléaire. Les particules de combustible nucléaire sont constituées de noyaux de carbure d'uranium-thorium revêtus d'une première couche de carbone pyrolytique poreux et spongieux et d'une couche extérieure de carbone pyrolytique isotrope dense. La gamme de la taille des particules enrobées est comprise entre 1150 et 350 µm.

On remplit chacun des moules de 20 g des particules de combustible nucléaire enrobées sur une hauteur d'environ 6,35 cm. On chauffe le mélange à mouler renfermant la charge de graphite à une température comprise entre 175 et 200°C pour fluidiser le brai, et on l'injecte dans les cavités du moule remplies des particules en

utilisant une pression de 82,7 bars. Lorsque l'injection est achevée, on refroidit le moule à la température ordinaire pour solidariser la matrice et on éjecte les barres vertes des moules.

On prépare des cylindres de graphite ayant un diamètre extérieur de 2,22 cm, un orifice central de 1,59 cm de diamètre, et une longueur de 76,2 cm. On remplit chaque cylindre de 12 barres combustibles vertes longues de 6,35 cm et l'on chauffe le cylindre de graphite jusqu'à ce qu'il atteigne une température d'environ 1800°C pendant une durée suffisante pour carboniser le brai, 10 l'additif réduisant le rendement final en coke et l'agent de démoulage. Après refroidissement, les essais montrent que les barres de combustible vertes sont entièrement carbonisées. L'intervalle moyen des barres vertes est égal à la moitié de la différence entre le diamètre extérieur des corps combustibles (1,57 cm) et le 15 diamètre intérieur de la chambre de combustible (1,59 cm) c'est-à-dire au départ de 0,0635 cm. Après cuisson, l'intervalle est de 0,0318 cm. La pesée et l'examen des corps combustibles carbonisés montrent que, en admettant que les particules de combustible nucléaire enrobées et la poudre de graphite n'ont pas changé de 20 poids, la portion initiale constituée à l'origine par le brai, l'additif réduisant le rendement final en coke et l'agent de démoulage, ne pèse plus qu'environ 23 % de son poids d'origine.

L'irradiation de ces éléments combustibles, en simulant les conditions régnant dans un réacteur, montre que leurs performances 25 sont excellentes. Par conséquent ces éléments combustibles conviennent très bien à l'utilisation dans des réacteurs nucléaires à haute température refroidis par un gaz.

Exemple II

On reprend le mode opératoire de l'exemple I en utilisant 30 20 % en poids de naphthalène au lieu de camphre. Après carbonisation, l'intervalle est compris entre environ 25 et 50 % de l'intervalle à l'état vert et le poids du coke produit est égal à environ 25 % du poids d'origine du brai, de l'octadécanol et du naphthalène. Ces éléments combustibles conviennent très bien à l' 35 utilisation dans un réacteur à haute température.

Exemple III

On reprend le mode opératoire de l'exemple I en utilisant 20 % en poids d'anthracène au lieu de camphre. Après cuisson, on mesure l'intervalle qui est compris entre 25 et 50 % de l'inter- 40 valle à l'état vert. Le coke résiduel formé pèse environ 20 % du

poids du brai, de l'anthracène et de l'octadécanol contenus dans le mélange à mouler d'origine. Ces éléments combustibles conviennent également très bien à l'utilisation dans un réacteur à haute température.

5 Exemple IV

On reprend le mode opératoire de l'exemple I en utilisant 20 % en poids de phénanthrène au lieu de camphre. Après cuisson, l'intervalle est compris entre environ 25 % et 50 % de l'intervalle à l'état vert. Le poids du coke résiduel est égal à environ 10 22 % du poids d'origine du brai, de l'agent de démoulage et du phénanthrène. Ces éléments combustibles conviennent également très bien à l'utilisation dans des réacteurs nucléaires à haute température refroidis par un gaz.

Exemple V

15 On reprend le mode opératoire de l'exemple I en utilisant 20 % en poids de téréphtalate de diméthyle au lieu de camphre. Après cuisson, l'intervalle mesure entre 25 et 50 % de l'intervalle à l'état vert. Le poids du coke résiduel est égal à environ 20 25% du poids d'origine du brai, de l'agent de démoulage et de l'agent réduisant le rendement final en coke. Ces éléments combustibles conviennent également très bien à l'utilisation dans un réacteur nucléaire à haute température refroidi par un gaz.

Exemple VI

On reprend le mode opératoire de l'exemple I à cela près qu' 25 on utilise 10 % en poids d'octadécanol et 15 % en poids de polystyrène (Dylark de Sinclair-Koppers) au lieu de camphre. On ajoute le polystyrène sous une forme granulaire et il se ramollit à la température de mélange de 200°C en se répartissant dans l'ensemble de la matière à mouler. Après carbonisation in situ des barres 30 combustibles vertes, l'intervalle mesure entre 25 et 50 % de l'intervalle à l'état vert, et le poids du coke résiduel est égal à environ 21 % du poids du brai, de l'octadécanol et du polystyrène de départ. Ces éléments combustibles conviennent de façon excellente à l'utilisation dans des réacteurs nucléaires à haute température 35 refroidis par un gaz.

Exemple VII

On reprend, le mode opératoire de l'exemple I, à cela près qu'on utilise 32 % en poids de brai, 10 % en poids d'octadécanol et 38 % en poids de poudre de graphite. Au lieu d'utiliser du cam- 40 phre, on utilise du polyéthylène (Alathon 1560 de DuPont) sous une

forme granulaire. Après carbonisation, l'intervalle est compris entre 25 et 50 % de l'intervalle à l'état vert et le poids du coke résiduel est d'environ 14 % du poids d'origine du brai, de l'octadécane et du polyéthylène. Ces éléments combustibles conviennent très bien à l'utilisation dans des réacteurs nucléaires à haute température refroidis par un gaz.

Exemple VIII

On reprend le mode opératoire de l'exemple I en utilisant 37 % en poids de brai, 10 % en poids d'octadécane et 38 % en poids de poudre de graphite. Au lieu d'utiliser du camphre, on utilise 15 % en poids de polypropylène (Pro-Fax 6523 d'Hercules) sous forme granulaire. Après carbonisation, l'intervalle radial est compris entre 25 et 50 % de l'intervalle à l'état vert. Le coke résiduel a un poids d'environ 17 % du poids initial du brai, de l'octadécane et du polypropylène. Ces éléments combustibles conviennent très bien à l'utilisation dans des réacteurs nucléaires à haute température refroidis par gaz.

REVENDICATIONS

1. Mélange à mouler amélioré destiné à être ajouté à des particules de combustible nucléaire pour préparer des éléments de combustible nucléaire, ce mélange étant constitué de particules
5 de carbone et de brai et caractérisé par le fait qu'on lui a incorporé un additif réduisant le rendement final en coke du corps combustible formé, cet additif étant choisi parmi (1) le poly-
-styrène et les copolymères de styrène et de butadiène ayant un poids moléculaire compris entre environ 500 et 1 000 000, (2) les
10 composés aromatiques ayant un poids moléculaire compris entre 75 et 300 et (3) les polymères d'hydrocarbures saturés ayant un poids moléculaire compris entre environ 5 000 et 1 000 000.

2. Mélange selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'
additif réduisant le rendement final en coke est un copolymère de
15 styrène et de butadiène renfermant les monomères dans un rapport molaire compris entre 10/1 et 1/1.

3. Mélange selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'
additif réduisant le rendement final en coke est un composé aromatique ayant un poids moléculaire compris entre 75 et 300, et
20 est choisi parmi le camphre, le naphthalène, l'antracène, le phénanthrène, le téréphtalate de diméthyle et leurs mélanges.

4. Mélange selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'
agent réduisant le rendement final en coke est un hydrocarbure aromatique ayant un poids moléculaire compris entre 75 et 300.

25 5. Mélange selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'
agent réduisant le rendement final en coke est un polymère d'hydrocarbures saturés ayant un poids moléculaire compris entre environ 5 000 et 1 000 000 et choisi parmi le polyéthylène, le poly-
-propylène et leurs mélanges.

30 6. Mélange selon une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce que l'agent réduisant le rendement final en coke est présent à une concentration de 5 à 50 % en poids.

7. Mélange selon une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce que le carbone en particules est de la poudre de
35 graphite.

8. Mélange selon une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce que le carbone en particules est présent à la concentration de 20 à 50 % en poids.

9. Mélange selon une quelconque des revendications précédentes,
40 tes, caractérisé en ce que le brai a un point de ramollissement

inférieur à 149°C et une viscosité comprise entre 100 et 1 000 poises à 175°C, cette valeur étant mesurée avec un rhéomètre capillaire Instron à un taux de cisaillement de 100 s⁻¹.

10. Mélange selon une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce que le brai est présent à une concentration de 20 à 75 % en poids.

11. Mélange selon une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce que le brai est présent à une concentration de 30 à 50 % en poids.

10 12. Mélange selon une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce que l'additif réduisant le rendement final en coke est présent à une concentration de 8 à 200 % par rapport au poids du brai du mélange.

15 13. Mélange selon une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'il renferme de plus un agent de démoula-ge.

20 14. Mélange selon la revendication 13, caractérisé en ce que l'agent de démoulage est choisi parmi les alcools ayant une chaîne comportant 12 à 30 atomes de carbone, les acides gras ayant une chaîne comportant 12 à 30 atomes de carbone, les amines primaires ayant une chaîne comportant 12 à 30 atomes de carbone et les hydrocarbures saturés dérivant du pétrole ayant un poids moléculaire compris dans la gamme d'environ 350 à environ 1 400.

25 15. Mélange selon la revendication 14, caractérisé en ce que l'agent de démoulage est une amine primaire ayant une chaîne comportant 12 à 26 atomes de carbone.

30 16. Mélange selon la revendication 14, caractérisé en ce que l'agent de démoulage est un alcool ayant une chaîne comportant 12 à 20 atomes de carbone, un acide gras ayant une chaîne comportant 12 à 20 atomes de carbone, ou une amine primaire ayant une chaîne comportant 12 à 20 atomes de carbone.

35 17. Mélange selon la revendication 14, caractérisé en ce que l'agent de démoulage est choisi parmi l'octadécanol-1, l'hexadécanol-1, l'acide oléique, l'acide stéarique, l'octadécyl-1 amine, la vaseline et leurs mélanges.

18. Mélange selon une quelconque des revendications 13 à 17, caractérisé en ce que l'agent de démoulage est présent à une concentration de 2 à 30 % en poids.

40 19. Mélange selon une quelconque des revendications 13 à 18, caractérisé en ce que l'agent de démoulage est présent à une con-

centration de 5 à 10 % en poids.

20. Procédé pour préparer un élément de combustible nucléaire, caractérisé en ce qu'il consiste à combiner un combustible nucléaire en particules à un mélange à mouler amélioré selon une quel-
5 conque des revendications 1 à 19, soit à l'état fondu, soit à l'état de particules solides, à mouler sous pression un corps de combustible vert à partir de cette combinaison de matières, à placer ce corps de combustible moulé à l'état vert dans une cavité complémentaire dans un corps poreux destiné à servir d'élément de
10 combustible nucléaire, et à chauffer in situ ce corps moulé à l'état vert dans l'élément combustible, pour décomposer le brai et les additifs en laissant dans la cavité un corps combustible s'y adaptant relativement étroitement, ce corps combustible étant constitué de particules de combustible nucléaire dans une matrice
15 de coke, le poids de ce coke ne dépassant pas 25 % du poids d'origine du brai et des additifs.

21. Elément de combustible nucléaire préparé selon le procédé de la revendication 20.