



HAL
open science

L'étalement du Corium : Hydrodynamique, Rhéologie et Solidification d'un Bain d'Oxydes à Haute Température

Christophe Journeau

► **To cite this version:**

Christophe Journeau. L'étalement du Corium : Hydrodynamique, Rhéologie et Solidification d'un Bain d'Oxydes à Haute Température. Energie électrique. Université d'Orléans, 2006. Français. NNT: . tel-00343671

HAL Id: tel-00343671

<https://theses.hal.science/tel-00343671>

Submitted on 2 Dec 2008

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



UNIVERSITE D'ORLEANS

**THESE PRESENTEE A L'UNIVERSITE D'ORLEANS
POUR OBTENIR LE GRADE DE
DOCTEUR DE L'UNIVERSITE D'ORLEANS**

Discipline :	Mécanique et Energétique
---------------------	---------------------------------

PAR

JOURNEAU Christophe

*Ingénieur des Arts et Manufactures,
Expert-Sénior au Commissariat à l'Energie Atomique*

Titre de la Thèse :

<p>L'ETALEMENT DU CORIUM : HYDRODYNAMIQUE, RHEOLOGIE ET SOLIDIFICATION D'UN BAIN D'OXYDES A HAUTE TEMPERATURE</p>
--

Soutenue le : **21 juin 2006**

MEMBRES DU JURY :

	(Fonction/Etablissement)
- M. Jean-Pierre BARDON	Président du Jury, Polytech' Nantes
- M. Patrick ECHEGUT	Directeur de Thèse, CRMHT
- M. Erwan HALLOT	Géosciences Rennes
- M. Michel GIOT	Rapporteur, UCL
- M. Michel SUERY	Rapporteur, GPM2
- M. Yann VAILLS	Université d'Orléans

*Dès que les porteurs de l'arche furent arrivés au
Jourdain et que leurs pieds touchèrent les eaux,
les eaux d'amont arrêtèrent de s'écouler et formèrent
une seule masse à une très grande distance.
Josué, 3 : 15-16.*

*A ma femme Anne,
A mes enfants Camille, Guilhem et Antonin,
qui m'ont soutenu de leur amour et de leur affection
pendant la rédaction de cette thèse.*

*A la mémoire de Yuri Borisevich Petrov,
décédé quelques jours avant la soutenance de cette thèse.
C'était une figure de l'étude des oxydes fondus,
un des pères du chauffage inductif par creuset froid,
un grand professeur et un témoin de son temps.*

Remerciements

Je tiens à remercier tous ceux qui ont participé à l'aventure de VULCANO-Etalement :

Jean-Claude Boucher, Delphine Brossel, Laurence Buffe, Jean-Louis Cheyssoux, Gérard Cognet, Patricia Correggio, Michel Cranga, Ariane David, Marie-Christine Deprez, Claudine Ferrero, Pascal Fouquart, Kyrill Frolov, Jean-Marie Gatt, Jacques Garnier, Bernard Gaudin, Jean-François Haquet, Claude Jégou, Guillaume Jeulain, Yves Jung, Guy Laffont, Jacques Marseille, Jacques Mattéi, Alban Minck, José Monerris, Michel Nervi, Jacques Paillan, Giorgio de Palma, Claire de Pascale, Jocelyn Pierre, Pascal Piluso, Muriel Ramacciotti, André Roubaud, Yves Richard, Catherine Sergeant, François Sudreau, François Torrès, Gilbert Trillon.

Sans vous, rien de tout cela n'aurait été possible ! Ensemble, nous avons réussi à fondre du corium et à comprendre son comportement, sans oublier l'aventure humaine qui a accompagné les défis scientifiques et techniques.

Je souhaite aussi remercier de leur aide, de leur conseils, les partenaires des projets européens CSC (Corium Spreading and Coolability), ECOSTAR (European Core Stabilization Research) et ENTHALPY (European Nuclear Thermodynamic database for Severe Accidents) et en premier lieu Alejandro Zurita, leur responsable scientifique à la Commission Européenne. Les échanges avec les membres du GAREC (Groupe d'Analyse de la R&D sur la Recupération du Corium) ont aussi été une source constante de discussions pertinentes et inspirantes.

Je n'oublie pas les collègues et amis du Centre Commun de Recherches d'Ispra (entre autres Massimo Anselmi, Ilpo Huhtiniemi, Ernst Jorzik, Daniel Magallon, Annie Mignot), probables détenteurs du record européen de la masse de corium prototypique fondues, plusieurs tonnes au bas mot, qui m'ont accueilli sur l'installation FARO durant une année extrêmement profitable. *Grazie a voi per la vostra accoglienza quando ero a Ispra!*

Je voudrais aussi élargir ces remerciements à toute la communauté des expérimentateurs en corium, du Kazakhstan à l'Illinois, en passant par Sosnovy Bor, Budapest, Řež, Erlangen et Chalk River.

Je tiens aussi à remercier ma hiérarchie au Commissariat à l'Energie Atomique pour le soutien qu'elle m'a manifesté lorsque je lui ai fait part de mon attention de rédiger cette thèse de doctorat, ainsi que tous les collègues du Laboratoire d'essais pour la Maîtrise des Accidents graves.

Finalement, je voudrais remercier Patrick Echegut pour avoir accepté d'être mon directeur de thèse bien que j'ai dépassé l'âge médian du doctorant, Michel Giot et Michel Suery qui ont bien voulu être mes rapporteurs afin d'apporter un regard croisé sur ce travail entre le génie nucléaire et la thermohydraulique d'une part et la science des matériaux et la rhéologie, d'autre part. Finalement, je voudrais remercier Jean-Pierre Bardon, Yann Vaills et Erwan Hallot d'avoir fait bénéficier à mon jury des points de vue croisés d'un thermicien émérite, d'un physicien des matériaux à hautes températures et d'un volcanologue sur ces laves artificielles qu'on appelle corium.

TABLE DES MATIERES

CHAPITRE 1 : INTRODUCTION- CONTEXTE DE L'ETUDE..... 11

1.1	LA SURETE DES REACTEURS – LA DEFENSE EN PROFONDEUR.....	11
1.2	LES ACCIDENTS GRAVES	12
1.2.1	GENERALITES SUR LES ACCIDENTS GRAVES –ECHELLE INES.....	12
1.2.2	THREE MILE ISLAND.....	13
1.2.3	TCHERNOBYL	15
1.3	LE RECUPERATEUR DE CORIUM DE L'EPR.....	18
1.4	ETUDE DE L'ETALEMENT DU CORIUM ET PLAN DU MEMOIRE	21
	REFERENCES DU CHAPITRE 1 :.....	23

CHAPITRE 2 : ETAT DE L'ART SUR L'ETALEMENT 25

2.1	ETALEMENT HYDRODYNAMIQUE.....	25
2.1.1	ECOULEMENT LE LONG D'UN PLAN INCLINE.....	25
2.1.2	ETALEMENT SUR UNE SURFACE HORIZONTALE	27
2.2	ETALEMENT DE LAVES EN COURS DE REFROIDISSEMENT	29
2.3	ETALEMENTS LORS DE PROCEDES INDUSTRIELS.....	31
2.4	MODELISATION DE L'ETALEMENT DU CORIUM.....	32
2.4.1	MODELISATION EN ORDRE DE GRANDEUR.....	32
2.4.2	LES CODES DE CALCUL D'ETALEMENT DU CORIUM	34
2.5	EXPERIMENTATIONS AVEC DES MATERIAUX SIMULANTS LE CORIUM.....	39
2.5.1	ESSAIS A BASSES TEMPERATURES (BNL ET CORINE)	39
2.5.2	ESSAIS A TEMPERATURE INTERMEDIAIRE (S3E).....	40
2.5.3	ESSAIS A HAUTES TEMPERATURES (SPREAD ET KATS)	41
2.5.4	RECAPITULATION	45
2.6	EXPERIMENTATIONS A HAUTE TEMPERATURES AVEC MATERIAUX PROTOTYPIQUES .	46
2.6.1	IMPORTANCE DES ESSAIS EN MATERIAUX PROTOTYPIQUES	46
2.6.2	ESSAIS COMAS	47
2.6.3	ESSAIS D'ETALEMENT FARO	48
2.6.4	RECAPITULATION	50
	REFERENCES DU CHAPITRE 2 :.....	51

CHAPITRE 3 : LES ESSAIS VULCANO 58

3.1	DESCRIPTION DE L'INSTALLATION.....	58
3.1.1	FOUR DE FUSION	58
3.1.2	SECTIONS D'ESSAIS.....	60
3.1.3	INSTRUMENTATION.....	60
3.2	ESSAIS EN SIMULANTS HAUTE TEMPERATURE	62
3.2.1	ETALEMENT DE MATERIAUX SIMULANTS SUR UNE SECTION 2D.....	63
3.2.2	ETALEMENT DE MATERIAUX SIMULANTS SUR UN SECTEUR ANGULAIRE.....	63
3.2.3	ESSAI AVEC UN MELANGE OXYDE SIMULANT-METAL.....	65
3.3	ESSAIS EN MATERIAUX PROTOTYPIQUES.....	66
3.3.1	VE-U1.....	67
3.3.2	VE-U3.....	69

3.3.3	VE-U5.....	70
3.3.4	VE-U7.....	71
3.3.5	VE-U8.....	73
3.4	CONCLUSIONS	74
	REFERENCES DU CHAPITRE 3 :.....	76

CHAPITRE 4 : ANALYSE MATERIAUX ET INTERPRETATION THERMODYNAMIQUE **79**

4.1	ANALYSES MATERIAUX	79
4.1.1	PRELEVEMENT D'ECHANTILLONS	79
4.1.2	ANALYSES CHIMIQUES	80
4.1.3	MICROSCOPES ET MICROSONDE	81
4.1.4	DIFFRACTION DES RAYONS X.....	82
4.1.5	SYNTHESE DES ANALYSES MATERIAUX DE L'ESSAI VE-U1	83
4.2	RECONSTITUTION DES CHEMINS DE SOLIDIFICATION – THERMODYNAMIQUE.....	86
4.2.1	MODELISATION THERMODYNAMIQUE DU CORIUM.....	86
4.2.2	CHEMINS DE SOLIDIFICATION	86
4.2.3	COMPARAISON CALCUL-ANALYSES	88
4.2.4	DISCUSSION	90
4.3	CONCLUSIONS	90
	REFERENCES DU CHAPITRE 4 :.....	92

CHAPITRE 5 : LA RHEOLOGIE DU CORIUM **95**

5.1	RHEOLOGIE DES PHASES LIQUIDES.....	95
5.1.1	MELANGES SANS SILICE.....	95
5.1.2	MELANGES CONTENANT DE LA SILICE	96
5.2	RHEOLOGIE DES MELANGES EN COURS DE SOLIDIFICATION	101
5.2.1	SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE	101
5.2.2	MODELE DE RAMMACCIOTTI.....	103
5.2.3	EFFET DU CISAILLEMENT	105
5.2.4	VISUALISATION DE LA SOLIDIFICATION SOUS CISAILLEMENT.....	106
5.3	METHODOLOGIE POUR L'ESTIMATION DE LA VISCOSITE	109
	REFERENCES DU CHAPITRE 5 :.....	111

CHAPITRE 6 : ETUDE THERMIQUE DE L'ETALEMENT..... **115**

6.1	PROPRIETES PHYSIQUES DU CORIUM.....	115
6.1.1	MASSE VOLUMIQUE.....	115
6.1.2	VISCOSITE	117
6.1.3	ENTHALPIE ET CHALEUR MASSIQUE	118
6.2	COUCHES LIMITES A LA SURFACE DE L'ETALEMENT	120
6.2.1	MODELE ANALYTIQUE DE REFROIDISSEMENT A LA SURFACE.....	120
6.2.2	MODELE THERMIQUE CRUST	121
6.2.3	APPLICATION DE CRUST AU REFROIDISSEMENT DE LA COULEE VE-U1	122
6.2.4	PROFIL DE TEMPERATURE EN HAUT DE L'ETALEMENT	124
6.2.5	COUCHE LIMITE PHYSICO-CHIMIQUE.....	126

6.2.6	COUCHE LIMITE RHEOLOGIQUE.....	127
6.3	RESISTANCE THERMIQUE DE CONTACT.....	130
6.3.1	ANALYSE DES MESURES THERMIQUES DANS LE SUBSTRAT	130
6.3.2	MODELES ANALYTIQUES	134
6.3.3	MODELE DE RESISTANCE THERMIQUE DE CONTACT DE ROUGON-GLASSON.....	135
6.3.4	PROFIL DE TEMPERATURE EN BAS DE L'ETALEMENT	136
6.3.5	SYNTHESE.....	139
6.4	TEMPERATURE D'ARRET DE LA COULEE	139
6.5	CONCLUSIONS	141
	REFERENCES DU CHAPITRE 6 :.....	142

CHAPITRE 7 : VALIDATION DES MODELES ET CODES D'ETALEMENT146

7.1	VALIDATION DES MODELES SEMI-ANALYTIQUES	146
7.2	BENCHMARK DES CODES D'ETALEMENT SUR VE-U7.....	149
7.2.1	LAVA	149
7.2.2	THEMA	153
7.2.3	CORFLOW.....	156
7.2.4	CROCO	156
7.2.5	ANALYSE COMPARATIVE	159
7.3	APPLICATIONS REACTEUR.....	161
	REFERENCES DU CHAPITRE 7 :.....	146

CHAPITRE 8 : CONCLUSIONS166

	REFERENCES DE LA CONCLUSION.....	166
--	---	------------

Nomenclature

A	Coefficient	
a	diffusivité thermique	[m ² /s]
	paramètre de maille cristalline	[nm]
B	Coefficient	
\mathcal{B}	Effet de la géométrie bidimensionnelle sur l'étalement	
b	Effusivité	[J.K ⁻¹ .m ⁻² .s ^{-1/2}]
C	Coefficient	
C _p	Chaleur massique	[J.kg ⁻¹ .K ⁻¹]
D	largeur de l'étalement	[m]
d _H	Diamètre hydraulique	[m]
E	distance interface-capteur	[m]
e	épaisseur du substrat	[m]
F _w	Coefficient de frottement	
G	débit volumique	[m ³ /s]
ΔG*	Energie de Gibbs d'activation	[J/mol]
g	coefficient lié à l'état de surface et au mouillage	
H	Enthalpie massique	[J/kg]
h	Epaisseur de la coulée	[m]
K	Coefficient	
	Rapport des viscosités	
K*	Tenseur des conductivités thermiques effectives	
L	Longueur de coulée	[m]
\mathcal{L}	Longueur adimensionnée	
M	Masse molaire	[kg.mol ⁻¹]
N	Fraction molaire de formateurs	
N	Nombre d'Avogadro	[mol ⁻¹]
p	Pression	[Pa]
Q	Puissance volumique	[W.m ⁻³]
Q _n	Energie d'activation	[J/mol]
q	Débit massique	[kg.s ⁻¹]
R	Rayon	[m]
	Constante des gaz parfaits	[J/K]
r	cordonnée radiale	[m]
T	Température	[K]
t	Temps	[s]
U	Constante de solidification	
u	vitesse selon l'axe d'étalement	[m/s]
\vec{u}	vecteur vitesse	[m/s]
V	volume	[m ³]
\mathcal{V}	rapport des vitesses entre régimes gravité-inertie et gravité-viscosité	
V _M	volume molaire	[m ³ /mol]
X	fraction molaire	
	Variable servant à l'identification	
x	cordonnée selon l'axe d'étalement	[m]
y	paramètre à estimer	
z	coordonnée normale au plan d'étalement	[m]

Lettres Grecques

α	Angle Exposant de la loi de débit Fraction de modificateurs parmi les non-formateurs.	[rad]
Γ	apport de masse	
γ	Incrément logarithmique de viscosité	$[m^{-1}]$
γ	Cisaillement	
$\dot{\gamma}$	Taux de cisaillement	$[s^{-1}]$
δ	Epaisseur de couche limite	[m]
δt	Pas de temps	[s]
δx	Pas d'espace	[m]
ε	Emissivité	
η	Viscosité dynamique	[Pa.s]
θ_f	Constante d'intégration	
Λ	Longueur d'onde	[m]
λ	Conductivité thermique	$[W.m^{-1}.K^{-1}]$
ν	Viscosité cinématique	$[m^2/s]$
ξ	variable de similitude fraction massique de solide	
ρ	masse volumique	$[kg.m^{-3}]$
σ	tension de surface Constante de Stefan-Boltzmann	$[N.m^{-1}]$ $[W.m^{-2}.K^{-4}]$
	Contrainte	[Pa]
σ°	Contrainte seuil	[Pa]
τ	Temps caractéristique	[s]
ϕ	Fraction volumique (généralement de solide)	
φ	flux de chaleur	$[W.m^{-2}]$
χ	fraction de chaleur latente à extraire pour immobiliser la coulée	
χ_i	fraction molaire	
Ψ	Paramètre morphologique	
ψ	variable dérivée par similitude	

Indices

0	initial
1D	monodimensionnel
A	amphotères
A	métal (principalement <u>a</u> cier)
a	advection
ab	ablation
b	bain
bas	vers le bas
bulle	des bulles
c	critique
conv	convectif
cœur	dans la couche centrale
corium	corium
cr	croûte
D	oxydes (principalement <u>d</u> ioxyde d'uranium)
emp	empilement
exp	expérimental
gaz	gaz
haut	vers le haut
int	interface
gl	du gaz, relativement au liquide
l	liquide
m	fusion
M	modificateurs
N	valeur au front
R	rayonnement
rel	relatif
sol	solide
solidif	solidification
sub	substrat
sur	surchauffe
surf	surface
tot	total
vers	versement
w	parois
∞	à l'infini

Nombres adimensionnés

Bo	Nombre de Bond	$Bo = \frac{\rho g L^2}{\sigma}$
Fo	Nombre de Fourier	$Fo = \frac{a \cdot \delta t}{\delta x^2}$
Gz	Nombre de Grätz	$Gz = \frac{u \cdot d_H^2}{aL}$
N _{étal}	Nombre d'étalement	$N_{\text{étal}} = \frac{\left(\frac{M}{\rho}\right)^{1/3} [H_{\text{fusion}} + C_p (T_0 - T_{\text{fusion}})]}{h_{\text{eau}} \cdot [H_{\text{ébul}} + c_p (T_0 - T_{\text{ébul}})]}$
Nu	Nombre de Nusselt	$Nu = \frac{\Phi_{\text{conv}} \cdot h}{\Delta T \cdot \lambda}$
Pe	Nombre de Péclet	Pe=Re.Pr
Pr	Nombre de Prandtl	$Pr = \frac{\nu}{a} = \frac{\eta \cdot C_p}{\lambda}$
Re	Nombre de Reynolds	$Re = \frac{uL}{\nu} \text{ ou } \frac{2uR}{\nu}, \text{ selon la géométrie}$
St	Nombre de Stefan	$St = \frac{C_p (T_b - T_{\text{substrat},0})}{H_m}$
We	Nombre de Weber	$We = \frac{2 \rho u_0^2 R_0}{\sigma}$

Chapitre 1 : Introduction- Contexte de l'étude

1.1 LA SURETE DES REACTEURS – LA DEFENSE EN PROFONDEUR

Les 442 réacteurs nucléaires en opération dans le monde (59 en France, 148 dans 13 pays de l'Union Européenne) produisent 20% de l'électricité mondiale (78% en France, 32% dans l'Union Européenne). L'énergie nucléaire a de nombreux avantages stratégiques : l'indépendance par rapport aux combustibles fossiles, la sécurité à long terme de l'approvisionnement en énergie primaireⁱ et la non-émission de gaz à effets de serre. Les performances des centrales actuellement en service montrent que la production d'énergie nucléaire est économiquement compétitive et a un impact très faible sur l'environnement, dès que la gestion des déchets est maîtrisée. Néanmoins la sûreté nucléaire est un des enjeux essentiels de la filière électronucléaire, vu les impacts potentiels d'un accident majeur.

Les réacteurs à eau pressurisée (REP) occidentaux sont conçus et construits selon des règles de sûreté strictes destinées à éviter les accidents pouvant avoir un impact sur le public et l'environnement. L'objectif de ces mesures est de garantir une probabilité de dégradation du cœur comprise entre 10^{-4} et 10^{-6} / (réacteur.an). Par exemple (Libman, 2000) la probabilité de dégradation du cœur est estimée à 5.10^{-5} / (réacteur.an) pour les tranches REP 900 MWe d'EDF. Ces études probabilistes prennent en compte les causes internes d'accidents et les agressions externes (séismes, inondations, chutes d'avion, ...). Pour apprécier ces probabilités, notons que l'industrie nucléaire disposait au 31/12/2003 d'une expérience cumulée de 11 236 réacteur-an.

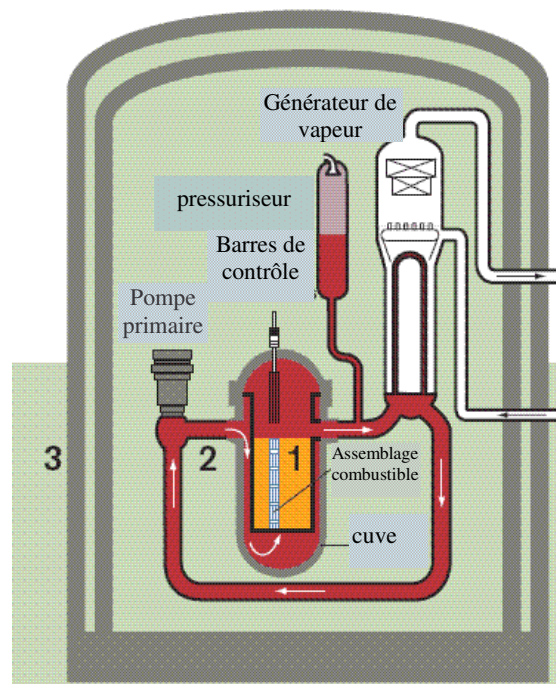


Figure 1-1 : Schéma de principe d'un réacteur, montrant les trois barrières
1 : la gaine du combustible ; 2 : le circuit primaire ; 3 : l'enceinte de confinement

La sûreté des réacteurs a reposé dès l'origine, sur le concept d'une "défense en profondeur" visant à empêcher la fusion du cœur et les rejets radioactifs dans l'environnement. Trois barrières (Figure 1-1) assurent le confinement des produits radioactifs:

ⁱ Principalement dans le cas du retraitement et de la surgénération.

la gaine du combustible, la cuve et l'enceinte de confinement. Il suffit que l'une des trois barrières reste étanche pour éviter la dissémination d'éléments radioactifs.

Le Comité Consultatif International pour la Sûreté Nucléaire (INSAG, 1999) a défini ainsi la défense en profondeur:

“Pour parer aux erreurs humaines et défaillances mécaniques possibles, on applique un concept de défense en profondeur qui s'organise autour de niveaux multiples de protection comprenant des barrières successives qui empêchent le rejet de substances radioactives dans l'environnement. Le concept inclut une protection des barrières qui prévient tout dommage tant à la centrale qu'aux barrières elles-mêmes. Il inclut dans son prolongement des mesures qui protégeraient des dommages la population et l'environnement dans le cas où ces barrières ne seraient pas pleinement efficaces.”

On a donc cinq niveaux de défense :

1. prévention des anomalies de fonctionnement et des défaillances des systèmes
2. Maintien de l'installation dans le domaine autorisé
3. Maîtrise des accidents à l'intérieur des hypothèses de conception (Maintien du combustible en deçà de 1200°C pour les Réacteurs à Eau Pressurisée).
4. Prévention de la dégradation des conditions accidentelles et limitation des conséquences d'accidents graves.
5. Limitation des conséquences radiologiques pour les populations.

Dans cette étude, nous nous concentrerons sur le 4^o niveau de défense, la maîtrise des accidents graves.

1.2 LES ACCIDENTS GRAVES

1.2.1 Généralités sur les accidents graves –Echelle INES.

A l'instar de ce qui existe dans le domaine des phénomènes naturels comme les séismes, le vent ou les avalanches, les événements pouvant affecter une installation nucléaire sont classés selon une échelle dite INES (AIEA, 2001). Son but essentiel est de faciliter la communication et la compréhension entre la communauté nucléaire, les médias et le public au sujet de l'importance, pour la sûreté, des événements se produisant dans des installations nucléaires. Ces événements sont classés de 0 à 7 en fonction de leur gravité (Figure 1-2) selon trois zones d'incidences différentes : incidences hors du site, incidences sur le site et incidences sur la défense en profondeur.



Figure 1-2 : Echelle Internationale des Événements Nucléaires (INES)

Le niveau 5 (« Accident entraînant des risques hors du site ») correspond à un accident ayant entraîné un endommagement grave du cœur du réacteur – comme dans le cas de l'accident de

Three Mile Island (§1.2.2) –, des barrières de confinement, ou ayant entraîné un rejet à l'extérieur de matières radioactives (en quantités équivalant, du point de vue radiologique, à un rejet de l'ordre de quelques centaines à quelques milliers de térabecquerels d'iode 131) comme lors de l'accident de la pile de Windscale en 1957 ; un tel rejet serait susceptible d'entraîner l'application partielle des contre-mesures prévues par les plans d'urgence afin de réduire la probabilité d'effets sur la santé.

Le niveau 6 (« Accident Grave ») implique le rejet à l'extérieur de matières radioactives (en quantités équivalant, du point de vue radiologique, à un rejet de quelques milliers à quelques dizaines de milliers de térabecquerels d'iode 131). C'est par exemple le cas de l'accident de 1957 dans l'usine de retraitement soviétique de Kyshtym.

Le niveau 7 (« Accident Majeur ») correspond à des rejets à l'extérieur d'une fraction importante des matières radioactives contenues dans une grande installation (par exemple le cœur d'un réacteur de puissance), comme lors de l'accident de Tchernobyl (§1.2.3). Un tel rejet pourrait entraîner des effets aigus sur la santé; des effets tardifs sur la santé dans une vaste zone pouvant s'étendre sur plusieurs pays; des conséquences à long terme pour l'environnement.

Pour les réacteurs à eau pressurisée, tous ces scénarios d'accidents graves débutent par une phase où le cœur n'est plus refroidi et s'échauffe sous l'effet de la puissance radiologique résiduelle (Dans ce type de réacteur, l'ébullition de l'eau rend le cœur sous-critique, il ne reste donc plus la chaleur due à la fission mais uniquement celle due à la radioactivité, qui est de l'ordre d'un pour cent de la puissance nominale).

Lorsque la température dépasse 1200°C, la réaction d'oxydation des gaines en Zircaloy devient très exothermique et la température monte rapidement (de 1 à 10 K/s selon Sehgal, 1999) et entraîne, si rien ne permet de refroidir le cœur, la fusion du combustible. Le bain de combustible fondu mélangé au zirconium partiellement oxydé et, le cas échéant, à divers matériaux de structure, est appelé le *corium*.

En l'absence de contre-mesures, ce corium, va progresser dans le réacteur et former un bain en fond de cuve. Pour les réacteurs de basse puissance (jusqu'à 600 MWe d'après Sehgal, 1999), on peut garantir le maintien du corium en cuve en la refroidissant par noyage du puits de cuve. Pour les réacteurs de puissance élevée (de 1300 à 1600 MWe) on ne peut garantir le maintien dans la cuve et il faut donc considérer un percement de celle-ci et soit l'interaction du corium avec le béton du radier, soit la rétention du corium dans un dispositif prévu à cet effet (*récupérateur de corium*).

En plus des dispositions visant à éviter l'accident de dimensionnement du réacteur (la fusion du cœur), la défense en profondeur a aussi pour objectif de contenir les conséquences d'un accident grave, même si sa probabilité est très faible. Pour le réacteur à eau pressurisé EPR en cours de construction à Olkiluoto en Finlande, il a été demandé (Bouteille et al., 2005) qu'en cas d'accident grave, il ne soit pas nécessaire d'évacuer la population (ce qui correspond à des seuils de 500 mSv pour le premier jour, et de 15 mSv par mois pour le long terme), qu'il n'y ait plus de limitation sur la consommation agricole à proximité de la centrale dès la deuxième récolte et que la zone d'exclusion soit limitée (de l'ordre de la dizaine de km²).

Ces critères ne peuvent être atteints qu'en garantissant la tenue et l'étanchéité de l'enceinte de confinement durant un hypothétique accident grave et après celui-ci.

Les études des accidents graves se fondent en partie sur l'étude des accidents historiques de Three Mile Island et de Tchernobyl.

1.2.2 Three Mile Island

Le 28 mars 1979, la deuxième tranche de la centrale de Three Mile Island (TMI-2), en Pennsylvanie, a subi un accident de niveau 5 entraînant la fusion de 45% du cœur (Broughton et al., 1989 ; Akers et McCardell, 1989 ; Libmann, 2000 ; Osif et al., 2004). Il s'agit d'un

réacteur à eau pressurisé de 900 MW électriques (2722 MW thermiques) qui n'avait été mis en service commercial que 3 mois auparavant.

L'accident a débuté par un incident banal : la défaillance de l'alimentation en eau des générateurs de vapeur qui a entraîné un arrêt d'urgence du réacteur, car le circuit primaire n'était plus refroidi correctement. Lors de ce transitoire, deux défaillances de matériel ont eu lieu :

- Les pompes d'alimentation de secours des générateurs de vapeur ne purent pas les remplir car une vanne était restée fermée lors d'une opération de maintenance. Il faudra 25 minutes pour que les opérateurs l'ouvrent manuellement.
- La vanne de décharge du pressuriseur, qui avait été ouverte pour réduire la pression du circuit primaire, a reçu la commande de se fermer mais est restée coincée en position ouverte. L'indicateur en salle de contrôle n'indiquait que la commande et non l'état réel de la vanne, ce qui fit croire aux opérateurs que le pressuriseur se remplissait d'eau au-delà des limites de fonctionnement, risquant de mettre le circuit primaire en surpression, alors qu'il y avait une perte de réfrigérant primaire dans l'enceinte de l'ordre de 60 t/h.

Plus de cent alarmes et clignotants se sont déclenchés dans la salle de contrôle, ne permettant pas aux opérateurs de se faire une idée claire de la situation. Pendant ce temps, le circuit primaire se dépressurisait progressivement, entraînant un début d'ébullition. Les pompes du circuit primaires se sont alors mises à vibrer, et 100 minutes après le début de l'accident, les opérateurs les arrêtaient pour éviter de les détériorer. La puissance résiduelle (quelques dizaines de MW) n'étant plus évacuée, le niveau d'eau dans la cuve s'est mis à baisser, découvrant le cœur qui s'est dégradé puis a fondu partiellement, entraînant un relâchement significatif de produits de fission. Les opérateurs remirent alors en fonctionnement l'injection de sécurité et le cœur a de nouveau été refroidi, environ 4 heures après le début de l'accident. Il n'y a pas eu de relâchement significatif de radioactivité dans l'atmosphère. Seuls 13 MCi de gaz rares ont été relâchés de façon contrôlée après l'accident. Ces rejets n'ont pas fait dépasser en 1979 les limites réglementaires de rejets de cette centrale.

Ce n'est que 6 ans après l'accident, lors de l'introduction d'une caméra vidéo à l'intérieur de la cuve que l'on réalisera l'importance de la fusion du cœur. Broughton et al. (1989) estiment à 62 tonnes (45% de la masse du cœur) la quantité de matériaux fondus (Figure 1-3). Environ 20 t se sont relocalisées au fond de la cuve. Le renoyage de la cuve a permis de stabiliser le corium avant que la cuve ne soit trop endommagée par fluage (Korth et al., 1997).

Un programme international de recherche a été lancé suite à cet accident. Ces études ont mis en évidence l'importance des facteurs humains dans la sûreté des réacteurs. Elles ont aussi permis une meilleure compréhension de la phénoménologie des accidents graves. Le scénario de l'accident de TMI-2 a été étudié en détail et sert à la qualification de tous les codes de calcul actuels dédiés aux accidents graves des réacteurs à eau pressurisée.

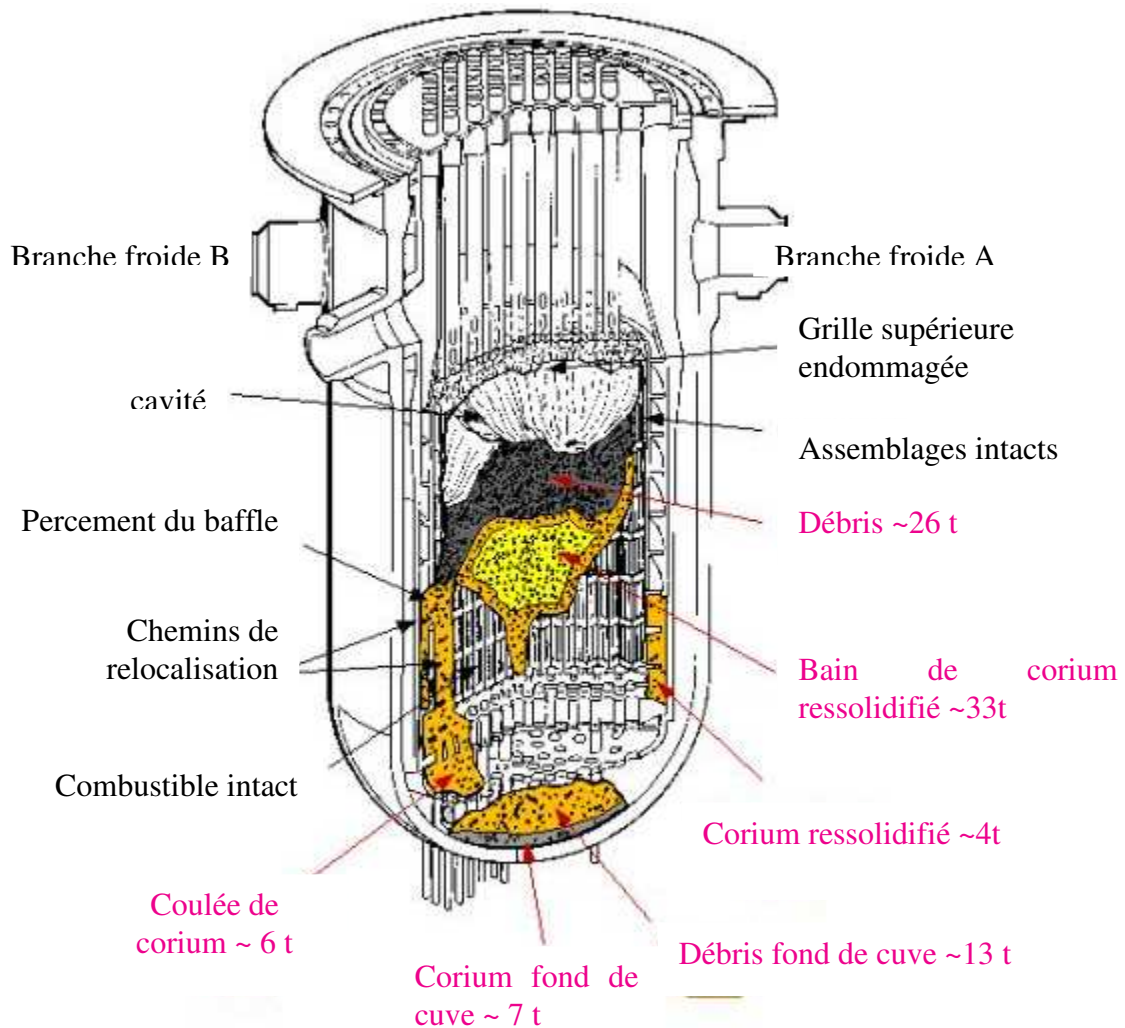


Figure 1-3 : Etat final du cœur de Three Mile Island 2 (Akers et McCardell, 1989)

1.2.3 Tchernobyl

Sept ans plus tard, le 26 avril 1986, le réacteur de la quatrième tranche de la centrale nucléaire de Tchernobyl (Ukraine) explosait. Cet accident (Pazukhin, 1994 ; Borovoi & Sich, 1995 ; Sich, 1995 ; Stang, 1996 ; Libmann, 2000), classé au niveau 7, est le plus grave qu'ait connu l'industrie nucléaire.

Ce réacteur de 1000 MWe (3200 MWth) appartenait à la filière RBMK avec un cœur modéré par du graphite et refroidi par de l'eau bouillante circulant dans des tubes de force (Figure 1-4). Une des particularités de ces réacteurs est que ses concepteurs soviétiques ne les avaient pas dotés d'une enceinte de confinementⁱ mais de compartiments conçus pour retenir la contamination lors de l'accident de dimensionnement, c'est à dire la rupture d'un nombre limité de tubes de force.

ⁱ Des enceintes de confinements sont actuellement en cours de construction autour des centrales RBMK en fonctionnement, comme par exemple la centrale dite de Leningrad, à Sosnovy Bor.

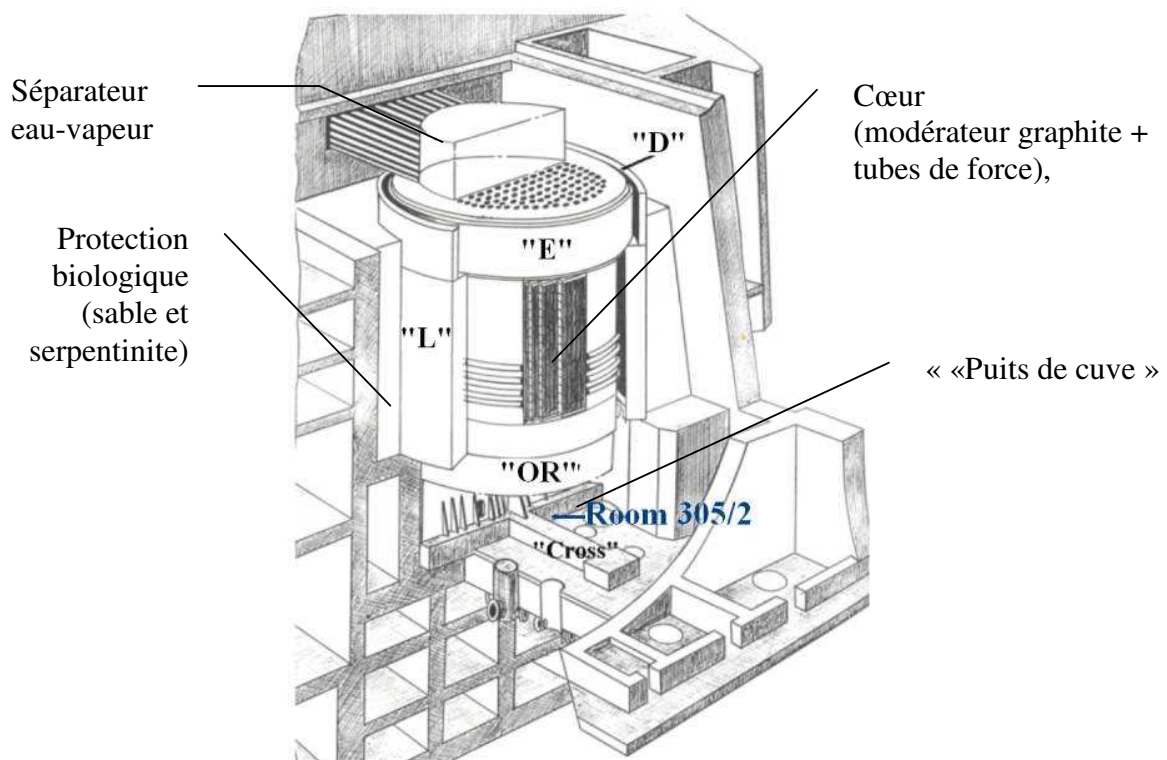


Figure 1-4 : Réacteur de type RBMK

E : Dalle supérieure du réacteur, **OR** : Dalle inférieure du réacteur,
D et L : Réservoirs annulaires d'eau pour la protection biologique,

Il était prévu d'effectuer ce jour là un essai de sûreté sur le réacteur dont l'objectif était de voir pendant quelle durée une turbine pouvait fournir sur son inertie du courant à la centrale en cas de perte du réseau électrique (et avant la reprise par les groupes électrogènes). Cet essai avait déjà eu lieu sur la tranche n°3 sans aucun incident.

Des demandes du réseau de distribution d'électricité ont fait que les opérateurs ont placé le réacteur dans une configurationⁱ pour laquelle les marges de réactivités étaient inférieures aux niveaux autorisés. De plus des sécurités avaient été désactivées afin de pouvoir réaliser cet essai. Il faut néanmoins rappeler (Stang, 1996) que personne ne savait à cette époque que cette configuration exceptionnelle pouvait conduire à une excursion de puissance.

A 1h23, l'opérateur a déclenché un arrêt d'urgence, mais dans cette configuration particulière, l'insertion de la partie basse (sans absorbant) des barres de contrôle dans le cœur a entraîné une augmentation transitoire de la réactivité. Combiné à l'effet de l'ébullition de l'eau, du fait de la diminution du débit des pompes – l'objectif de l'essai –, la puissance du réacteur divergea et fut multipliée par 100 (Libman, 2000) avant de s'arrêter suite à la destruction partielle du combustible.

Il y a ensuite une interaction violente entre le combustible et l'eau. La pression de vapeur va soulever la dalle supérieure du réacteur (2000 t) et détruire le reste des canaux de force. Une seconde explosion, vraisemblablement due à l'hydrogène issu de l'interaction zirconium-eau (Sich, 1995 ; Libman, 2000) a ensuite eu lieu. Certains auteurs (par ex. Kiselev & Checherov, 2001) ont même suggéré une vaporisation complète du combustible entre 6000 et 40000 K, même si leurs arguments sont peu convaincants (Sich, 1995b) au vu des analyses matériaux effectuées.

Cet accident a conduit à un important incendie de graphite qui a entraîné une partie des produits de fission vers la haute atmosphère et favorisé leur dissémination à grande distance.

ⁱ Fonctionnement à une puissance inférieure à 700 MWth. Moins de 30 barres de contrôles insérées dans le cœur.

Libman (2000) estime ces rejets à 200 MCi de gaz rares, 40 à 50 MCi d'iode 131, 2 MCi de césium 137 et 0,2 MCi d'autres radioéléments, à comparer avec les 13 MCi de gaz rare et la dizaine de curies d'iode rejetés lors de l'accident de Three Mile Island. Du fait de cette contamination, 135 000 personnes ont été évacuées et 800 000 vivent dans des zones fortement contaminées ($> 5 \text{ Ci/km}^2$). Le panache a transporté cette contamination sur la majeure partie de l'Europe et de l'Asie du Nord, mais les plus grandes concentrations se trouvent en Biélorussie, en Ukraine et en Russie. A ce jour, il est difficile d'atteindre un consensus sur les conséquences sanitaires à long terme de cet accident.

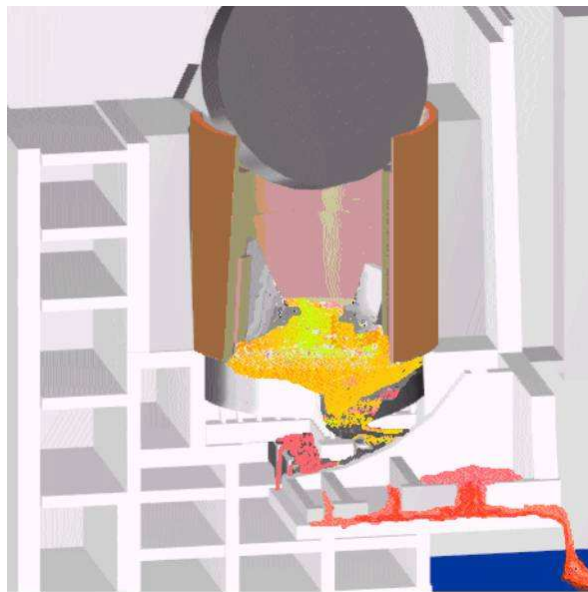


Figure 1-5 : Progression du corium à Tchernobyl

L'élévation de la température du combustible dispersé et la formation d'eutectiques avec le gainage en zirconium, le sable et la serpentinite [$\text{Mg}_6\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_8$] a entraîné la fusion d'une grande partie du combustible (Pazukhin, 1994). 1370 \pm 300 tonnes de corium (Borovoi & Sich, 1995) ont été trouvées dans les différents locaux du bâtiment réacteur (Figure 1-5).

D'après Borovoi & Sich (1995) et Pazukhin (1997), la progression du corium a duré plusieurs jours (4 à 9 jours selon les auteurs). Le corium s'est étalé dans de nombreuses pièces situées sous le niveau du réacteur et a ablaté certaines parois entre ces pièces. La progression du corium s'est arrêtée sans intervention extérieure au 3^e niveau sous le puits du réacteur (voir par exemple Figure 1-6) et n'a que très peu attaqué les structures métalliques. Sich (1995) en a conclu qu'il était possible de récupérer 135 tonnes de combustible, a fortiori dans un récupérateur dédié à cet effet. Il faut néanmoins noter que la concentration moyenne en combustible de ce corium est faible (autour de 10%_{masse} d'uranium) du fait de son mélange avec le sable, la serpentinite, puis les produits de décomposition du béton. Ceci a entraîné une dilution de la puissance résiduelle.



Figure 1-6 : Le « pied d'éléphant », un étalement de corium à Tchernobyl.

1.3 LE RECUPERATEUR DE CORIUM DE L'EPR

Suite aux accidents de Three Mile Island et de Tchernobyl, les autorités de sûreté ont demandé que les accidents graves soient pris en compte dès la conception des nouveaux réacteurs. Dans le cas hypothétique où se produirait une fusion du cœur, deux approches ont été retenues par les concepteurs de réacteurs :

- La rétention en cuve est adaptée à des réacteurs de petite et moyenne puissance comme le VVER-440 installés en Finlande (Kymäläinen et al., 1997) et les réacteurs AP600 et AP1000 (McLaughlin et al., 2005) développés par Westinghouse, ainsi que les réacteurs à eau bouillante comme le SWR 1000 de Framatome ANP (Brettschuh, 2001). Par ailleurs, des dispositifs spécifiques de récupération en cuve sont à l'étude pour le projet coréen APR1400 (Condie et al., 2004).
- La rétention hors cuve est la solution généralement retenue pour des réacteurs de plus de 1000 MWe. Actuellement, le seul récupérateur de corium effectivement construit est celui du réacteur VVER-1000 construit à Tian Wan (Chine) par un consortium russe (Svetlov et al., 2003). Cette solution a aussi été retenue par FRAMATOME ANP pour l'EPR (Fischer, 2003 ; Bouteille et al. , 2005).

L'EPR (sigle signifiant initialement *European Pressurized Reactor*, transformé en *Evolutionary Power Reactor* en vue du marché extra-européen) est en cours de construction à Olkiluoto en Finlande, devrait être construit à Flamanville, a été proposé pour la construction de plusieurs tranches en Chine et va être soumis à la certification par la NRC, l'autorité de sûreté états-unienne (Estève, 2005).

Dans ce réacteur à eau pressurisé, issu de l'évolution des réacteurs français N4 et allemands KONVOI, la solution retenue pour la rétention du corium est l'étalement du corium sur une surface de 170 m² dédiée à cet effet (Figure 1-7) afin de limiter les flux de chaleur dus à la puissance résiduelle et de faciliter son refroidissement par un système passif.

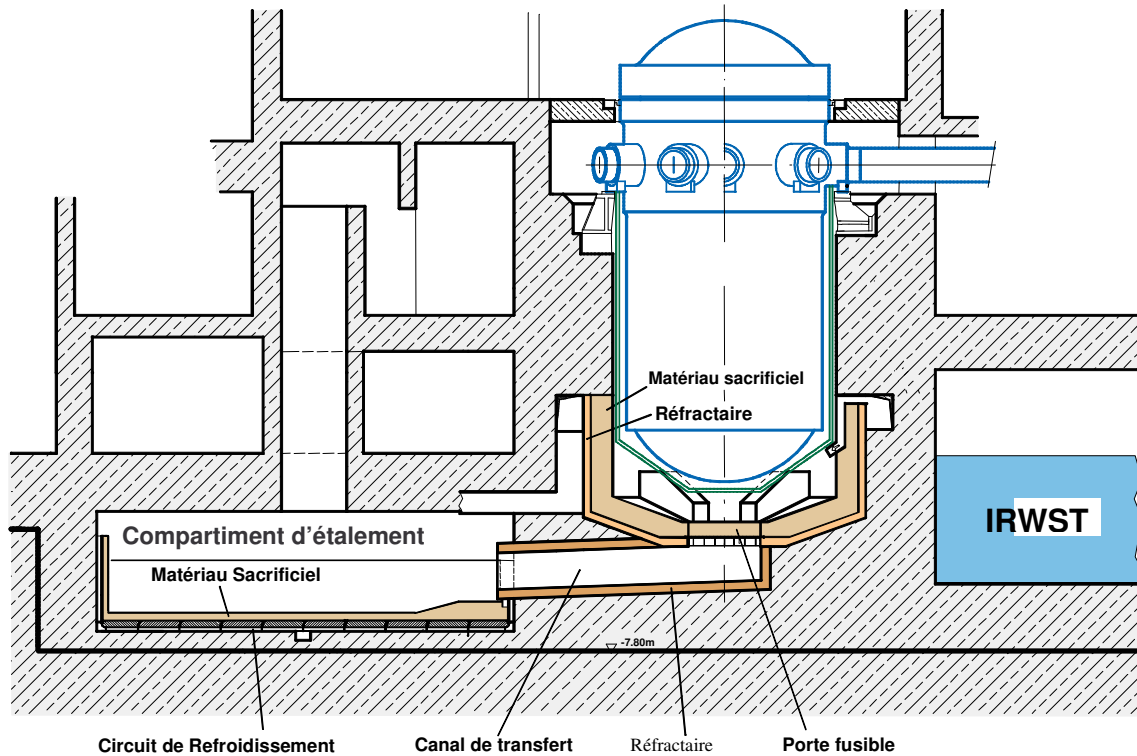


Figure 1-7 : Vue générale du récupérateur EPR (d'après Fischer, 2003).

Une des caractéristiques principales du concept EPR (Bouteille et al., 2005 ; Fischer, 2004) est que le corium n'arriverait pas directement dans le compartiment d'étalement mais serait retenu temporairement dans le puits de cuve. Ceci permet une séparation spatiale et temporelle des fonctions de tenue mécanique aux chocs pouvant survenir lors de l'accident et de rétention puis refroidissement du corium. Une porte fusible sépare en fonctionnement normal le puits de cuve et le compartiment d'étalement (Figure 1-8). Elle serait fondue par le corium qui pourrait alors s'étaler.

Le puits de cuve est recouvert d'un béton sacrificiel – béton à base de ciment Portland et d'agrégats ferreux et siliceux afin d'oxyder le zirconium et l'uranium métallique et d'abaisser la température de liquidus du mélange corium-béton (Nie, 2005) – qui serait érodé par le corium durant la phase d'accumulation, jusqu'à la fusion de la porte. Le mélange de ce béton au corium permet d'obtenir une composition favorable à l'étalement (Fischer, 2003) et de réduire le spectre des conditions initiales de l'étalement (composition, température, débit, ...) par rapport à la grande variabilité des scénarios pouvant se dérouler dans le puits de cuve (Nie, 2005). En particulier, l'oxydation exothermique du zirconium devrait se produire dans le puits de cuve. Après fusion de la porte, le débit attendu est très important, jusqu'à 10t/s selon Fischer (2003), ce qui favorise un bon étalement.

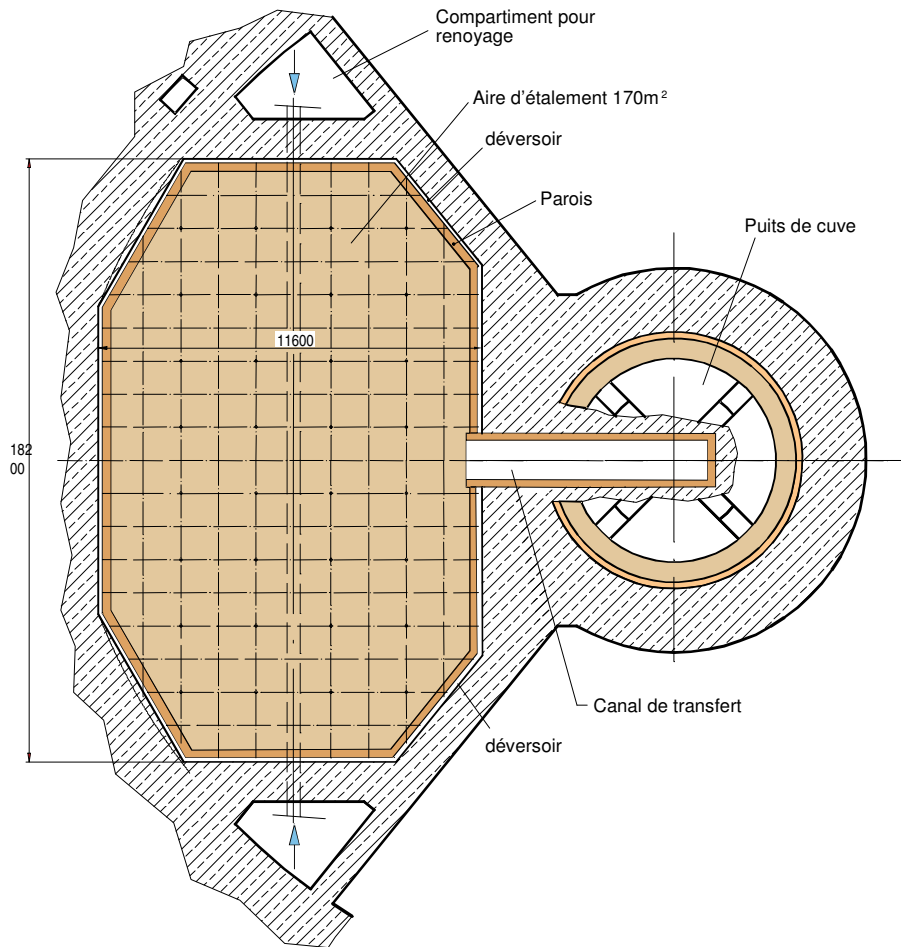


Figure 1-8 : Vue de dessus du compartiment d'étalement (Fischer, 2003)

Le récupérateur (Figure 1-9) est recouvert dans ses parties inférieures et latérales par un béton sacrificiel, afin de limiter les effets des charges thermiques transitoires lors du contact corium-récupérateur. L'érosion de ce béton diminuerait la température du corium ainsi que la densité de la phase oxyde, qui devrait se retrouver au-dessus du métal. La faible épaisseur de béton sacrificiel limite les relâchements de gaz non condensables (CO/CO_2 , H_2).

Un dispositif de refroidissement par eau est installé sous cette couche de béton sacrificiel. Il s'agit d'un assemblage de blocs d'acier dont la partie inférieure servira de canal rectangulaire pour la circulation de l'eau de refroidissement. Cette eau proviendrait du réservoir de stockage d'eau du bâtiment réacteur (IRWST) et passerait d'abord sous le récupérateur, puis latéralement pour se déverser sur le corium. Une cheminée est prévue pour évacuer vers l'enceinte la vapeur qui serait générée. Le refroidissement du corium peut être réalisé de façon entièrement passive, même s'il est prévu une injection active d'eau quelques heures après le début du refroidissement. Dans ce concept le compartiment réacteur et le fond du puits de cuve pourraient être totalement noyés et le trop-plein se déverserait vers l'IRWST, ainsi que l'eau issue de la condensation de la vapeur. Un des avantages de ce concept est que la coulée de corium serait stabilisée en quelques heures et complètement solidifiée en quelques jours (Fischer, 2004).

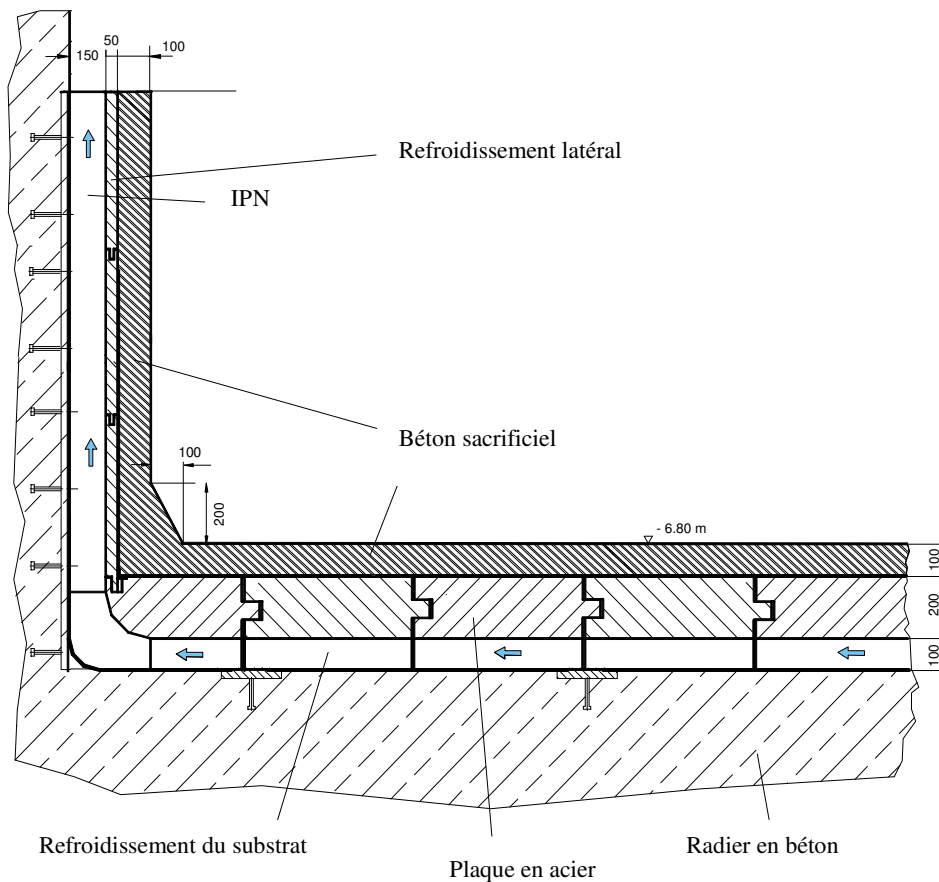


Figure 1-9 : Structure du récupérateur (Fischer, 2003)

1.4 ETUDE DE L'ÉTALEMENT DU CORIUM ET PLAN DU MEMOIRE

Le concept de récupérateur par étalement EPR a nécessité la mise en place de programmes de recherche et développement sur les aspects suivants : la décharge du corium dans le puits de cuve (Meyer & Gargallo, 2003) l'interaction du corium avec un béton et des réfractaires dans le puits de cuve (Fischer, 2005 ; Nie, 2005), l'ouverture de la porte entre le puits de cuve et le compartiment d'étalement (Alsmeyer et al., 2000), l'étalement du corium et son refroidissement dans le dispositif décrit au §1.3.

Par ailleurs, dans le cas hypothétique de l'interaction du corium avec le puits de cuve dans une centrale actuelle, sans récupérateur, le corium pourrait percer les parois en béton et s'étaler dans d'autres pièces du réacteur. L'estimation a priori de la progression du corium hors cuve est l'un des défis de l'amélioration de notre connaissance des accidents graves.

Cette thèse est consacrée à l'étude expérimentale de l'étalement du corium, en particulier à l'aide des expériences en matériaux prototypes (contenant de l'oxyde d'uranium appauvri) réalisées sur l'installation VULCANO au CEA Cadarache.

Dans un premier temps, nous présenterons l'état de l'art sur l'étalement, appliqué soit au corium, soit aux coulées de laves volcaniques. Ensuite, nous décrirons l'installation VULCANO et les expériences d'étalement du corium qui y ont été réalisées. La première étape de l'analyse de ces essais consiste en l'interprétation des analyses matériaux à l'aide de modèles thermodynamiques. Connaissant pour chaque température, la répartition et les compositions des phases présentes dans la coulée, on peut alors en estimer les propriétés physiques. L'étude des propriétés rhéologiques du corium, en particulier dans l'intervalle de solidification, fait l'objet du chapitre suivant, car c'est la rhéologie qui contrôle la progression

et l'immobilisation des coulées de corium. Nous allons ensuite présenter une étude thermique du refroidissement du corium qui a mis en évidence la présence, d'une part, d'une couche limite rhéologique à la surface libre et d'autre part, une forte résistance thermique de contact à l'interface avec le substrat. Finalement, ces essais ont servi à valider des codes de calcul d'étalement qui ont permis de conforter le concept de récupérateur pour l'EPR.

REFERENCES DU CHAPITRE 1 :

- AIEA (Agence Internationale de l'Energie Atomique), 2001, *INES : Echelle Internationale des événements Nucléaires, Manuel de l'Utilisateur*, AIEA-INES-2001, AIEA, Vienne.
- Akers, D.W., McCardell, R., 1989, Core Materials inventory and behaviour, *Nucl. Technol.*, 87, 214-223.
- Alsmeyer, H., Albrecht, G., Fieg, G., Stegmaier, U., Tromm, W., Werle, H., 2000, Controlling and cooling core melts outside the pressure vessel, *Nucl. Eng. Des.*, 202, 269-278.
- Borovoi, A.A., Sich, A.R., 1995, The Chernobyl accident revisited, Part II: State of the Nuclear Fuel located within the Chernobyl Sarcophagus, *Nucl. Safety*, 36, 1- 32.
- Bouteille, F., Azarian, G., Bittermann, D., Brauns, J., Eyink, J., 2005, The EPR overall approach for severe accident mitigation, *Proc. 13th Int. Conf. Nucl. Eng.*, Pékin, Chine, 16-20/5/2005, communication ICONE13-50018.
- Brettschuh, W., 2001, The SWR 1000: A nuclear power plant concept with boiling water for maximum safety and economy of operation, *Proc. Int. Conf. Nucl. Eng., ICONE 9*, Nice.
- Broughton, J.M., Kuan P., Petti, D.A., Tolman, E.L., 1989, A scenario of the Three Mile Island Unit 2 Accident, *Nucl. Technol.*, 87, 34-53.
- Condie, K.G., Rempe, J.L., Knudson, D., Suh, K.Y., Cheung, F.-B., Kim, S.-B., 2004, Design and Evaluation of Enhanced In-Vessel Core Catcher, *Proc. Int. Cong. Adv. Nucl. Power Plants(ICAPP 2004)*, Pittsburgh, Pennsylvanie, *t. Conf. Nucl. Eng.*, Pékin, Chine, 16-20/5/2005, ICONE13-50474. communication 4122.
- Estève, B., 2005, EPR projects on track, *Proc. 13th In*
- Fischer, M., 2003, Severe Accident Mitigation and Core Melt Retention in the European Pressurized Reactor (EPR), *Proc. 11th Int. Conf. Nucl. Eng.*, Tokyo, Japon, 20-23/4/2003, communication ICONE11-36196.
- Fischer, M., 2004, The severe accident mitigation concept and the design measures for core melt retention of the European Pressurized Reactor (EPR), *Nucl. Eng. Des.*, 230, 169-180.
- Fischer, M., Hellmann, S., Bonnet, J.M., Journeau, C., Tourniaire, B., Seiler, J.M., Alsmeyer, H., Bürger, M., Park, S., 2005, European experimental activities on the coolability of molten corium and its interaction with concrete and ceramic material, *The first European Review Meeting on Severe Accident Research (ERMSAR-2005)*, Aix-en-Provence, 14-16 November 2005.
- INSAG (International Nuclear Safety Advisory Group), 1999, *Basic Safety Principles for Nuclear Power Plants*, 75-INSAG-3 Rev. 1, INSAG-12, AIEA, Vienne.

- Kiselev, A.N., Checherov, K.P., 2001, Model of the destruction of the reactor in the N°4 unit of the Chernobyl nuclear power plant, *Atom. Energ.* 91, 967-975.
- Korth, G.E., Dierks, D.R., Neimark, L.A., 1997, Results of pressure vessel samples and instrument nozzles from TMI-2 lower head, *Nucl. Eng. Des.* 167, 267-285.
- Kymäläinen, O., Tuomisto, H., Theophanous, T.G., 1997, In-vessel retention of corium at the Loviisa plant, *Nucl. Eng. Des.*, 169, 109-130.
- Libmann, J., 2000, *Eléments de Sûreté Nucléaire*, EDP Sciences, Les Ulis.
- McLaughlin, D.T., Scobel, J.H., Schultz, T.L., 2005, Westinghouse AP1000 PRA Maturity, *Proc. 13th Int. Conf. Nucl. Eng.*, Pékin, Chine, 16-20/5/2005, ICONE13-50078.
- Meyer, L., Gargallo, M., 2003, Low Pressure Corium Dispersion Experiments with Simulant Fluids in a Scaled Annular Cavity, *Nuclear Technology*, 141, 257-274, 2003.
- Nie, M., 2005, *Temporary Melt Retention in the Reactor Pit of the European Pressurized Water Reactor (EPR)*, Thèse de Docteur-Ingénieur, Université de Stuttgart (Institut für Kernenergetik und Energiesystem), Allemagne
- Osif, B.A., Baratta, A.J., Conkling, T.W., 2004, *TMI 25 years later*, Penn. State Univ. Press, University Park, PA.
- Pazukhin, E.M., 1994, Fuel containing lavas of the Chernobyl NPP fourth block: Topography, Physicochemical properties, and formation scenario, *Radiochem.* 36, 109-154.
- Sehgal, B.R., 1999, Accomplishments and challenges of the severe accident research, *Proc. 9th Int. Topical Mtg. On Nucl. Reactor Thermal Hydraulics*, San Francisco, Ca., 3-8 Oct. 1999.
- Sich, A.R., 1995, The Chornobyl Accident Revisited, Part III: Chornobyl Source Term release Dynamics and Reconstruction of Events during the Active Phase, *Nucl. Safety*, 36, 195-217.
- Sich, A., 1995b, Chernobyl Theories: Treat with Caution, *Nucl. Eng. Int.*, 40(496), 30-32.
- Stang, E., 1996, Chernobyl – System accident or human error, *Rad. Prot. Dosimetry*, 68, 197-201.
- Svetlov, S.V., Bezlepkin, V.V., Kukhtevich, I.V., Bechta, S.V., Granovsky, V.S., Khabensky, V.B., Asmolov, V.G., Proklov, V.B., Sidorov, A.S., Nedoresov, A.B., Strizhov, V.F., Gusarov, V.V., Udalov, Yu. P., 2003, Core Catcher for Tianwan NPP with VVER-1000 reactor. Concept, Design and Justification, *proc. 11th Int. Conf. Nucl. Eng. (ICONE-11)*, Tokyo, Japon, 20-23/4/2003, communication ICONE11-36102.

Chapitre 2 : Etat de l'art sur l'étalement

L'étalement de coulées de fluides a été principalement étudié pour les fluides géologiques et en particulier les laves volcaniques, ainsi que pour des procédés industriels tels que le soudage en nappe, avant d'être considéré dans le cadre de la recherche sur les accidents graves de réacteurs nucléaires.

Dans un premier temps, nous allons passer en revue l'état de l'art sur l'étalement de fluides dont les propriétés ne varient pas au cours du temps, puis nous passerons en revue les travaux qui prennent en compte l'effet du refroidissement sur l'écoulement, soit pour les écoulements de lave volcanique soit lors de processus industriels tels que le soudage, puis pour le corium. Finalement, nous présenterons les expérimentations qui ont été réalisées par d'autres équipes pour étudier l'étalement du corium, d'abord en matériaux simulants, puis en matériaux prototypes (de même composition chimique que du corium). Une partie de ces essais, se sont produits en parallèle à nos travaux, dans le cadre des projets européens CSC (Cognet et al., 2001) et ECOSTAR (Alsmeyer et al., 2005) auxquels nous avons contribué.

2.1 ETALEMENT HYDRODYNAMIQUE

Nous considérons ici des fluides dont les propriétés physiques restent constantes au cours de l'étalement qui est donc régi par les lois de l'hydrodynamique. Nous nous plaçons dans le cas d'écoulements minces, c'est-à-dire dont l'épaisseur est petite par rapport aux autres dimensions. Nous allons considérer deux cas de figures : d'abord l'écoulement le long d'un plan incliné, puis l'étalement sur une surface horizontale.

2.1.1 Ecoulement le long d'un plan incliné

Parmi les 5 régimes permanents envisageables pour un écoulement le long d'un plan incliné (Perrazzo & Gratton, 2004), les deux plus simples correspondent au fluide au repos avec un mur incliné et à l'écoulement d'épaisseur constante h le long d'un plan incliné. Ce cas a été étudié par Dragoni et al. (1986) pour des fluides newtoniens (viscosité constante sans contrainte seuil) ou de Bingham (contrainte seuil et relation affine contrainte-taux de cisaillement).

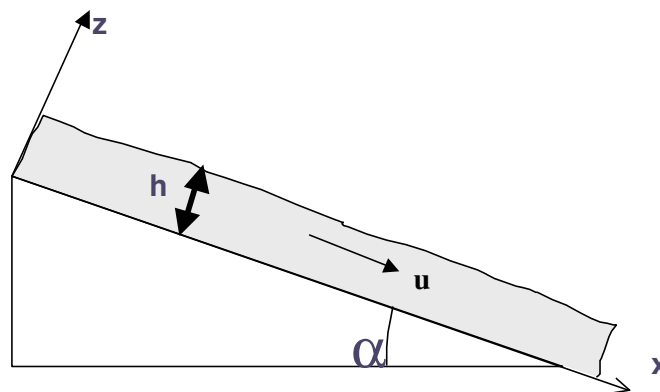


Figure 2-1 : Etalement le long d'un plan incliné

On se place dans les hypothèses dites de la lubrification : épaisseur de l'écoulement faible devant les autres dimensions, écoulement quasi parallèle au plan support.

La projection selon l'axe x de l'équation de Navier Stokes donne :

$$\eta \frac{d^2u}{dz^2} + \rho g \sin \alpha = 0 \quad (2-1)$$

où u est la composante de la vitesse selon l'axe des x.

Les conditions aux limites sont un glissement nul [$u(z=0)=0$] et, si on néglige l'effet de la tension de surface, une contrainte visqueuse nulle à la surface libre :

$$\sigma(z=h) = \eta \frac{du}{dz} \Big|_H = 0 \quad (2-2)$$

L'équation constitutive d'un fluide de Bingham de contrainte seuil σ° (ou d'un fluide Newtonien, si $\sigma^\circ = 0$) est :

$$\dot{\gamma} = \begin{cases} 0 & \sigma < \sigma^\circ \\ (\sigma - \sigma^\circ)/\eta & \sigma \geq \sigma^\circ \end{cases} \quad (2-3)$$

En intégrant ces trois équations on obtient :

$$u(z) = \frac{1}{\eta} \left[\frac{\rho g \sin \alpha}{2} z(2h-z) - \sigma^\circ z \right] \quad 0 < z < (h-h_c)$$

$$u(z) = \frac{\rho g \sin \alpha h}{2\eta} \left[1 - \frac{\sigma^\circ}{\rho g \sin \alpha} \right]^2 \quad z > h-h_c \quad (2-4)$$

$$h_c = \frac{\sigma^\circ}{\rho g \sin \alpha}$$

L'écoulement se caractérise, pour un fluide Newtonien ($\sigma^\circ = 0$) par une répartition parabolique de la vitesse. Pour un fluide de Bingham, dans la partie supérieure de l'écoulement (le « bouchon »), la vitesse est indépendante de la hauteur (Figure 2-2).

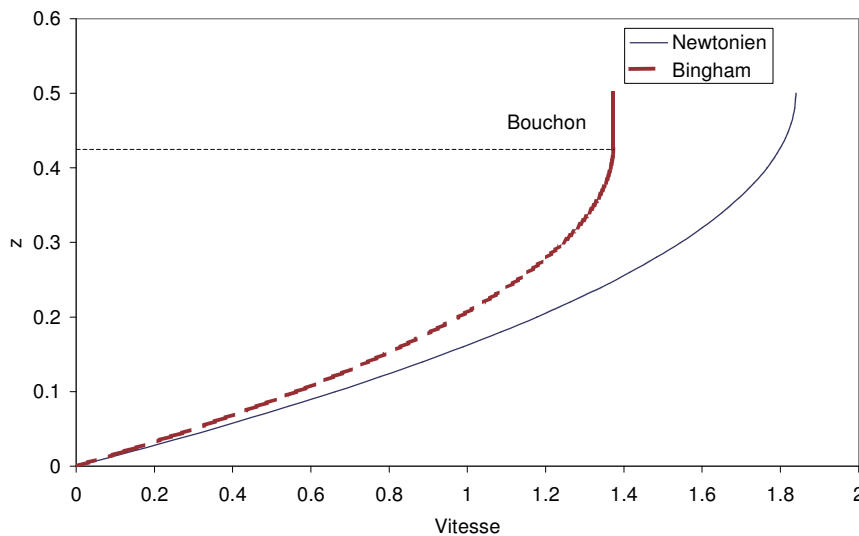


Figure 2-2 : Profils de vitesse pour des fluides Newtoniens et de Bingham s'écoulant sur un plan incliné. (d'après Dragoni, 1986)

L'épaisseur de la coulée est reliée au débit par unité de largeur selon :

$$q = \rho \int_0^h u(z) dz = \frac{\rho \sigma^\circ h^2}{3\eta} \left[\left(\frac{h}{h_c} \right)^3 - \frac{3}{2} \left(\frac{h}{h_c} \right)^2 + \frac{1}{2} \right] \quad (2-5)$$

ou dans le cas d'un écoulement sans bouchon,

$$q = \rho \int_0^h u(z) dz = \frac{\rho^2 g \sin \alpha h^3}{3\eta} \quad (2-6)$$

Huppert (1982), Liu & Mei (1989), Oron et al. (1997) ainsi que Perazzo & Gratton (2004) donnent des solutions approchées pour le cas général des écoulements instationnaires ou à épaisseur variable. Dans ce dernier cas, la force motrice prend en compte la variation d'épaisseur et s'écrit :

$$\rho g h \cos \alpha \left(\tan \alpha - \frac{\partial h}{\partial x} \right) \quad (2-7)$$

Huppert (1982) a montré que lors d'un écoulement sur un plan incliné, le front était soumis à des instabilités qui vont donner naissance à des langues de fluides s'étalant plus rapidement que le reste de l'écoulement.

Macedonio et Longo (1999) ont étudié, numériquement, les effets des bifurcations et des changements de pente dans les canaux de coulée de lave.

2.1.2 Etalement sur une surface horizontale

Contrairement à la lave s'écoulant sur les flancs d'un volcan, le corium va s'étaler principalement sur des surfaces horizontalesⁱ. Dans ce cas, la force motrice ne dépend plus que des gradients d'épaisseur : on ne peut donc pas avoir de solution simplifiée correspondant à une coulée d'épaisseur constante.

Huppert (1982b) a étudié le cas de l'écoulement à partir d'une source axisymétrique ou linéique telle que le volume total de la coulée soit proportionnel à t^α (Pour $\alpha=0$, on a le cas de la rupture instantanée d'un barrage et pour $\alpha=1$, celui d'un débit constant). Si le nombre de Bond, $Bo = \rho g L^2 / \sigma$ est très supérieur à un, on pourra négliger les effets de la tension de surface. Griffiths & Fink (1993) ont défini plusieurs régimes d'écoulement selon les forces dominantes, gravité, inertie, viscosité, contrainte seuil,...

Dans le cas où la gravité et la viscosité dominent, l'équation de Navier-Stokes pour les écoulements axisymétriques devient, en ne prenant en compte que la gravité et la viscosité et en négligeant les dérivées selon les directions autres que radiales dans le terme de gauche :

$$\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial r} = \nu \frac{\partial^2 u}{\partial z^2}, \text{ soit } g \frac{\partial h}{\partial r} = \nu \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \quad (2-8)$$

La conservation des volumes (le fluide étant supposé incompressible) implique :

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \int_0^h u dz \right) = 0 \quad (2-9)$$

soit, en combinant ces deux équations :

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{g}{3\nu r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r h^3 \frac{\partial h}{\partial r} \right) = 0 \quad (2-10)$$

La conservation globale des volumes coulés implique aussi que :

$$2\pi \int_0^{R(t)} r h(r, t) dr = G t^\alpha \quad (2-11)$$

Huppert (1982b) a trouvé une solution par similitude des équations (2-10) et (2-11), en posant

$$\xi = \left(\frac{g G^3}{3\nu} \right)^{-1/8} r t^{-(3\alpha+1)/8} \quad (2-12)$$

ⁱ C'est aussi le cas, en volcanologie des dômes se formant au sommet des volcans quand la lave est très visqueuse.

$$\text{et } h(r,t) = \xi_N^{2/3} \left(\frac{3Gv}{g} \right)^{1/4} t^{(\alpha-1)/4} \Psi(z) \quad (2-13)$$

où ξ_N est la valeur de la variable ξ pour le rayon $r_N(t)$ du front et, $z = \xi/\xi_N$. En substituant (2-12) et (2-13) dans (2-10) et (2-11), on trouve que la fonction Ψ vérifie :

$$(z\Psi^3\Psi')' + \frac{3\alpha+1}{8} z^2\Psi' - \frac{\alpha-1}{4} z\Psi = 0 \quad (2-14)$$

$$\text{et que } \xi_N = \left[2\pi \int_0^1 z\Psi(z)dz \right]^{-3/8} \quad (2-15).$$

Pattle (1959) a montré que pour $\alpha=0$ (rupture d'un barrage), on a :

$$\Psi(z) = \left(\frac{3}{16} \right)^{1/3} (1-z)^{1/3} \quad \xi_N = \left(\frac{2^{10}}{3^4\pi^3} \right)^{1/8} \approx 0.894 \quad (2-16).$$

Pour un écoulement avec un débit volumique constant ($\alpha=1$), le paramètre ξ_N vaut 0.715 et le front progresse selon la loi :

$$r_N = 0.623 \left(\frac{gG^3}{v} \right)^{1/8} t^{1/2} \quad (2-17)$$

$$\text{et } \Psi(z) \approx \left(\frac{2}{3} \right)^{1/3} (1-z)^{1/3} \left[1 - \frac{1-z}{12} + O(1-z)^2 \right] \quad (2-18)$$

Ces modèles ont été validés par des essais d'étalement en matériaux simulants et sur le dôme de lave de la Soufrière de St Vincent (Huppert, 1982c). Huppert (1982b) a aussi dérivé les expressions pour une géométrie rectangulaire.

Pour le régime gravité-inertie, Didden & Maxworthy (1982) ont montré que la position du front était proportionnelle à $(gG)^{1/4} t^{3/4}$ en géométrie axisymétrique. La transition entre ces deux régimes s'effectue lorsque les forces d'inertie et les forces visqueuses sont du même ordre de grandeur, soit au bout d'un temps de l'ordre de :

$$t_{trans} \approx \left(\frac{G}{gv} \right)^{1/2} \quad (2-19)$$

Balmforth et al. (2000) ont étendu les résultats ci-dessus à des fluides viscoplastiques (avec des lois constitutives de type Herschel-Bulkey, ce qui comprend les fluides de Bingham et les lois puissance). Dans le cas des fluides de Bingham, l'effet de la contrainte seuil devient important après un temps

$$t_{Bingham} \approx \frac{G^{1/4} (\rho g)^{1/2} h}{(\sigma^0 R)^{1/2}} \quad (2-20)$$

et se manifeste par la présence d'un écoulement de type « bouchon » dans la partie haute de la coulée.

Griffiths & Fink (1993) puis Fink & Bridges (1995) ont listé les dépendances du rayon et de la hauteur maximale de la coulée en fonction du régime d'écoulement et de la rhéologie, y compris les configurations pour lesquelles l'écoulement est piloté par la rhéologie d'une peau plus visqueuse que le cœur de la coulée. Le Tableau 2-1 indique les relations entre la hauteur et la forme pour ces régimes.

Régime	Hauteur maximale	Rapport d'aspect (H/2R)
Gravité – viscosité Newtonnienne	h= cste	$\sim V^{0,5}$
Gravité – peau Newtonnienne	h=Cste	$\sim V^{0,5}$
Gravité – fluide Bingham	h $\sim R^{0,5}$	$\sim V^{-0,2}$

Gravité- peau de Bingham	$h \sim R^{0,67}$	$\sim V^{-0,125}$
Gravité – Inertie	$h \sim R$	Indépendant de V

Tableau 2-1 : Effet du régime sur la forme des coulées (d'après Fink & Bridges, 1995) pour $\alpha=1$

L'étalement comporte deux points singuliers : l'origine, car il y a un débit non nul en $r=0$ (en fait, le débit est introduit sur un disque de rayon r_0 fini) et le point de contact entre le substrat et le front (Shikhmurzaev, 1991). Du fait de la condition de non-glissement sur la paroi, on observe en fait un mouvement de roulement, semblable à celui de chenilles de char (Léger & Joanny, 1992): le front de coulée liquide-gaz avance alors que l'interface liquide-solide reste immobile. Cet effet a été mis en évidence expérimentalement par Merle (1998) : dans la Figure 2-3, ce phénomène est clairement visible car des damiers avaient été tracés sur les faces de la silicone qui était étalée.

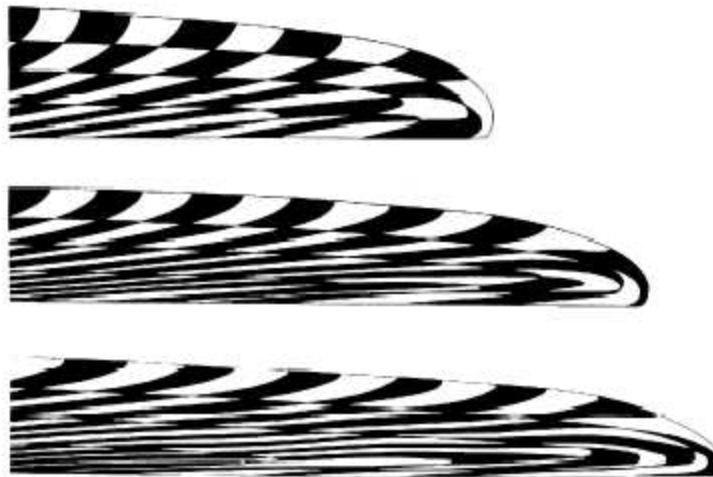


Figure 2-3 : Etalement avec mouvement de type chenille au front (photographies tirées de Merle, 1998)

De nombreux auteurs tels que Léger & Joanny (1992) ou Oron et al. (1997) ont étudié en détail les effets au niveau de l'angle de contact liquide/solide au front de la coulée et, en particulier, l'effet de la rugosité du substrat. Ces effets sont particulièrement important pour des étalements de petites dimensions (gouttes). Nous n'irons pas à ce niveau de détail pour l'application à l'étalement du corium

D'après Baloga (1987), le caractère non linéaire de l'équation (2-10) implique que la forme d'ondes cinématiques dans une coulée va varier lors de sa propagation. En particulier, une perturbation au niveau de la source va se propager plus vite que la vitesse de groupe de la coulée.

Ehrhard (1995) a étudié l'écoulement d'un bain de hauteur $h(t)$ s'écoulant par une porte dans sa paroi inférieure et a montré que dans ce cas, la vitesse de coulée, dans la phase de vidange est donnée, en appliquant la loi de Bernoulli par :

$$u(t) = \sqrt{2gh(t)} \quad (2-21)$$

2.2 ETALEMENT DE LAVES EN COURS DE REFROIDISSEMENT

Les volcanologues cherchant à déterminer les longueurs d'étalement de coulées de lave, ont mis en évidence le fait qu'il ne s'agissait pas uniquement d'un phénomène hydrodynamique, mais qu'elle était aussi déterminée par le refroidissement qui entraîne une augmentation de la viscosité au point d'entraîner in fine l'immobilisation de la lave.

Pinkerton & Sparks (1976) ont montré que les coulées de laves de l'éruption de 1975 de l'Etna s'arrêtaient lors que leur nombre de Grätz atteignait une valeur critique de 300. Le

nombre de Grätz, Gz , est le rapport entre l'advection et la conduction dans la hauteur de la coulée :

$$Gz = \frac{ud_h^2}{aL} \quad (2-22)$$

où d_h est le diamètre hydraulique de la coulée (4 fois la section de la coulée divisée par le périmètre mouillé), et L la longueur de la coulée. Ce seuil compris entre 280 et 370 a été étendu à d'autres éruptions, telle que celles du Pu'u 'O'o à Hawaï (Pinkerton & Wilson, 1994). Dragoni (1989) utilise ce critère pour déterminer l'instant d'arrêt dans son modèle de coulée le long d'un plan incliné.

Pinkerton & Wilson (1994) ont proposé la corrélation suivante permettant de déterminer la longueur d'étalement sur un plan incliné pour une série de 48 coulées de laves sur les pentes du Pu'u 'O'o :

$$L = 1,32 G^{0,47} t_{\text{erupt}}^{0,71} \alpha^{0,51} h^{-0,37} \quad (2-23)$$

Mais, il est difficile d'étendre une telle corrélation à d'autres fluides ou d'autres conditions initiales.

Bercovici (1994) puis Bergovici & Lin (1996) ont proposé d'intégrer les équations de l'étalement et de la chaleur. Les deux équations sont reliées par la viscosité. La principale différence observée entre ces écoulements et l'écoulement hydrodynamique de Huppert (1982) est la possibilité d'épaississement des coulées. Il faut noter avec Crisp & Baloga (1990) que le refroidissement par rayonnement n'est pas dû qu'à la croûte, mais aussi à la contribution des fissures qui permettent au cœur de la coulée de rayonner. Du fait de la dépendance en T^4 du terme de rayonnement, il apparaît que quelques pour cent de la surface de la coulée peuvent contribuer significativement à son refroidissement.

Stasiuk et al.(1993) a étudié le couplage entre la coulée et le refroidissement, à partir d'une modélisation mathématique et d'expériences en matériaux simulants dont la viscosité varie fortement avec la température - ici un sirop de sucre ; Fink & Griffiths (1992) ont quant à eux simulé la lave avec une cire, le Polyéthylène Glycol (Soule & Cashmann, 2004) tandis que Hallot & Sparks (1995) ont réalisé des expériences avec de la résine de pin - . Les profils de températures et la forte dépendance de la viscosité avec la température font que la viscosité de la couche supérieure est beaucoup plus élevée que celle du cœur de la coulée. De ce fait, la viscosité équivalente, définie comme celle que doit avoir un mélange isotherme pour que la longueur d'étalement estimée par la formule (2-17) de Huppert (1982) soit égale à la longueur d'étalement observée, est plus élevée que la viscosité du cœur de la coulée et se rapproche de celle de la surface.

Hon et al. (1994) ont étudié l'effet des croûtes sur la progression de laves : le refroidissement de la surface crée une peau plastique qui, lorsqu'elle atteint quelques millimètres d'épaisseur, va se gonfler comme un ballon sous l'effet de la pression interne et se rompre localement, en créant des protrusions. Ceci entraîne une progression saccadée du front de coulée. Ensuite, la température de surface décroît en dessous du solidus, formant une croûte solide ayant une rupture fragile. Dans ce cas, on a une progression pilotée par la rupture de la croûte. Il peut se produire des empilements si le point faible de la croûte n'est pas au front. Une autre possibilité est la formation de tubes de lave, dans lesquels la progression est significativement plus rapide, car le tube de lave sert d'isolant thermique à la coulée.

Sakimoto & Zuber(1995) puis Foit (2004) ont étendu les solutions de similitude de Huppert aux cas où la viscosité variait avec le temps (afin de simuler l'effet du refroidissement de la coulée). Bunk et al.(2001) ont étendu ces solutions par similitude au cas d'une coulée avec une croûte solide, soit fixe, soit flottante. Dans le cas d'une croûte fixe, il a montré que la vitesse de coulée était significativement réduite par rapport au cas sans croûte, et que la vitesse maximale était atteinte au centre de la coulée et non en surface. Par contre, une croûte flottante ne modifie que peu la cinématique de l'étalement.

Fink et al. (1989, 1990, 1992), Griffiths & Fink(1992, 1993) et Fink & Bridges (1995) ont défini, pour caractériser l'étalement et la morphologie des coulées, le paramètre adimensionné Ψ comme le rapport du temps nécessaire pour que de la croûte solide se forme sur un élément de lave par le temps caractéristique de l'advection horizontale de la lave.

$$\Psi = t_s/t_a \quad (2-24)$$

Dans le cas d'un étalement axisymétrique dans le régime viscosité-gravité, le temps caractéristique de l'advection, rapport de l'épaisseur de la coulée par la vitesse, vaut :

$$t_a = \left(\frac{\eta}{g \Delta \rho} \right)^{3/4} G^{-1/4} \quad (2-25)$$

L'analyse d'essais en laboratoire, confirmée par l'étude de coulées de laves terrestres ou extraterrestres a indiqué que :

- Pour $\Psi < 3$ (les solidifications les plus rapides), l'étalement a formé des bourrelets moins larges que l'étalement, donnant un état final assez boursoufflé.
- Pour $3 < \Psi < 10$, on observe des plaques de croûte flottant sur la surface de la coulée.
- Pour $10 < \Psi < 25$, la surface est moins perturbée, si ce n'est par des plissements.
- Pour $25 < \Psi < 55$, la croûte n'apparaît que près du front et forme des levées de part et d'autres de la coulée.
- Pour $\Psi > 55$, aucune croûte n'a été observée.

2.3 ÉTALEMENTS LORS DE PROCÉDES INDUSTRIELS

L'étalement de liquides en cours de solidification a aussi été étudié pour ses applications industrielles telles que dépôt de revêtements (Stevens & Poulikakos, 1991), la coulée continue en métallurgie (Digruher et al., 2000), la soudure (Shakeri & Chandra, 2002), le dépôt de polymères par jet (Siringhaus et al., 2000). Il s'agit généralement de l'étude de la solidification d'une goutte s'étalant sur un substrat. Dans ce cas, vu les faibles dimensions de la goutte, le nombre de Bond est généralement faible et il faut prendre en compte les effets de la tension de surface.

Madejski (1976) a proposé une modélisation de l'étalement d'une gouttelette en supposant qu'elle prenait à chaque instant une forme cylindrique de rayon R et de hauteur h variant au cours du temps. Ce modèle a été amélioré par les travaux de Delplanque (1998) et de Sivakumar & Nishiyama (2004).

La conservation de l'énergie mécanique (énergie cinétique, énergie potentielle liée à la tension de surface et dissipation visqueuse) donne après quelques manipulations (Sivakumar & Nishiyama, 2004) :

$$\frac{d}{dt} \left[\frac{3}{10} \rho \left(\frac{dR}{dt} \right)^2 \left(R^2 h + \frac{11}{7} h^3 \right) + \sigma (R^2 (1 - \cos \theta) + 2Rh) \right] + \frac{\eta R^2}{h} \left(\frac{dR}{dt} \right)^2 \left[\frac{3}{2} + \frac{72h^2}{5R^2} \right] = 0 \quad (2-26)$$

où θ est l'angle de contact dynamique entre la coulée et le substrat.

L'épaisseur de la couche solide croît selon :

$$y = U \sqrt{a(t - \tau)} \quad (2-27)$$

où la constante de solidification U est la solution de l'équation :

$$St = \frac{C_p (T_b - T_{substrat,0})}{H_m} = \sqrt{\pi} \left(\frac{U}{2} \right) \operatorname{erf} \left(\frac{U}{2} \right) \exp \left(\frac{U^2}{4} \right) \quad (2-28)$$

et τ est l'instant où débute la solidification.

Lorsque le nombre de Weber ($We = 2\rho u_0^2 R_0 / \sigma$) tends vers l'infini, c'est à dire lorsque l'effet de la tension de surface est négligeable, Zhang (1999) a montré que le rayon maximal de la coulée (sans solidification) est donné par :

$$R_{\max} \approx 1,18 \text{ Re}^{1/5} \quad (2-29)$$

Fedorchenko et al. (2004) citent d'autres travaux aboutissant à la même formulation mais avec des coefficients compris entre 0,82 et 1,23 selon les auteurs et les hypothèses choisies.

La solidification va tendre à réduire le rayon maximal de l'étalement. Chung & Rangel (2001) ont étendu ces résultats en tenant compte de la résistance thermique de contact à l'interface et de la surfusion qui vont augmenter le délai de début de la solidification et donc favoriser l'étalement de la goutte. L'effet de la surfusion sur ce délai et sur le rayon maximal est de moindre amplitude que celui de la résistance de contact.

Stevens & Poulidakos (1991) ont pris en compte les particularités d'un alliage binaire qui entraîne la formation d'une zone pâteuse à l'interface entre les isothermes correspondant aux températures de solidus et de liquidus.

2.4 MODELISATION DE L'ETALEMENT DU CORIUM

Dinh et al. (2000) et Konovalikhin (2001) ont proposé une modélisation en simplifiée de l'étalement du corium. La plupart des autres équipes ont préféré mettre au point des codes de calcul, modélisant plus précisément le comportement du corium.

2.4.1 Modélisation en ordre de grandeur

Le modèle en ordres de grandeur de l'Ecole Polytechnique Royale de Stockholm (Dinh et al., 2000 et Konovalikhin, 2001) reprend certains travaux antérieurs de Moody (1989) et est construit à partir des hypothèses simplificatrices suivantes :

- i. L'hydrodynamique de l'étalement est déterminée soit par l'inertie et la gravité (Didden & Maxworthy, 1982) soit par la gravité et la viscosité (Huppert, 1982b) et le régime ne varie pas au long de l'écoulement.
- ii. Les propriétés physiques du corium sont supposées constantes et égales à leurs valeurs initiales.
- iii. La durée caractéristique de l'écoulement est le temps de versement du corium (masse totale/débit supposé constant).
- iv. L'écoulement est décrit par une vitesse caractéristique constante.
- v. Les flux de chaleurs sont supposés constants et l'échange convectif entre le corium et les substrat est déterminé par la corrélation $Nu=0.0027 Pe$ (Dinh et al., 1997). L'emploi de cette corrélation, établie pour des écoulements turbulents, est justifié par le caractère rugueux de l'interface bain-croûte.
- vi. Le corium est supposé s'arrêter lorsqu'une fraction *suffisante* (de l'ordre de 50-55 %) de la chaleur latente a été enlevée.
- vii. L'échelle de temps de solidification est supposée proportionnelle à l'épaisseur de la coulée.

Les épaisseurs de corium sont adimensionnalisées par rapport à l'épaisseur capillaire (vers laquelle tendrait l'étalement sans solidification) :

$$h_{cap} = 2 \sqrt{\frac{\sigma}{\rho \cdot g}} \quad \mathcal{L} = \frac{h_{coulée}}{h_{cap}} \quad (2-30)$$

Le temps caractéristique d'étalement (sans solidification) est le temps pour atteindre le rayon correspondant à l'épaisseur caractéristique. Il est donné par :

$$\tau_{conv} = \frac{V_{tot}}{D \cdot h_{cap} \cdot U} \quad (2-31)$$

où la vitesse caractéristique dépend du régime. Pour le régime gravité-inertie, elle vaut, en négligeant le terme multiplicatif de l'ordre de 1 :

$$u_{inert} = \left(\frac{g \cdot G}{D} \right)^{1/3} \Rightarrow \tau_{conv} = \frac{V}{D \cdot h_{cap} \cdot \left(\frac{g \cdot G}{D} \right)^{1/3}} \quad (2-32)$$

tandis que pour le régime gravité-visqueux, elle vaut :

$$u_{visc} = \left(\frac{g \cdot G^3}{3 \cdot \nu} \right)^{1/8} \cdot \left(\frac{G}{V_{tot}} \right)^{1/2} \quad (2-33)$$

En fait, la solidification de la coulée va dans la plupart des cas faire que l'étalement s'arrêtera avant d'avoir atteint l'épaisseur capillaire. Konovalikhin (2001) considère que la coulée est immobile lorsqu'une fraction χ de la coulée est solidifiée et recommande une valeur de 55%, déterminée à partir des essais de Suzuki et al.(1993). Pour un mélange à solidification congruenteⁱ ayant une surchauffe de ΔT_{sup} par rapport au point de fusion, il faut enlever d'un volume V de corium la quantité de chaleur :

$$V \cdot Q_{solidif} = V \cdot \rho_l \cdot [C_{p,l} \cdot \Delta T_{sup} + \chi \cdot H_{fusion}] \quad (2-34)$$

Konovalikhin (2001) ne préconise pas explicitement d'extension de cette approche aux solidifications non-congruentes.

Le temps caractéristique pour immobiliser une épaisseur δ_{cap} de corium est donné par :

$$\tau_{solidif} = h_{cap} \cdot \rho_l \frac{H(T_0) - H_{solidif}}{\varphi_{haut} + \varphi_{bas} - h_{cap} \cdot Q_v} \quad (2-35)$$

où $\varphi_{haut} = \varepsilon \sigma T_0^4$ est le flux de chaleur radiative (en supposant que la surface du corium reste à la température initiale du bain) ;

$\varphi_{bas} = 0.0027 \cdot \rho_m \cdot c_{p,m} \cdot u_{sp} \cdot (T_0 - T_{solidif})$ est le flux convecté vers le bas, en appliquant la corrélation de Dinh (1997) ;

Q_v est la puissance volumique résiduelle.

L'échelle de temps adimensionnelle τ est définie comme le rapport entre les temps caractéristiques d'étalement et de solidification :

$$\tau = \frac{\tau_{conv}}{\tau_{solidif}} \quad (2-36)$$

Considérant qu'il faut un temps égal $\mathcal{L} \tau_{solidif}$ pour solidifier une coulée d'épaisseur adimensionnée \mathcal{L} , et que l'étalement hydrodynamique atteint cette épaisseur adimensionnée \mathcal{L} au bout du temps τ_{conv}/\mathcal{L} , Dinh et al. (1999) ont relié la longueur adimensionnée au temps adimensionné par :

$$\mathcal{L} = \tau^{1/2} \text{ en régime gravité-inertie} \quad (2-37)$$

$$\text{et } \mathcal{L} = \tau^{1/2} \text{ en régime visqueux} \quad (2-38)$$

où est le rapport des vitesses entre les deux régimes :

$$\frac{u_{inert}}{u_{visc}} \approx \frac{\nu^{1/8} \cdot V_{tot}^{1/2} \cdot g^{5/24}}{D^{1/3} \cdot G^{13/24}} \quad (2-39)$$

ⁱ On appelle *solidification congruente*, un processus de solidification dans lesquels le liquide et le solide ont la même composition. C'est le cas des corps purs et des eutectiques. Le changement de phase s'effectue à une température fixée et non sur une plage de température entre le liquidus et le solidus.

Après quelques manipulations algébriques, on trouve que la longueur d'étalement dans le cas d'un écoulement plan de largeur D est donnée dans le régime de gravité-visqueux par :

$$\mathcal{L}_{1D} = \text{Min} \left[\frac{V_{tot}}{h_{cap} \cdot D}, \frac{V_{tot}^{1/4} \cdot G^{7/16} \cdot \left(\frac{g}{3 \cdot \nu}\right)^{1/16} \cdot \rho_l^{1/2} \cdot (H(T_0) - H(T_{solidif}))^{1/2}}{[\varphi_{haut} + q_{bas} - Q_v h_{cap}]^{1/2} \cdot D} \right] \quad (2-40)$$

La viscosité n'intervient qu'à la puissance $-1/16$, mais, comme on le verra au chapitre 4, la viscosité est le paramètre variant le plus dans l'intervalle de solidification.

Konovalikhin (2001) a ensuite proposé des adaptations de son modèle à diverses géométries et l'a validé sur la base de données expérimentales (voir § 7.1). Il apparaît que l'étalement en deux dimensions dans un espace ouvert est plus efficace que dans un canal axisymétrique. Le temps adimensionné τ établi pour un écoulement en canal doit être multiplié par le terme :

$$\mathcal{B} = D^\circ \left(\frac{2\delta_{cap}}{\alpha V_{tot}} \right)^{1/2} \quad (2-41)$$

où α représente l'angle du secteur angulaire où s'étalement la coulée.

2.4.2 Les codes de calcul d'étalement du corium

Pour avoir une meilleure description physique des phénomènes, plusieurs organismes de recherche ont développé des codes de calcul permettant de suivre l'évolution locale de la température et de la vitesse d'écoulement durant la coulée. On va distinguer deux types de codes : les codes tels que MELTSPREAD, THEMA et LAVA pour lesquels les équations sont intégrées selon l'axe vertical, et les codes CORFLOW et CROCO qui permettent d'étudier plus finement les évolutions le long de l'épaisseur de la coulée.

2.4.2.1 MELTSPREAD

Le code MELTSPREAD (Farmer et al., 1993) a été développé au Laboratoire National d'Argonne pour l'EPRI. Il permet une modélisation monodimensionnelle détaillée des écoulements gravitaires, de l'immobilisation due à la solidification, de la refusion, de l'échauffement et, le cas échéant, de l'ablation du substrat, de l'oxydation du corium sous l'effet des gaz de décomposition du béton, ainsi que des modélisations adaptées à la configuration particulière de l'étalement sur l'enveloppe métallique des enceintes de confinement de réacteurs à eau bouillante type Mark-1.

Ce code a été principalement validé sur des essais avec un substrat métallique. Lors de sa validation sur des substrats en béton, il est apparu que les effets de l'attaque du béton (ablation, oxydation par les gaz de décomposition, ...) étaient décorrélés temporellement de la phénoménologie plus rapide de l'étalement.

2.4.2.2 THEMA

Le code de calcul THEMA (Eberlé, 1997 ; Spindler et al. , 2004, 2006) a été développé au CEA Grenoble, en collaboration avec EDF. Il modélise l'étalement d'un fluide en prenant en compte l'effet de sa solidification et de la fusion éventuelle du substrat. Il est caractérisé par une intégration des équations sur l'épaisseur de la coulée. Du fait du peu d'intérêt d'une modélisation extrêmement précise au vu des incertitudes sur les propriétés physiques de fluides en cours de solidification, ceci permet de réduire le temps de calcul, tout en ayant un code de calcul simple et numériquement robuste. Contrairement au code MELTSPREAD

(Farmer et al., 1993), il permet la prise en compte de géométries horizontales à une ou deux dimensions.

La modélisation de la coulée est fondée sur une intégration des équations tridimensionnelles le long de la hauteur de la coulée, tout en prenant en compte la présence éventuelle d'une croûte en haut et en bas de la coulée. Même dans le cas de l'étalement de deux liquides immiscibles (par exemple la phase oxyde et la phase métallique du corium) on ne considère qu'une seule équation pour la quantité de mouvement, en faisant l'hypothèse d'un écoulement en film mince (masse volumique indépendante de l'altitude, turbulence négligeable, transferts verticaux de quantité de mouvement négligeables, pression supposée hydrostatique) :

$$\rho \cdot \left(\frac{\partial \vec{u}}{\partial t} + \vec{u} \cdot \nabla \vec{u} \right) = -\nabla [\rho \cdot g \cdot (h + e)] - F_w \cdot |\vec{u}| \cdot \vec{u} \quad (2-42)$$

où ρ est la densité moyenne de la coulée,
 h sa hauteur totale,
 e l'épaisseur du substrat (par rapport à un référentiel horizontal),
 F_w , le coefficient de frottement corium-substrat.

Pour la conservation de la masse, une équation moyennée est nécessaire pour chaque phase liquide (oxyde ou métallique) :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_i \cdot h_i) + \nabla (\rho_i \cdot h_i \cdot \vec{u}) = \Gamma_{i,ab} - \Gamma_{i,cr} \quad (2-43)$$

où ρ_i est la densité de la phase i ,
 h_i est la hauteur du constituant i ,
 $\Gamma_{i,ab}$ est l'apport de masse par ablation du substrat destiné à la phase i ,
 $\Gamma_{i,cr}$ est la perte de masse du constituant i par formation de croûte.

Finalement, les bilans d'énergie sont aussi moyennés pour chaque couche :

- Bilan d'énergie pour l'ensemble des oxydes :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_D \cdot h_D \cdot H_D) + \nabla (\rho_D \cdot h_D \cdot H_D \cdot \vec{u}) = \Gamma_{D,ab} \cdot H_{D,ab} - \Gamma_{D,cr} \cdot H_{D,cr} - Q_{D,surf} - Q_{D,w} + Q_{D,res} - Q_{D,A} \quad (2-44)$$

- Bilan d'énergie pour l'ensemble des métaux :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_A \cdot h_A \cdot H_A) + \nabla (\rho_A \cdot h_A \cdot H_A \cdot \vec{u}) = \Gamma_{A,ab} \cdot H_{A,ab} - \Gamma_{A,cr} \cdot H_{A,cr} - Q_{A,surf} - Q_{A,w} + Q_{A,res} + Q_{D,A} \quad (2-45)$$

Dans ces équations, h_D et h_A désignent respectivement les sommes des hauteurs des différents oxydes et des différents métaux;

H_D et H_A sont les enthalpies des oxydes et des métaux ;

$H_{D,ab}$ et $H_{A,ab}$ sont les enthalpies apportées par l'ablation d'une paroi d'oxydes ou de métaux ;

$H_{D,cr}$ et $H_{A,cr}$ sont les enthalpies liées à la formation de croûtes des oxydes et des métaux ;

les masses volumiques ρ_D et ρ_A sont les masses volumiques moyennes des oxydes et des métaux.

Les autres termes du second membre correspondent respectivement aux pertes d'énergie en surface ($Q_{D,surf}$) et au contact du substrat ($Q_{D,w}$), à l'apport d'énergie par la puissance résiduelle ($Q_{D,res}$) et au transfert de chaleur à l'interface entre oxydes et métaux ($Q_{D,A}$).

A partir des modèles physiques, la discrétisation spatiale des équations est effectuée par une méthode classique de volumes finis et la discrétisation temporelle utilise une méthode semi-implicite pour les phases liquides et une méthode totalement implicite pour la conduction dans les solides (Eberlé, 1997). Le pas de temps est limité par la condition de Courant, et par les variations de flux de chaleur dans les croûtes et le substrat, ce qui permet de modéliser le choc thermique au contact corium-substrat..

L'évolution de l'épaisseur de la croûte est obtenue en résolvant l'équation de la conduction thermique dans la croûte avec le bilan d'énergie aux interfaces (contacts avec le substrat et le bain pour la croûte inférieure ; contact avec le bain et rayonnement ou convection avec l'environnement pour la croûte supérieure) selon l'approche itérative proposée par Savino & Siegel (1968).

Un module tridimensionnel spécifique est dédié à la résolution de l'équation de la chaleur dans le substrat. Il nécessite un maillage fin du substrat à proximité de son interface avec le corium, car le gradient de température y est élevé. Le logiciel prévoit la prise en compte d'une résistance thermique de contact à l'interface. Les équations sont résolues à l'aide de la méthode classique des directions alternées.

Les échanges de chaleur entre le bain fondu et les croûtes sont pris en compte par des corrélations classiques de convection forcée. Pour des écoulements laminaires, le nombre de Nusselt vaut 7,6 (cas de l'écoulement dans un canal rectangulaire avec parois isothermes), tandis que, pour les écoulements turbulents, on considère la corrélation classique de Colburn (Taine & Petit, 1989) :

$$\text{Nu} = 0,023 \text{Re}^{0,8} \text{Pr}^{0,4} \quad (2-46)$$

Par contre, pour les écoulements métalliques, THEMA utilise la corrélation de Duchatelle & Vautrey (1964) donnant $\text{Nu} = 6$ pour les écoulements laminaires et

$$\text{Nu} = 5,14 + 0,0127 \text{Re}^{0,8} \text{Pr}^{0,8} \quad (2-46b)$$

pour les écoulements turbulents.

Ces lois supposent que les propriétés physiques du fluide sont homogènes et que l'écoulement est pleinement développé, bien que l'étalement soit limité dans l'espace et dans le temps. Néanmoins, Spindler et al. (1999) ont montré que, dans la majorité des configurations d'intérêt, la couche limite atteignait l'épaisseur de la coulée après une distance d'une à deux fois l'épaisseur de la coulée, ce qui valide l'hypothèse d'écoulement pleinement développé. La tension de surface est prise en compte en arrêtant la progression de la coulée si l'épaisseur devient inférieure à l'épaisseur capillaire.

Dans THEMA, la solidification entraîne d'une part la formation de croûtes, d'autre part une augmentation de la viscosité, en fonction de la fraction volumique de solide, et donc de la température. L'effet des croûtes est la réduction de la hauteur du canal disponible pour l'écoulement, mais l'effet mécanique des croûtes au front n'est pas modélisé. Un des paramètres clé de la prise en compte de la solidification est la température choisie pour l'interface entre les croûtes et le bain. Elle est fixée par défaut à la température de solidus du mélange formant la coulée.

Le code THEMA a été validé initialement sur des solutions analytiques telles que l'écoulement suivant la rupture d'un barrage, la conduction dans le substrat suite à une température imposée en paroi ou la croissance de croûtes à l'interface avec une paroi froide (Spindler et al., 2006), puis sur les essais CORINE avec des simulants à basse température (Eberlé, 1997, Spindler et al., 1998, 2006b et §2.5.1), les essais KATS en simulants à haute température (Fieg et al. , 1996 ; Engel et al., 1999 ; Spengler et al., 2004 et §2.5.3), ainsi que sur les essais en matériaux prototypiques COMAS (§2.6.2), FARO (§2.6.3) et VULCANO qui seront décrits ci-après.

2.4.2.3 LAVA

Le code LAVA (Allelein et al. , 2000) a été développé par GRS pour la simulation de l'étalement de corium et de sa relocalisation dans l'enceinte. L'accent est mis sur la modélisation du refroidissement du fluide et de la façon dont la solidification partielle affecte la rhéologie du corium.

Ce code se place dans le cadre de l'approximation selon laquelle l'étalement est piloté par la gravité sur un plan incliné ou du fait de l'inclinaison de la surface libre de la coulée sur un plan horizontal. Le transport du corium est approché par la solution quasi-stationnaire des équations de la lubrification. Ici, la distribution de la coulée est exprimée par l'épaisseur $h(x,y)$ de la coulée. Les termes d'inertie dans les équations de Navier-Stokes sont négligés et on suppose que le corium est isotherme le long de toute section verticale. Le champ de pression est réduit à sa composante hydrostatique.

Au-dessus du liquidus, on considère une rhéologie Newtonienne, tandis que dans l'intervalle de solidification, le corium est décrit comme un fluide de Bingham. Ce modèle permet une description réaliste et efficace des contraintes de croûtes au front de coulée, mais présuppose une connaissance fine de la rhéologie du corium.

L'équation de continuité moyennée sur la hauteur d'une maille est résolue par un algorithme explicite. Bien que les équations de Navier-Stokes soient réduites à une formulation monodimensionnelle, l'étalement isotrope sur une surface bidimensionnelle est simulé à l'aide de l'algorithme d'automate cellulaire proposé par Miyamoto & Sasaki (1997) pour l'étalement de la lave.

Le rayonnement de la surface libre représente une contribution importante aux pertes thermiques du corium. Si la température de surface descend sous la température de formation d'une croûte, l'épaisseur de la croûte à la surface supérieure est calculée par un modèle de conduction transitoire prenant en compte le relâchement de chaleur latente à la solidification (problème de Stefan). Les transferts de chaleur vers le substrat sont calculés à l'aide d'un modèle de conduction monodimensionnelle. Les échanges de chaleur entre le cœur de la coulée à chaque position (x,y) et les interfaces horizontales (telles que la croûte supérieure) sont déterminés par des corrélations de convection naturelle ou forcée.

Dans LAVA, la géométrie est définie par un maillage régulier bidimensionnel permettant de représenter la topographie du substrat. Les structures sont représentées par leur altitude, et leurs frontières sont spécifiées par des échelons d'altitude.

2.4.2.4 CROCO

Le code CROCO (Piar et al. , 1999 ; Vola et al., 2004) est un code de calcul bidimensionnel (avec un maillage selon des axes horizontaux et verticaux) développé par l'IPSN. Il modélise l'écoulement laminaire à surface libre d'un fluide incompressible, Newtonien ou non.

Les équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie sont moyennées entre les phases constitutives de la coulée :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \cdot \vec{u}) = 0 \quad (2-47)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho \cdot \vec{u}) + \nabla \cdot (\rho \cdot \vec{u} \cdot \vec{u}) = -\nabla p - \rho \cdot \vec{g} + \nabla \cdot \{ \rho \mathbf{v}^* (\nabla \vec{u} + \nabla \vec{u}^t) \} \quad (2-48)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho \cdot H) + \nabla \cdot (\rho \cdot H \cdot \vec{u}) = \nabla \cdot \{ K^* \nabla T \} \quad (2-49)$$

Le caractère multiphasique du fluide est pris en compte par une viscosité effective de mélange \mathbf{v}^* et un tenseur des conductivités thermiques effectives \mathbf{K}^* .

Les équations à résoudre sont traitées selon trois modalités différentes selon que les inconnues à déterminer sont la position de la surface libre, les champs de vitesse, pression et température dans le fluide ou le champ de température dans le substrat.

D'un point de vue numérique, le problème le plus difficile est la solution des équations non-linéaires couplées au niveau du front de coulée. De ce fait, les développeurs de ce code ont optimisé la stratégie numérique suivante (Vola et al., 2004):

- Utilisation d'une grille Eulérienne - indépendante de la surface libre - sur laquelle les inconnues sont discrétisées selon la méthode des éléments finis.
- La surface libre est décrite par un polygone de sommets indépendants du maillage de calcul, dont le mouvement est suivi par une description Lagrangienne.
- Les équations sont discrétisées en temps en séparant les termes convectifs et diffusifs de chaque opérateur. La solution des équations de convection (advection) pour le champ de vitesse donne une estimation de la nouvelle surface libre (et des autres inconnues) puis les termes de diffusion sont pris en compte à l'aide d'une méthode d'éléments finis dans le domaine fluide fixé à l'étape précédente.
- Une procédure spéciale (la méthode des degrés de liberté fictifs) a été mis au point pour les mailles coupées par la surface libre.

Ce code de calcul a été validé sur des cas analytiques et sur des expériences en matériaux simulants et prototypes.

2.4.2.5 CORFLOW

Le code CORFLOW (Wittmaack, 1997) a été conçu au Centre de Recherches de Karlsruhe (FZK) pour simuler un écoulement à surface libre avec transfert de chaleur et changement de phase. Il est applicable au corium à l'état liquide et solide ainsi qu'à d'autres fluides en cours de solidification.

Ses modèles physiques et ses algorithmes numériques simulent l'écoulement à surface libre d'un fluide homogène incompressible dans une géométrie tridimensionnelle. Le fluide est maillé horizontalement et verticalement. Il peut être recouvert d'air ou de tout autre fluide parfait isotherme. En plus du fluide, plusieurs matériaux de structure sont pris en compte comme obstacles hydrodynamiques ou contribuent aux transferts de chaleur et de masse. Après leur fusion éventuelle, les matériaux de structures sont considérés comme des fluides.

La mécanique des fluides est décrite par les équations de continuité et de quantité de mouvement avec l'approximation de Boussinesq : la dilatation thermique est négligée, de même que la turbulence. La condition aux limites de pression à la surface libre prend en compte les contraintes visqueuses et la tension de surface. La surface libre est représentée par une fonction hauteur. Son évolution est calculée en résolvant une équation résultant des conditions aux limites cinématiques à la surface libre et de l'intégration de l'équation de continuité selon la direction verticale.

L'hydrodynamique du fluide est couplée à la thermique et à la thermodynamique des transitions de phases par l'intermédiaire des propriétés physiques. Pour cette raison, on modélise les transferts de chaleur internes (par conduction et convection), la génération de chaleur (par radioactivité ou simulation électrique, et la chaleur due aux écoulements visqueux) ainsi que les échanges de chaleur avec l'extérieur. Dans les solides, on modélise les transferts conductifs, tandis que l'on considère les transferts convectifs et radiatifs à la surface libre. Les propriétés physiques (masse volumique, chaleur massique, conductivité thermique, coefficient de transfert de chaleur et paramètres rhéologiques – on peut modéliser des fluides newtoniens ou non : fluides de Bingham, pseudoplastiques, dilatants -) dépendent de la température, à l'exception de la tension de surface, mais ne varient pas dans le temps, ce qui exclu une modélisation prenant en compte la thixotropie.

Un modèle de discrétisation des transitions de phase est utilisé pour simuler la solidification et la fusion de fluides homogènes et les transitions de phase dans les matériaux de structure. On ne modélise pas dans CORFLOW de rhéologie complexe ni les mécanismes de stabilité des croûtes. Dans l'interface liquidus-solidus, on considère que la phase solide est dispersée dans la phase liquide. Le liquide s'immobilise du fait d'une augmentation importante de la fraction volumique de solide qui entraîne une augmentation de la viscosité du fluide.

Le code CORFLOW, qui regroupe les modèles ci-dessus, a été validé sur de nombreuses expériences comme les essais CORINE d'étalement d'eau, de glycérine et de Cerrotru® (Spindler et al., 1999) et les essais KATS (Fieg et al., 1996 ; Foit & Vesper, 1999) au cours duquel de l'aluminothermie a été étalée sur un substrat sec ainsi que certains essais VULCANO.

2.5 EXPERIMENTATIONS AVEC DES MATERIAUX SIMULANT LE CORIUM

2.5.1 Essais à basse température (BNL et CORINE)

Les premiers essais relatifs à l'étalement du corium ont été réalisés au Laboratoire National de Brookhaven (BNL) par Greene et al. (1988) en simulant le corium par du plomb fondu. Le four était incliné afin que quelques kilogrammes de plomb fondu se déversent au centre d'une section d'essai carrée en bois. L'objectif principal de cette étude était l'étalement sous eau, lié à certains scénarios dans les réacteurs à eau bouillante de type Mark I. L'analyse des 156 essais réalisés montre que l'épaisseur adimensionnée à la racine cubique du volume étalé h^* est reliée à la racine carré du nombre adimensionné :

$$N_{\text{étal}} = \frac{\left(\frac{M}{\rho}\right)^{1/3} [H_{\text{fusion}} + C_p (T_0 - T_{\text{fusion}})]}{h_{\text{eau}} \cdot [H_{\text{ébul}} + c_p (T_0 - T_{\text{ébul}})]} \quad (2-50)$$

par $h^* = 0,03 N_{\text{étal}}^{1/2}$ (2-51)

Dans la suite de ce mémoire, nous nous limiterons à l'étalement à sec, cas de référence pour le récupérateur EPR et non à l'étalement sous eau, étudié au BNL.

Les essais CORINE au CEA Grenoble (Eberlé, 1997 ; Spindler et al. , 1998, 2006b) ont permis de réaliser des expériences analytiques sur l'étalement à l'aide de matériaux à bas point de fusion : eau, glycérol et solutions eau-glycérol, alliages métalliques à bas point de fusion (eutectique bismuth-étain – Cerrotru -, eutectique ternaire de sels fondus « Hitec », alliages bismuth-étain-plomb-cadmium de compositions eutectique ou non, mélanges eau – hydroxyléthylcellulose). Chaque campagne d'essais CORINE était dédiée à l'étude d'un des phénomènes clés de l'étalement : l'hydraulique pure, la croûte inférieure, la croûte supérieure, le type de solidification, le bullage de gaz,... en ayant une bonne précision sur les conditions initiales et aux limites ainsi que sur les propriétés physiques des matériaux.

Cette installation est constituée d'une plaque d'acier de 6,5 m de long en forme d'un secteur angulaire de 19° sur laquelle on déverse le fluide à des débits compris entre 0,5 et 3 L/s.



Figure 2-4 : Coulée d'un alliage métallique dans la veine d'étalement CORINE. Noter les capteurs de niveau, au-dessus du plan d'étalement.

En plus de permettre une très bonne instrumentation des essais, l'utilisation de simulants à température proche de l'ambiance permet d'effectuer des essais purement hydrodynamiques, sans refroidissement ni solidification, et des essais pour lesquels le refroidissement ne s'effectue que vers le haut ou vers le bas. Ces essais ont mis en évidence les différences de comportement entre matériaux à solidification congruente (corps purs ou eutectiques) et matériaux pour lequel l'intervalle solidus-liquidus est significatif : la solidification progressive de ces matériaux leur permet de mieux s'étaler que les matériaux à solidification congruente pour lesquels se forment rapidement des croûtes solides.

Pour étudier l'effet du bullage dû à la dégradation du béton, une campagne d'essai a eu lieu sur un substrat poreux à travers lequel on injectait du gaz (Veteau et al., 2003 ; Spindler et Veteau, 2006). L'effet du bullage sur l'étalement dépend de la viscosité du fluide s'étalant : Pour des liquides très visqueux (solution d'hydroxyléthylcellulose à 2 Pa.s), la vitesse de progression du front de coulée décroît quand la vitesse superficielle de gaz croît, tandis qu'elle croît pour de l'eau (1 mPa.s). L'effet du bullage est très faible pour une viscosité intermédiaire (solution diluée d'hydroxyléthylcellulose – 0,1 Pa.s). Ce comportement est bien modélisé dans le code THEMA.

2.5.2 Essais à température intermédiaire (S3E)

Les essais à température élevée avec des oxydes fondus peuvent remonter à l'expérience de Hall (1805) qui a fait fondre de la poudre de basalte dans une forge, afin de prouver la nature ignée de cette roche.

Les essais S3E (*Scaled Simulant Spreading Experiment*) ont été réalisés à l'Ecole Polytechnique Royale de Stockholm (Dinh et al., 1999) pour étudier l'étalement de fluides. Après des essais à basse température en eau, en huile de paraffine, en alliage à bas point de fusion (Cerrobend) et en sel fondu ($\text{NaNO}_3 - \text{KNO}_3$, autour de 200-300°C), des essais autour de 1100-1200°C ont été réalisés en coulant un mélange d'oxydes fondus (30% CaO – 70% B_2O_3) dans des canaux rectangulaires (Figure 2-5).

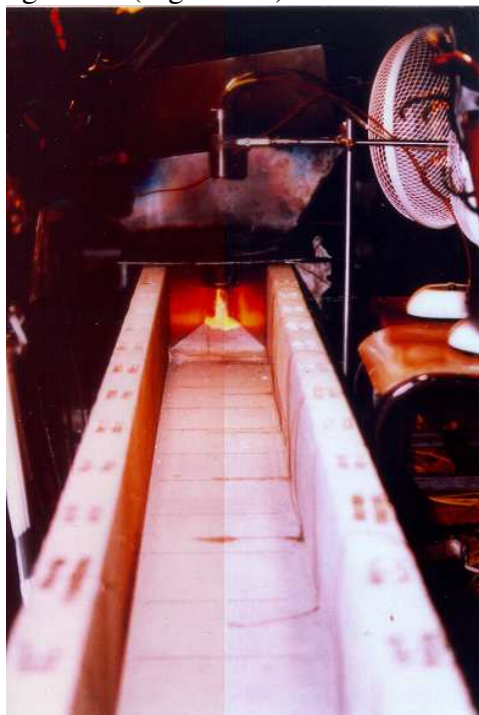


Figure 2-5 : Coulée d'oxydes (30%BaO 70% B_2O_3) dans l'installation S3E

L'influence d'un substrat en béton sur l'étalement a été étudié par deux coulées de caractéristiques identiques sur de l'acier et du béton. La vapeur d'eau issue de la vaporisation

de l'eau libre et liée, et le monoxyde de carbone issu de la décarbonatation du CaCO_3 ont entraîné un bullage violent dans la coulée. Néanmoins, les longueurs d'étalement sont pratiquement égales sur les deux substrats. Dinh et al. (1998) en ont déduit que l'arrêt de la coulée est principalement contrôlé par les phénomènes de solidification du front de coulée et non pas par les processus se déroulant en amont du front.

L'autre résultat important de ces essais en oxydes a été que la surchauffe (définie par rapport à la température de liquidus) n'avait pas un effet aussi important sur la longueur d'étalement qu'on l'imaginait : en effet, il convient de définir la surchauffe par rapport à la température d'immobilisation effective et non par rapport au liquidus, ce qui rajoute généralement plusieurs centaines de degrés et favorise l'étalement.

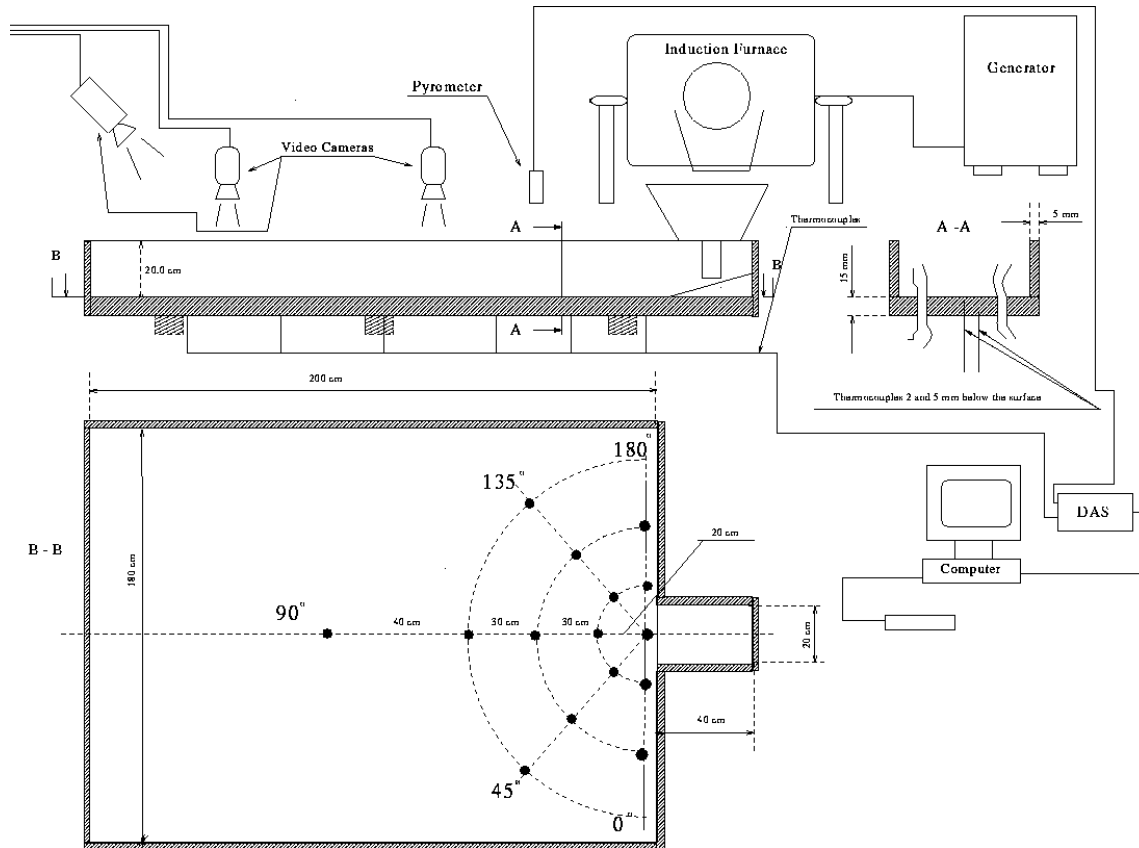


Figure 2-6 : Essais S3E : Section d'essai d'étalement 2D.

Une seconde série d'essais (Konovalikhin et al., 1999) a permis d'étudier l'étalement sur une grande surface bidimensionnelle (Figure 2-6). Les essais en sel fondu et en oxydes autour de 1100°C ont permis de montrer que l'étalement sur une surface ouverte était plus efficace que dans un canal. La coulée s'étalant dans toutes les directions, le temps d'étalement hydrodynamique est fortement réduit, ce qui améliore l'efficacité de l'étalement car le temps de solidification est identique à ce qui se passerait dans un canal.

Certains essais ont eu lieu dans un liquide de refroidissement (eau ou huile). Lors de ces essais, Konovalikhin et al. (1999) ont observé la formation d'une couche poreuse en surface de fait de l'ébullition du fluide. Les échanges thermiques ont été plus rapides, ce qui a entraîné une efficacité moindre de l'étalement.

2.5.3 Essais à haute température (SPREAD et KATS)

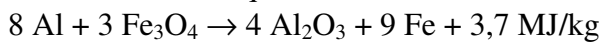
Dans les essais SPREAD (Suzuki et al., 1993), la coulée était constituée d'acier chauffé autour de 2000 K par induction. 25 essais ont été réalisés avec des masses allant de 7,5 à

115 kg coulées vers un substrat en béton. Lors d'étalements à sec dans un canal monodimensionnel, la fraction solide à l'immobilisation a été estimée à 50-60%. Le flux de chaleur vers le substrat en béton a été estimé par conduction inverse à des valeurs supérieures à 1 MW/m², soit plusieurs fois plus que le flux rayonné vers le haut.

Lors d'essais d'étalement sous eau, le coefficient d'échange entre le bain d'acier et l'eau a été estimé à 520 W.m⁻².K⁻¹ soit plus que pour de l'ébullition en film. Cette augmentation est attribuée aux instabilités de l'interface coulée-eau du fait du bullage des gaz de décomposition du béton. Globalement, la présence d'eau a entraîné une diminution d'un facteur 2 de la longueur d'étalement.

Ces essais ont servi à la validation du module d'étalement du code accident grave SAMSON (Hidaka et al., 2002).

Dans les essais KATS (Fieg et al., 1996 ; Engel et al. , 1999 ; Alsmeyer et al. , 2000 ; Spengler et al. , 2004), le matériau simulant à hautes températures est obtenu à l'aide de la réaction aluminothermique :



La Figure 2-7 présente par exemple le schéma de l'installation KATS, *Karlsruhe Thermite Spreading* : Un mélange d'alumine et de fer fondus est obtenu par réaction thermitique dans un creuset et est versé dans un réservoir de décantation. Ceci permet de réaliser en parallèle soit des étalements d'oxyde et de métal soit des essais d'étalement d'un mélange de ces deux phases (Alsmeyer et al. , 2004). Un des avantages de ce moyen de chauffage est qu'il permet d'atteindre de grandes masses pouvant dépasser trois tonnes. Les coulées présentent généralement une surchauffe significative au début de la coulée du fait du procédé de chauffage.

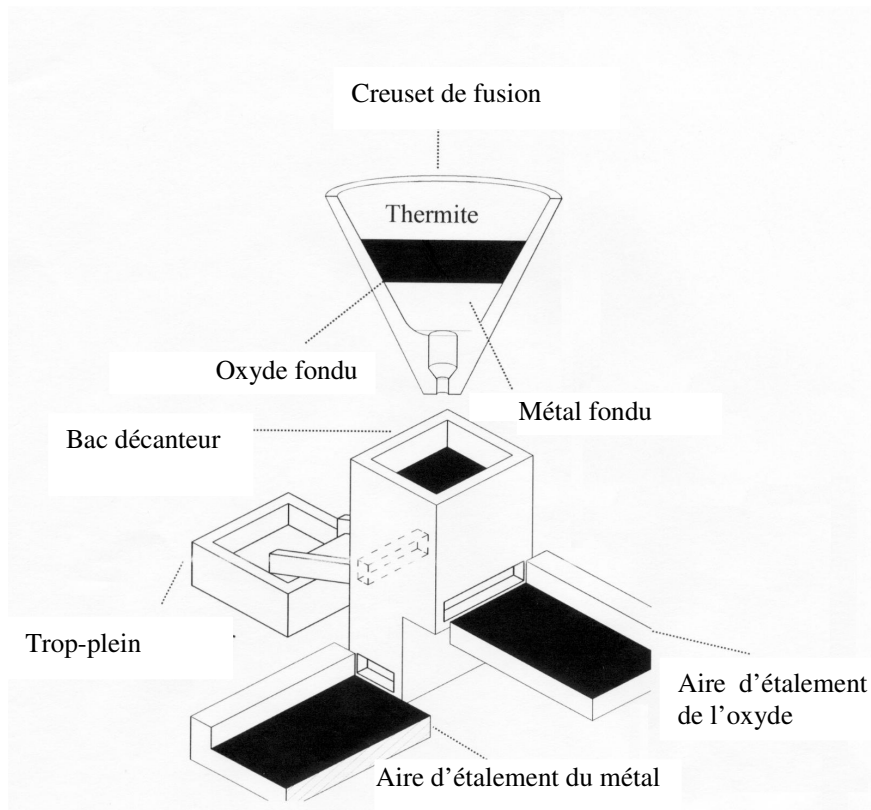


Figure 2-7 : Schéma du dispositif pour les essais KATS

Les veines d'étalement étaient soit en céramique, soit en béton. Dans ce dernier cas, on a observé une diminution de l'ordre de 30% de la longueur d'étalement par rapport à un essai réalisé sur une céramique, avec des conditions initiales voisines. Comme lors des essais CORINE, on doit considérer le fait que l'effet du bullage va dépendre de la viscosité du fluide s'étalant. Dans ce cas pour lequel on a une viscosité faible de l'alumine, le bullage va contribuer à ralentir la progression du front. Cet effet a été retrouvé quantitativement par Spindler & Veteau (2006) lors du recalcul de cet étalement à l'aide de THEMA.

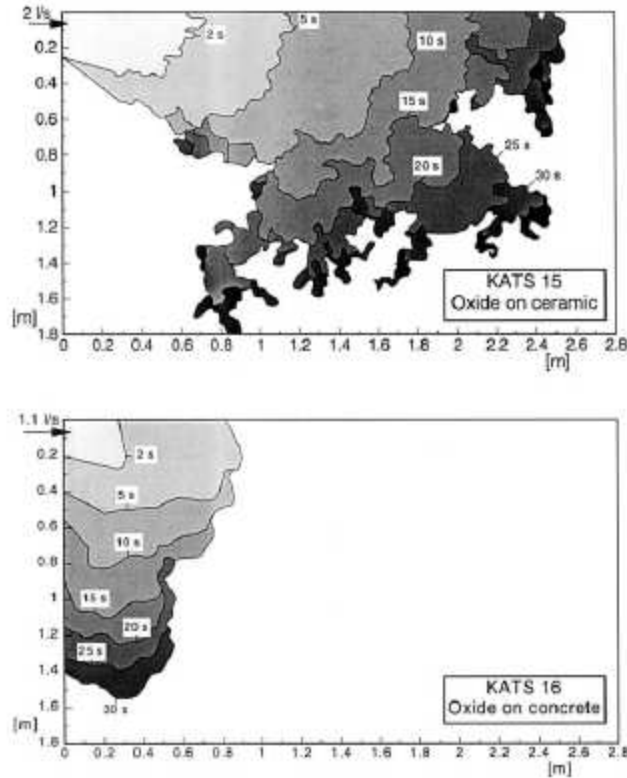


Figure 2-8 : Comparaison entre un étalement à 2 L/s sur de la céramique et à 1,1L/s sur du béton lors d'essais KATS (d'après Alsmeyer et al. , 2000)

Enfin, un essai (ECOKATS-1) avec 550 kg d'alumine, mélangée à des oxydes de fer, silicium et calcium, simulant les produits de décomposition du béton sacrificiel EPR, a permis une validation à grande échelle des codes de calcul d'étalement (Spengler et al. , 2004)

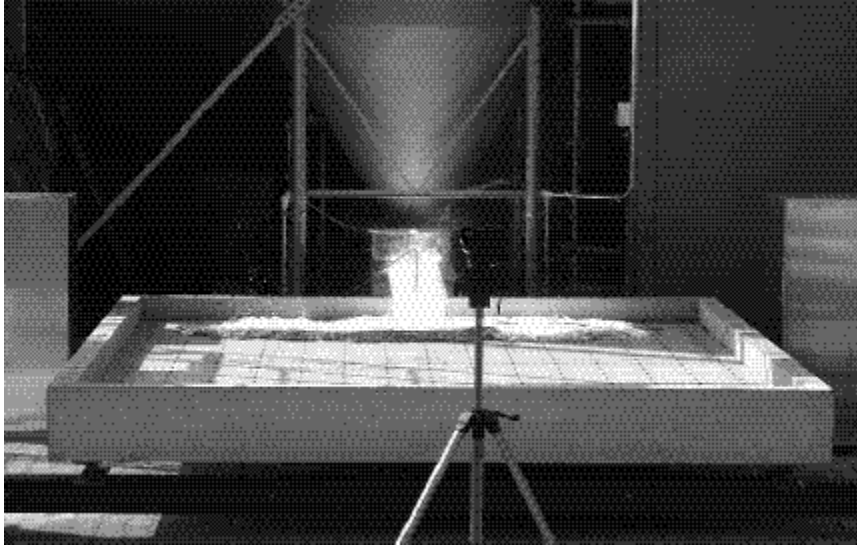


Figure 2-9 : Début de l'étalement de thermité sur la veine ECOKATS-1 (Spengler et al. , 2004)

L'essai de démonstration ECOKATS-2 (Alsmeyer et al. , 2004) a conduit à faire étaler 3200 kg d'un mélange oxyde ($43\% \text{Al}_2\text{O}_3$, $24\% \text{FeO}$, $19\% \text{CaO}$, $16\% \text{SiO}_2$), fer dans une veine de 2 x 2 m. Après la fin de l'étalement, la coulée à été recouverte d'eau provenant d'une des extrémités.

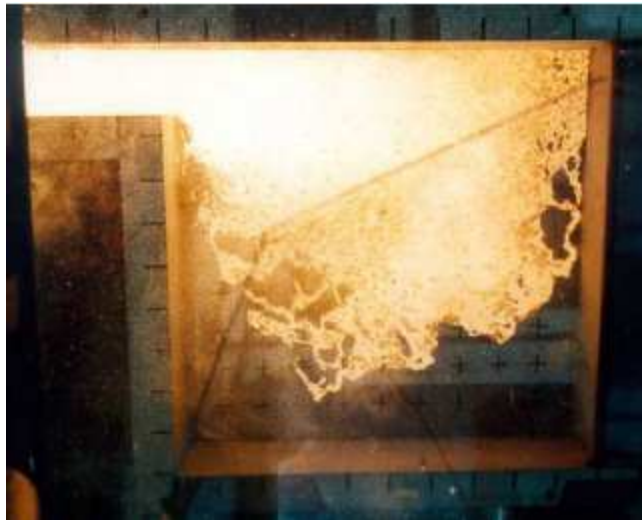


Figure 2-10 : Essai ECOKATS-2, 7,4 s après le début de l'étalement (Alsmeyer et al., 2004)

2.5.4 Récapitulation

Le Tableau 2-2 regroupe les caractéristiques principales des expériences décrites ci-dessus :

Programme	Laboratoire	Matériau	Echelle (volume coulé)	Géométrie	Paramètres
CORINE	CEA Grenoble	Simulants basses températures (eau, glycérol, alliages métalliques à bas point de fusion)	~50 litres	Secteur angulaire 19°	Débit (0,5-3 L/s) Matériau (viscosité, corps pur- mélanges non eutectiques) Refroidissement par le haut ou le bas Effet des bulles
Greene et al.	BNL, USA	Plomb	~litre	Section carrée	Masse Surchauffe Hauteur d'eau
S3E	KTH (Suède)	Simulants à températures basses et intermédiaires (1200°C)	5-20 litres	Canaux rectangulaires	Débit Surchauffe Matériau Substrat (effet du béton) A sec/ dans un liquide avec ou sans ébullition
SPREAD	Hitachi Energy Res. Lab., Japon	acier	1-15 litres	Canal rectangulaire Demi-disque	Masse étalée Surchauffe Débit Géométrie de l'entrée Substrat Hauteur d'eau
KATS	FZK, Allemagne	Thermite d'aluminium (Al ₂ O ₃ + Fe) vers 2000°C	Jusqu'à 850 litres	Canal rectangulaire Quart de plan	Masse étalée Débit Substrat Effet d'adjonction Phase(s) étalée(s) Renoyage

Tableau 2-2 : Principaux programmes d'essais d'étalement du corium utilisant des matériaux simulants

2.6 EXPERIMENTATIONS A HAUTE TEMPERATURE AVEC MATERIAUX PROTOTYPIQUES

Malgré tout le soin mis à simuler du corium, il n'est pas possible de trouver de simulant du dioxyde d'uranium permettant d'en simuler toutes les propriétés. De ce fait, il est indispensable de réaliser des essais en matériaux prototypes pour, d'une part garantir que la phénoménologie du corium est bien prise en compte par des modèles et d'autre part pour valider ces modèles et les codes de calcul qui en sont tirés sur des essais se rapprochant, au moins par les aspects matériaux, du cas réacteur.

Compte tenu des spécificités du corium (températures entre 2000 et 3500 K, présence de plusieurs phases, agressivité physico-chimique, puissance résiduelle interne, présence de matière nucléaire dans le bain, ...), la réalisation d'essais en matériaux prototypes a nécessité de relever certains défis technologiques tels que la maîtrise de la fusion et de la coulée du corium, le choix des matériaux devant être en contact avec le bain et d'une instrumentation adaptée. Par contre, il n'est pas nécessaire de simuler la puissance résiduelle lors d'essais d'étalement car l'échelle de temps qui la caractérise est environ 10 fois celle de l'étalement.

Dans un premier temps, nous allons présenter en détail les raisons pour lesquelles l'usage de corium prototypique est indispensable à l'étude des accidents graves.

2.6.1 Importance des essais en matériaux prototypes

On appelle matériaux prototypes des matériaux ayant la même composition chimique que le corium, mais une composition isotopique différente. En pratique, on remplace l'uranium enrichi du combustible nucléaire par de l'uranium appauvri. Piluso et al. (2001) ont synthétisé les principales propriétés de l'uranium et de ses oxydes par rapport à ses simulants potentiels :

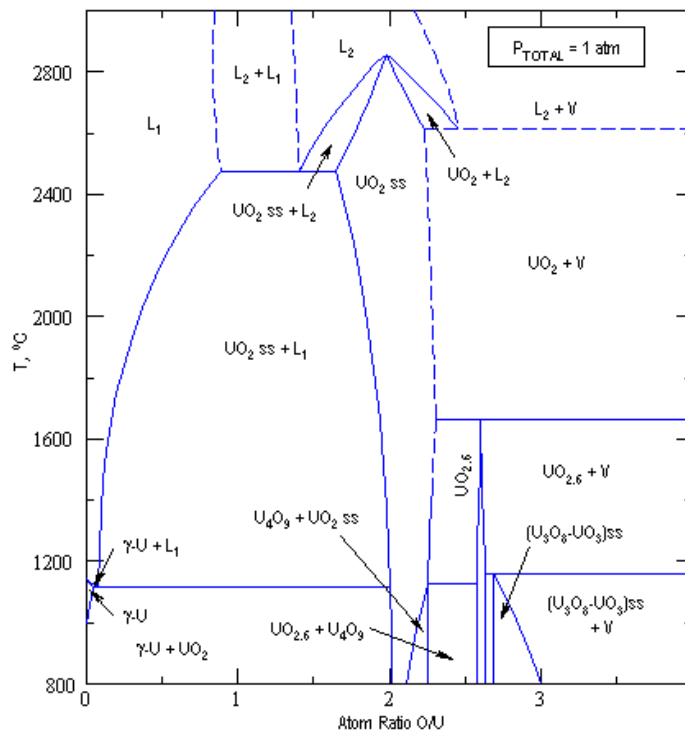


Figure 2-11 : Diagramme de phase uranium-oxygène, d'après Levinskii (1974)

- L'uranium a 5 états d'oxydation possibles : 0, +3, +4, +5, +6, tandis que ses simulants classiques (Al, Zr, Hf, Ce) n'en ont au plus que quatre ;
- Le système uranium-oxygène est très complexe (Levinskii, 1974, Chevalier & Fischer, 1998, Guéneau et al., 1998 ; Labroche, 2000, Baïchi, 2001, Chevalier et al., 2004) et présente de nombreux oxydes solides: $UO_{2\pm x}$, U_4O_9 , U_3O_8 , UO_3 ,...
- Il existe quatre formes gazeuses dans le diagramme uranium-oxygène : U, UO, UO_2 , UO_3 (Labroche, 2000). Les tensions de vapeurs d'oxydes d'uraniumⁱ sont significativement plus importantes que pour les autres oxydes réfractaires d'aluminium, de zirconium ou de hafnium.
- La densité du dioxyde d'uranium - 10,96 à l'ambiante selon Fink & Pietri (1997) – est significativement plus élevée que celle des autres oxydes réfractaires : 9,68 pour la hafnie, 7,10 pour la cérianite (CeO_2), 5,68 pour la zirconite, 3,99 pour l'alumine.
- Il existe une lacune de miscibilité (Guéneau et al. , 1988, Chevalier et al. , 2004) dans les systèmes (U,O), (U,O, Zr) et (U, O, Zr, Fe) qui ne peut pas être simulée de façon satisfaisante avec un autre élément.

Tous ces arguments nous ont amenés à privilégier la réalisation d'essais en matériaux prototypiques malgré les contraintes pratiques liées à la radioprotection et à la gestion des matières nucléaires. Pour étudier l'étalement du corium, des essais en matériaux prototypiques ont été réalisés en Allemagne chez Siempelkamp ainsi qu'au Centre Commun de Recherches d'Ispira.

2.6.2 Essais COMAS

Le programme expérimental COMAS, *Corium on Material Surfaces* (Sappok & Steinwarz, 1999 ; Steinwarz et al. , 1999, 2001), s'est déroulé dans la fonderie Siempelkamp à Krefeld (Allemagne). Jusqu'à 2 tonnes de corium prototypique étaient fondues dans le four à induction CARLA (*Centrale Anlage zur Rezyklierung Leichtaktiver Abfalle*) dédié principalement à la fusion de déchets radioactifs métalliques.

Les compositions typiques de ces essais sont indiquées dans le Tableau 2-3. Elles correspondent à un rapport oxyde-métal de 60-40 %_{masse}. Une quantité importante d'acier oxydé a été prise en compte dans le corium afin de réduire la température de liquidus. Le corium R' correspond à l'ajout de 10% de silice à la phase oxyde pour simuler le béton.

	Corium R	Corium R'
UO_{2+x}	29 %	26,1 %
ZrO_2	12 %	10,8 %
FeO	18 %	16,2 %
Cr_2O_3	2 %	1,8 %
SiO_2		6,1 %
Fe	39 %	39 %
Température liquidus	~1950°C	~1900°C
Température solidus	~1325°C	~1170°C

Tableau 2-3 : Compositions massiques des deux coriums coulés lors des essais COMAS

Le corium a été étalé, soit sur des canaux monodimensionnels soit sur des surfaces bidimensionnelles pour de l'étalement 2D non guidé sur une surface de 15 m² (soit 1 :11 de la surface de l'aire d'étalement EPR).

ⁱ L'espèce gazeuse en équilibre avec du dioxyde d'uranium solide ou liquide est principalement de l'UO ou de l'UO₃, selon la stoechiométrie en oxygène.



Figure 2-12: Essai COMAS EU-2B d'étalement sur trois substrats différents.

La réalisation d'essais sur trois canaux de 8m de long - en béton, en fonte et en céramique – (Figure 2-12) a montré que la longueur d'étalement dépendait peu du substrat, mais était surtout régie par le débit d'entrée, la température initiale et pour les double phases, le rapport entre oxydes et métaux.

Dans le cadre du projet européen HTCM (*investigations on Heat Transfer phenomena in prototypic Corium Melt pools*), les flux de chaleur ont été mesurés à l'aide d'une sonde spéciale dans le four CARLA (Ulbrich et al. , 1998). Ils décroissaient de 1000-1200 kW/m² à 200-300 kW/m², et les flux vers le haut étaient du même ordre que ceux vers le bas. Ces flux sont significativement plus élevés que ceux qui correspondent à la puissance résiduelle durant le temps de l'étalement, ce qui justifie a posteriori le fait de ne pas simuler la puissance résiduelle lors des essais d'étalement.

Ces essais d'étalement se sont surtout consacrés à de grands débits (plus de 150 kg/s) pour lesquels le régime inertiel est prépondérant. Ils ont permis la validation des codes de calcul dans ce régime.

2.6.3 Essais d'étalement FARO

L'installation FARO (Hohmann et al., 1986) était dédiée à la réalisation d'essais hors pile mettant en jeu de grandes masses d'oxyde d'uranium (de l'ordre de 200 kg de corium). Elle a surtout servi à l'étude de l'interaction corium-eau. Deux essais d'étalement ont eu lieu dans FARO (Tromm et al. , 2000 ; Cagnet et al. , 2001).

Lors du premier essai (L26S), 160 kg d'un corium composé de 80%_{masse} de dioxyde d'uranium et de 20% de zircon ont été fondus dans le four FARO (fonctionnant sur le principe du chauffage électrique direct) et ont été versés, à une température initiale de 2950 ± 50 K, sur une veine d'étalement en acier installée dans la section d'essai SARCOFAGO.

Le débit d'entrée était de 16,5 kg/s, soit 2,1 L/s. La coulée de corium s'est étalée en une progression saccadée, caractérisée par 3 arrêts de la progression. Ces arrêts correspondent, sur la vidéo de la coulée, à la formation de croûtes au front. La reprise de l'écoulement se produit

lorsque cette croûte se brise. La coulée a atteint 1,10 m de long, correspondant à une hauteur moyenne de 70 mm. La porosité de la coulée était très faible (Figure 2-13).



Figure 2-13 : Coupe de la coulée de corium FARO L26-S (d'après Cognet et al. , 2001)

Lors d'une seconde coulée (L32S) dans la même section d'essai, 100 kg de corium, à environ 3100 K ont été coulés sur la plaque d'acier qui avait été préalablement recouverte de 10 mm d'eau. L'effet de la présence d'eau a été limité : on a seulement observé une évaporation de l'eau à proximité du front de coulée, sans aucun phénomène énergétique violent, si ce n'est l'éjection de quelques kilogrammes de corium au niveau du front. Une croûte s'est formée au front et en surface. Cette croûte s'est brisée par endroits permettant de voir le cœur, plus chaud de la coulée, comme sur les images thermographiques de la Figure 2-14.

Alors que le débit d'entrée était légèrement supérieur à celui de l'essai L26-S (2,3 L/s au lieu de 2,1 L/s) la longueur finale d'étalement a été un peu plus faible : 80 cm. Du fait de la masse un peu plus faible de la coulée, la hauteur moyenne était du même ordre (6 cm au lieu de 7 cm pour L26-S). Par contre, la coulée était relativement dissymétrique car, après un arrêt de la progression, seule une langue, couvrant environ la moitié de la largeur de la veine, a repris la progression.

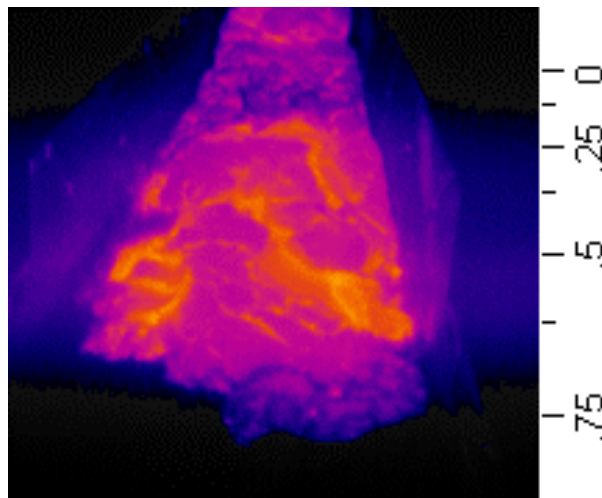


Figure 2-14 : Thermographie de l'étalement lors de l'essai FARO L32S

2.6.4 Récapitulation

Le Tableau 2-4 liste les principales caractéristiques des programmes d'essais en matériaux prototypiques décrits ci-dessus.

Programme	Laboratoire	Matériau	Echelle (volume coulé)	Géométrie	Paramètres
COMAS	Siempelkamp, Allemagne	Mélanges corium-béton-fer Liquidus autour de 1900 °C	20-300 litres	Canaux rectangulaires Secteur angulaire 45°	Débits élevés (>150 kg/s) Effet de la silice Substrat (céramique/metal/ béton)
FARO	CCR Ispra, Commission Européenne	UO ₂ ZrO ₂ Liquidus vers 2700 °C	~20 litres	Secteur angulaire 19°	Présence ou non d'une fine couche d'eau Substrat métallique

Tableau 2-4 : Programmes d'essais d'étalement de corium prototypique

REFERENCES DU CHAPITRE 2 :

- Allelein H.-J., Breest A., Spengler C., 2000, Simulation of core melt spreading with LAVA: Theoretical background and Status of Validation, *Wiss. Ber. FZKA*, 6475, 189 – 200.
- Alsmeyer, H., Albrecht, G., Fieg, G., Stegmaier, U., Tromm, W., Werle, H., 2000, Controlling and cooling core melts outside the pressure vessel, *Nucl. Eng. Des.*, 202, 269-278.
- Alsmeyer, H., Cron, T., Messemer, G., Häfner, W., 2004. ECOKATS-2: a large scale experiment on melt spreading and subsequent cooling by top flooding, *Proc. ICAPP'04 (Int. Conf. Advances nucl. Power Plants)*, Pittsburgh, USA, Communication n° 4134
- Alsmeyer, H., Albrecht, G., Meyer, L., Häfner, W., Journeau, C., Fischer, M., Hellmann, S., Eddi, M., Allelein, H.-J., Bürger, M., Sehgal, B.R., Koch, M.K., Alkan, Z., Petrov, J.B., Gaune-Escart, M., Altstadt, E., Bandini, G., 2005, Ex-vessel core melt stabilization research (ECOSTAR), *Nucl. Eng. Des.*, 235, 271-284.
- Baïchi, M., 2001, *Contribution à l'étude du corium d'un réacteur nucléaire accidenté: aspects puissance résiduelle et thermodynamique des systèmes U-UO₂ et UO₂-ZrO₂*, Thèse de Doctorat de l'Université Joseph Fourier, Grenoble.
- Balmforth, N.J., Burbridge, A.S., Craster, R.V., Salzig, J., Shen, A., 2000, Visco-plastic model of isothermal lava domes, *J. Fluid Mech.*, 403, 37-65.
- Baloga, S., 1987, Lava flows as kinematic waves, *J. Geophys. Res.*, 92B, 9271-9279.
- Bercovici, D., 1994, A theoretical model of cooling viscous-gravity current with temperature dependant viscosity, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 1177-1180.
- Bercovici, D., Lin, J., 1996, A gravity current model of cooling mantle plume heads with temperature-dependant buoyancy and viscosity, *J. Geophys. Res.*, 101B, 3291-3309.
- Bunk, M.A., Ehrhard, P., King, J.R., 2001, Spreading Flows with Solidification-top crusting, *Interactive Dynamics of Convection and Solidification*, P. Ehrhard et al., eds, Kluwer Academ. Publ., Dordrecht, NL, pp. 155-164.
- Chung, M., Rangel, R.H., 2001, Parametric study of metal droplet deposition and solidification including contact resistance and undercooling effects, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 44, 605-618.
- Chevalier, P.Y., Fischer, E., 1998, Thermodynamic modelling of the O-U-Zr system, *J. Nucl. Mater.*, 257, 213-255.
- Chevalier, P.Y., Fischer, E., Cheynet, B., 2004, Progress in the thermodynamic modelling of the O-U-Zr ternary system, *Comp. Coupling Phase Diag. Thermochem. (CALPHAD)*, 28, 15-40.

- Cognet, G., Alsmeyer, A., Tromm, W., Magallon, D., Wittmaack, R., Sehgal, B.R., Widmann, W., De Cecco, L., Ocelli, R., Azarian, G., Pineau, D., Spindler, B., Fieg, G., Werle, H., Journeau, C., Cranga, M., Laffont, G., 2001, Corium spreading and coolability: CSC Project, *Nucl. Eng. Des.*, 209, 127-138.
- Crisp, J., Baloga, S., 1990, A model for lava flows with two thermal components, *J. Geophys. Res.*, 95B, 1255-1270.
- Delplanque, J.P., Rangel, R.H., 1998, A comparison of models, numerical simulation and experimental results in droplet deposition processes, *Acta Mater.*, 46, 4925-4933.
- Didden, N., Maxworthy, T., 1982, The viscous spreading of plane and axisymmetric gravity currents, *J. Fluid Mech.* 121, 27-42.
- Digruber, M., Schneider, W., Mörwald, K., Haas, S., 2000, Hydraulic analysis of free surface flows with solidification, *Arch. Appl. Mech.*, 70, 17-29.
- Dinh, T.N., Dong, W.G., Green, J.A., Nourgaliev, R.R., Sehgal, B.R., 1997, Melt attack of the reactor vessel wall: phenomena and prediction method, *Proc. 8th Int. Top. Mtg. Nucl. React. Thermal-Hydraulics*, Tokyo (30/9-4/10/1997), 2, 612-619.
- Dinh, T.N., Konovalikhin, M.J., Paladino, D., Green, J.A., Gubaidulin, A., Sehgal, B.R., 1998, Experimental Simulation of Core Melt Spreading on a LWR Containment Floor in a Severe Accident, *6th Int. Conf. Nucl. Eng. (ICONE-6)*, San Diego, Californie.
- Dinh, T.N., Konovalikhin, M.J., Paladino, D., Green, J.A., Gubaidulin, Sehgal, B.R., 1999, Experimental Simulation of Core Melt Spreading on a LWR Containment Floor in a Severe Accident, *Proc. 6th Int. Conf. Nucl. Eng. (ICONE6)*, San Diego, CA, USA, Mai 1999.
- Dinh, T.N., Konovalikhin, M.J., Sehgal, B.R., 2000, Core Melt Spreading on a reactor Containment Floor, *Progr. Nucl. Energ.*, 36, 4, 405-468.
- Dragoni, M., Bonafede, M, Boschi, E., 1986, Downslope flow models of a Bingham liquid : Implications for lava flows, *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, 30, 305-325.
- Dragoni, M., 1989, A dynamical model of lava flows cooling by radiation, *Bull. Volcanol.*, 51, 88-95.
- Duchatelle, L., Vautrey, J., 1964, Détermination des coefficients de convection d'un alliage en écoulement turbulent entre plaques parallèles, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 7, 1017-1031.
- Eberlé, P., 1997, *Modélisation physique et numérique de l'étalement d'un fluide avec solidification dans le cadre des études de sûreté pour les réacteurs à eau sous pression*, Thèse de doctorat de l'Université Joseph Fourier, Grenoble.
- Ehrhard, P., 1995, Spreading of melts in presence of solidification, *Int Conf Nucl. Eng. (ICONE3)*, 1B, 935-941.

- Engel, G., Fieg, G., Massier, H., Stiegmaier, U., Schütz, W., 1999, KATS experiments to simulate corium spreading in the EPR code catcher concept, *OECD Wkshp Ex-Vessel Debris Coolability*, Karlsruhe, Allemagne, 15-18/11/1998.
- Farmer, M.T., Sienicki, J.J., Chu, C.C., Spencer, B.W., 1993, *The MELTSPREAD-1 computer code for the analysis of transient spreading and cooling of high temperature melts*, Rapport EPRI TR-103413.
- Fedorchenko, A.I., Wang, A.-B., Wang, Y.-H., 2004, Effect of capillary and viscous forces on spreading of a liquid drop impinging on a solid surface, *Phys. Fluids*, 17, 093104.1-8.
- Fieg G., Huber F., Werle H., Wittmaack R., 1996, Simulation Experiments on the spreading behavior of molten core melts, *Proc. Nat. Heat Transfer Conf.*, Houston, Tx.
- Fink, J.H., Griffiths, R.W., Corrigan, D., 1989, Solidification and deformation of crust on viscous-gravity flows, 10th Australasian Fluid Mechanics Conf., Melbourne, 11-15/12/1989., 4-9-4.12.
- Fink, J.H., Griffiths, R.W., 1990, Radial spreading of viscous-gravity currents with solidifying crust, *J. Fluid Mech.*, 221, 485-509.
- Fink, J.H., Griffiths, R.W., 1992, A laboratory analog study of the surface morphology of lava flows extruded from point and line sources, *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, 54, 19-32.
- Fink, J.H., Bridges, N.T., 1995, Effects of eruption history and cooling rate of lava dome growth, *Bull. Volcanol.*, 57, 229-239.
- Fink, J. K., Pietri, M. C., 1997, *Thermophysical properties of uranium dioxide*, Argonne National Lab. Report ANL/RE-97/2.
- Foit J. J., Veser A., 1999, Similarity solutions, KATS experiments and CORFLOW results, *Wiss. Ber. FZKA* 6260.
- Foit, J.J., 2004, Spreading under variable viscosity and time-dependent boundary conditions: estimate of viscosity from spreading experiments, *Nucl. Eng. Des.*, 227, 239-253.
- Guéneau, C., Dauvois V., Pérodeaud, P., Gonella, C., Dugne, O., 1998, Liquid immiscibility in a (U,Zr,O) model corium, *J. Nucl. Mater.*, 254, 158-174.
- Greene, G.A., Finrock, C., Klages, J., Schwarz, C.E., Burton, S. B., 1988. Experimental Studies on Melt Spreading, Bubbling Heat Transfer and Coolant Layer Boiling. *Proc. 16th Water Reactor Safety Meeting*, NUREG/CP-0097, 341-358.
- Griffiths, R.W., Fink, J.H., 1992, The Morphology of Lava Flows in Planetary Environments: Predictions from Analog Experiments, *J. Geophys. Res.*, 97B, 19739-19748.
- Griffiths, R.W., Fink, J.H., 1993, Effects of surface cooling on the spreading of lava flows and domes, *J. Fluid Mech.*, 252, 667-702.
- Hall, J., 1805, Experiments on whinstone and lava, *Trans. R. Soc. Edin.*, 5, 43-76.
- Hallot, E., Sparks, R.S.J., 1995, Dynamical constraints on the emplacement of Venus lava domes, *Terra*, 1 (Suppl.1), 300.

- Hidaka, M., Sato, N., Ujita, H., 2002, Verification for Flow Analysis Capability of the Model of Three-Dimensional Natural Convection with Simultaneous Spreading, Melting and Solidification for Debris Coolability Analysis Module in the Severe Accident Analysis Code SAMSON, *J. Nucl. Sci. Tech.*, 39, 520-530.
- Hohmann, H., Magallon, D., Schins, H., Zeyen, R., Laval, H., Benuzzi, A., 1986, Contribution to FBR accident analysis: The JRC – Ispra FARO programme. *Proc. Int. Conf. On Fast Reactor Safety*, Guernesey, 12-16 Mai 1986, BNES, 2, 139-144.
- Hon, K., Kauahikaua, J., Denlinger, R., MacKay, K., 1994, Emplacement and inflation of pahoehoe sheet flows: Observation and measurements of active lava flows on Kilauea Volcano, Hawaii, *Geol. Soc. Am. Bull.*, 106, 351-370.
- Huppert, H.E., 1982, Flow and instability of a viscous current down a slope, *Nature*, 300, 427-429.
- Huppert, H.E., 1982b, The propagation of two-dimensional and axisymmetric viscous gravity currents over a rigid horizontal surface, *J. Fluid Mech.*, 121, 43-58.
- Huppert, H.E., 1982c, On lava dome growth, with application the 1979 lava extrusion of the Soufrière of St Vincent, *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, 14, 199-222.
- Konovalikhin, M.J., Dinh, T.N., Sehgal, B.R., 1999, Experimental simulation of Core Melt Spreading in Two Dimensions, *Proc. 7th Int. Conf. Nucl. Eng. (ICONE-7)*, San Francisco, CA, USA.
- Konovalikhin, M. J., 2001, *Investigation on Melt Spreading and Coolability in a LWR Severe Accident*, Thèse de Doctorat, Ecole Royale Polytechnique, Stockholm, Suède.
- Labroche, D., 2000, *Etude Thermodynamique du ternaire U Fe O*, Thèse de doctorat de l'Université Joseph Fourier, Grenoble
- Léger, L., Joanny, J.F., 1992, Liquid spreading, *Rep. Prog. Phys.*, 55, 431-486.
- Levinskii, Y.V., 1974, P vs. T Phase Diagram of the Uranium-oxygen System, *Atom. Ener.* 37, 1075-1076.
- Liu, K.F., Mei, C.C., 1989, Slow spreading of a sheet of Bingham fluid on an inclined plane, *J. Fluid Mech.*, 207, 505-529.
- Macedonio, G., Longo, A., 1999, Lava flow in a channel with a bifurcation, *Phys. Chem. Earth (A)*, 24, 953-956.
- Madejski, J., 1976, Solidification of droplets on a cold surface, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 19, 1009-1013.
- Merle, O., 1998, Internal strain within lava flows from analogue modelling, *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, 81, 189-206.
- Miyamoto, H., Sasaki, S., 1997, Simulating lava flows by an improved cellular automata method, *Comput. Geosci.*, 23, 283-292.

- Moody, F.J., 1989, First order analyses of molten corium heat transfer, *Proc. ANS Nat. Heat Transfer Conf.*, Philadelphie.
- Oron, A., Davis, S.H., Bankoff, S.G., 1997, Long scale evolution of thin liquid films, *Rev. Mod. Phys.*, 69, 931-980.
- Pattle, R.E., 1959, Diffusion from an instantaneous point source with a concentration-dependent coefficient, *Q. J. Mech. Appl. Math.* 12, 407-409.
- Perazzo, C.A., Gratton, J., 2004, Steady and Travelling flows of a power law liquid over an incline, *J. Non-Newtonian Fluid. Mech.*, 118, 57-64.
- Piar, B., Michel, B.D., Babik, F., Latché, J.-C., Guillard, G., Ruggierri, J.-M., 1999, CROCO : A Computer Code for Corium Spreading. *Proc. 9th International Topical Meeting on Nuclear Thermal Hydraulics (NURETH-9)*, San Francisco, Ca., USA.
- Piluso, P., Journeau, C., Cognet, G., Magallon, D., Seiler, J.M., 2001, Importance of prototypic corium experiments for Severe Accident Research, *Proc. 9th Int. Conf. Nuclear Eng. (ICONE-9)*, Nice, France.
- Pinkerton, H., Sparks, R.S.J., 1976, The 1975 sub-terminal lavas, Mount Etna: A case history of the formation of a compound lava field, *J. Volcanol. Geoth. Res.*, 1, 167-182.
- Pinkerton, H., Wilson, L., 1994, Factors controlling the lengths of channel-fed lava flows, *Bull. Volcanol.*, 56, 108-120.
- Sakimoto, S.E.H., Zuber, M.T., 1995, The spreading of variable viscosity axisymmetric radial gravity currents: application to the emplacement of Venusian 'pancake' domes, *J. Fluid Mech.*, 301, 65-77.
- Sappok, M., Steinwarz, M., 1999, Large-scale experiments on ex-vessel core melt behavior, *Nucl. Technol.*, 125, 363-370.
- Savino, J.M., Siegel, R., 1968, An analytical solution for solidification of a moving warm liquid onto an isothermal cold wall, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 12, 803-809.
- Shakeri, S., Chandra, S., 2002, Splashing of molten tin droplets on a rough steel surface, *Int. J. Heat Mass Transf.*, 45, 4561-4575.
- Shikhmurzaev, Yu. D., 1991, Spreading flow of a viscous liquid over a solid surface, *Sov. Phys. Dokl.*, 36, 749- 752.
- Sirringhaus, H., Kawase, T., Friend, R.H., Shimoda, T., Inbasekaran, M., Wu, W., Woo, E.P., 2000, High resolution inkjet printing of all-polymer transistor circuits, *Science*, 290, 2123-2126.
- Sivakumar, D., Nishiyama, H., 2004, Spreading and solidification of a molten metal droplet impinging on a heated surface, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 47, 4469-4478.
- Soule, S.A., Cashman, K.V., 2004, The mechanical properties of solidified polyethylene glycol 600, an analog for lava crust, *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, 129, 139-153.

- Spengler, C., Allelein, H.-J., Foit, J.-J., Alsmeyer, H., Spindler, B., Veteau, J.M., Artnik, J., Fischer, M., 2004, Blind benchmark calculations for melt spreading in the ECOSTAR project, *Proc. ICAPP '04 (Int. Conf. Advances in nuclear Power Plants)*, Pittsburg, PA, Communication n°4105.
- Spindler B., Veteau J.M, 1998, Status of the assessment of the spreading code THEMA against the CORINE experiments, *SARJ Mtg. (Mtg. Severe Accident Research held in Japan)*, Tokyo, Japon.
- Spindler, B., Veteau, J.M., Brayer, C., Cranga, M., De Cecco, L., Montanelli, P., Pineau, D., 1999, Assessment of THEMA code against spreading experiments, *OECD Wkshp Ex-Vessel Debris Coolability*, Karlsruhe, Allemagne, 15-18/11/1999.
- Spindler, B., Veteau, J.M., 2004, *Simulation of spreading with solidification: assessment synthesis of THEMA code*, Rapport CEA-R6053.
- Spindler, B., Veteau, J. M., 2006, The simulation of melt spreading with THEMA code. Part 1: Model, assessment strategy and assessment against analytical and numerical solutions, *Nucl. Eng. Des.*, 236, 415-424.
- Spindler, B., Veteau, J. M., 2006b, The simulation of melt spreading with THEMA code. Part 2: Assessment against spreading experiments, *Nucl. Eng. Des.*, 236, 425-441.
- Stasiuk, M.V., Jaupart, C., Sparks, R.S.J., 1993, Influence of cooling on lava-flow dynamics, *Geology*, 21, 335-338.
- Steinwarz, W., Häfner, W., Alkan, Z., Fischer, M., 1999, Großexperimente mit repräsentativer Kernschmelze in Hinblick auf die Beherrschung eines Kernschmelzunfalls, *Jahrestagung Kerntechnik*, 44, 436-441.
- Steinwarz, W., Alemberti, A., Häfner, W., Alkan, Z., Fischer, M., 2001, Investigations on the phenomenology of ex-vessel core melt behaviour, *Nucl. Eng. Des.*, 209, 139-146.
- Stevens, R., Poulidakos, D., 1991, Freeze coating of a moving substrate with a binary alloy, *Num. Heat Transf.*, 20A, 409-432.
- Suzuki, H., Matsumoto, T., Sakaki, I., Mitadera, T., Matsumoto, M., Zama, T., 1993, Fundamental experiment and analysis for melt spreading on concrete floor, *Proc. 2nd ASME/JSME Nucl. Eng. Conf.*, 1, 403-407.
- Taine, J., Petit, J.P., 1989, *Transferts Thermiques*, Dunod, Paris.
- Tromm, W., Foit, J. J., Magallon, D., 2000, Dry and wet spreading experiments with prototypic materials at the FARO facility and theoretical analysis, *Wiss. Ber. FZKA*, 6475,178-188.
- Ulbrich, A., Steinwarz, W., Geiss, M., 1998, COMAS- und HTCM-Experimente zum Wärmeübertragungsverhalten prototypischer Kernschmelzen, *Jahrestagung Kerntechnik*, 145-148.
- Veteau, J.M., Spindler, B., Daum, G., 2003, Modelling of two-phase friction from isothermal spreading experiments with gas fed from the bottom and application to spreading

accompanied by solidification, *10th Int. Topical Mtg Nucl. Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-10)*, Séoul, Corée.

Vola, D., Babik, F., Latché, J.-C., 2004, On a numerical strategy to compute gravity currents of non-Newtonian fluids, *J. Comput. Phys.*, 201, 397-420.

Wittmaack, R., 1997, CORFLOW: A code for the numerical simulation of free-surface flow, *Nucl. Technol.*, 116, 158-180.

Zhang, H., 1999, Theoretical analysis of spreading and solidification of molten droplet during thermal spray deposition, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 42, 2499-2508.

Chapitre 3 : Les essais VULCANO

Au CEA, l'étude en matériaux prototypiques de l'étalement du corium s'est effectuée à l'aide de l'installation VULCANO (Cognet et al. , 1999 ; Journeau et al. , 2003). Elle a permis de compléter les résultats provenant des expérimentations en matériaux simulants ainsi que des essais COMAS et FARO. Par rapport à ces deux installations de plus grande taille, l'installation VULCANO a permis de réaliser des essais avec un grand éventail de compositions du corium et en privilégiant les petits débits afin d'étudier plus précisément les régimes d'étalement contrôlés par la gravité et la viscosité. Dans ce chapitre, on va présenter le four de fusion du corium et les sections d'essais puis les principaux essais qui ont été réalisés en matériaux simulants à haute température et enfin en matériaux prototypiques.

3.1 DESCRIPTION DE L'INSTALLATION

3.1.1 Four de fusion

Pour réaliser des essais en matériaux prototypiques, on a conçu un four répondant aux spécifications suivantes :

- Capacité de fondre des mélanges d'oxydes de compositions variables (principalement UO_2 , ZrO_2 , SiO_2 , CaO , FeO_x), auquel pourront être ajoutés des métaux ; le liquidus de la charge sera compris entre 1700 et 2900°C ;
- Possibilité de fondre et de couler une masse de corium comprise entre 50 et 100 kg ;
- Débit de versement faible, entre 0,1 et 1 L/s ;
- Réalisation des essais en air, avec éventuellement un dégagement de vapeur.

Différentes technologies ont été passées en revue : chauffage direct par effet Joule, résistors radiants, faisceau d'électrons, réactions chimiques exothermiques, et arc plasma.

Le chauffage direct par effet Joule a été utilisé pour fondre et couler jusqu'à 176 kg de corium prototypique dans l'installation FARO (Hohmann et al. , 1986). Le principal inconvénient de cette technique est sa grande sensibilité à la composition de la charge (qui modifie la conductivité électrique), ce qui ne permet pas de varier la composition du corium en fonction du scénario à simuler.

Des résistances électriques (en tungstène ou en graphite) permettent d'atteindre 3000°C en atmosphère neutre ou réductrice. Par exemple, le four de l'installation KROTOS (Huhtiniemi et al. , 1997) permet de fondre quelques kilogrammes de corium à l'aide d'une résistance cylindrique en tungstène. Les principaux défauts de cette technique sont son faible rendement énergétique et la nécessité de fonctionner en atmosphère neutre ou réductrice.

Le chauffage par induction est une technique largement utilisée pour fondre du corium ou pour simuler la puissance résiduelle dans du corium déjà fondu. Chu et al. (1983) ont fondu, au Sandia National Laboratory jusqu'à 230 kg de corium à l'aide d'un suscepteur en graphite et d'un creuset chaud. De même Nagasaka et al. (1999) décrivent cette technique de creuset chaud utilisée dans l'installation LAVA au Kazakhstan, mais ce type de creuset nécessite comme précédemment une atmosphère réductrice ou neutre. Du corium peut être fondu en atmosphère oxydante dans un creuset froid (Petrov, 1983) ou isolant (Sapok & Steinwarz, 1999) mais il faut disposer d'une charge assez conductrice à la température ambiante pour initier la chauffe.

Des constituants du corium ont aussi été fondus par bombardement électronique dans l'installation ISABEL (Guéneau et al. , 1998) pour étudier la thermodynamique du corium. La taille du faisceau d'électrons limite la dimension du lingot de corium (à 33 cm² dans le cas de l'installation ISABEL) et une transposition à de grandes masses semble délicate. De plus l'obligation d'utiliser un vide secondaire rendrait délicate la phase de coulée.

Des réactions chimiques exothermiques sont utilisées pour produire des coulées d'alumine : sur l'installation KATS (Engel et al., 2000), l'alumino-thermie ($8 \text{ Al} + 3 \text{ Fe}_3\text{O}_4 \rightarrow 9 \text{ Fe} + 4 \text{ Al}_2\text{O}_3 + 3.7 \text{ MJ/kg}$) sert à produire des coulées d'environ 300 kg d'alumine et de fer. Des réactions telles que $3\text{U} + 2 \text{ MoO}_3 \rightarrow 3\text{UO}_2 + 2\text{Mo} + 1.9 \text{ MJ/kg}$ ont été utilisées (Bird & Millington, 1979) pour produire des bains de dioxyde d'uranium (après sédimentation du molybdène). Cette technique n'a pas été retenue pour les essais VULCANO-Etalement du fait des limitations sur les compositions du bain produit. Néanmoins des travaux sont en cours pour la mettre en oeuvre en complément du four actuel (Mwamba et al., 2006).

Le principe du chauffage par arc plasma a été retenu pour le four VULCANO, ce procédé ayant montré (Fulcheri, 1988) ses capacités à chauffer à hautes températures des charges tout en étant peu affecté par la composition des matériaux et de l'atmosphère. Un plasma est obtenu par ionisation d'un gaz entre deux électrodes. Bien qu'électriquement neutre, ce plasma est un bon conducteur électrique au sein duquel on peut créer un arc électrique. Cet arc chauffe la charge par rayonnement.

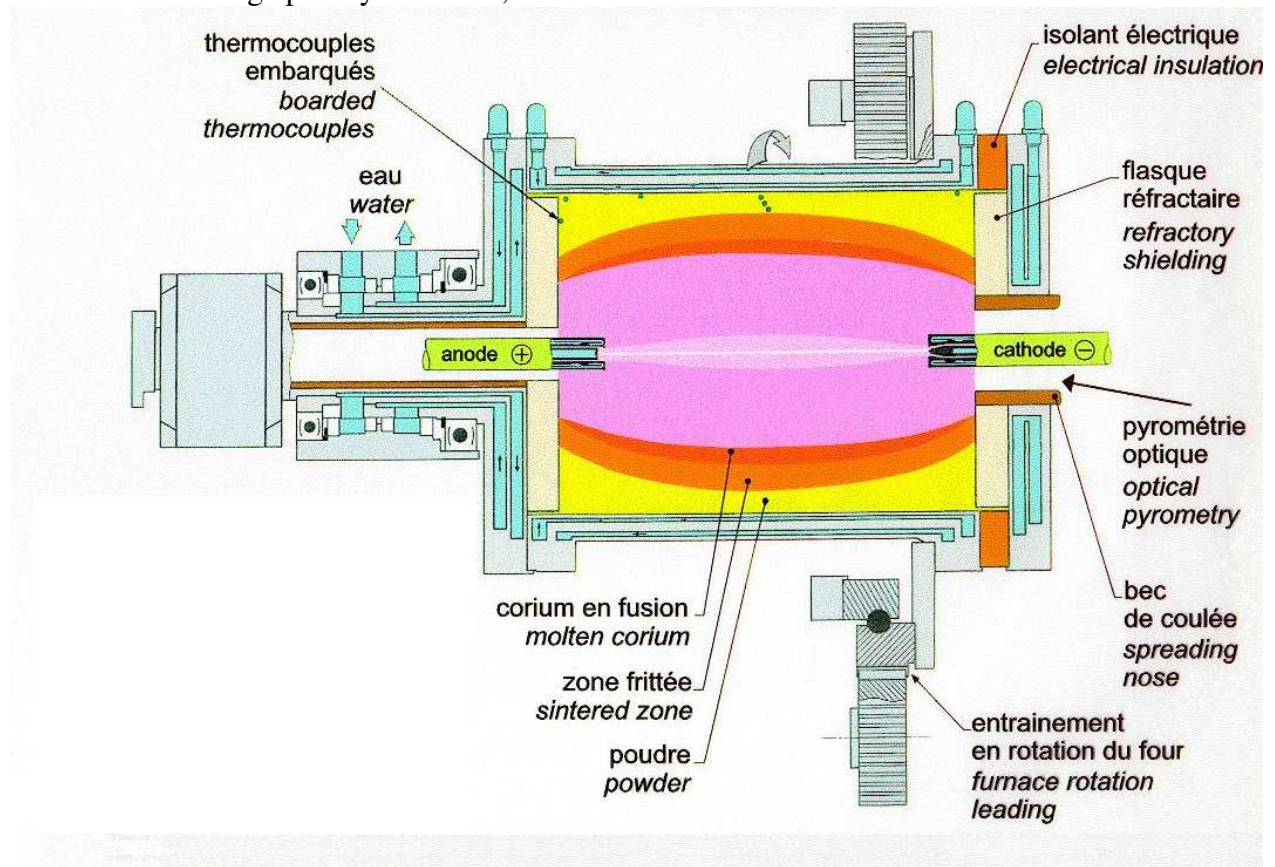


Figure 3-1 : Le four VULCANO.

L'arc plasma est réalisé entre deux torches (initialement il s'agissait de torches en cuivre refroidies à l'eau, puis on les a remplacées par des torches en graphite, moins fragiles) de polarités opposées. Le gaz plasmagène est constitué d'argon et/ou d'azote, auxquels s'ajoutent parfois des fumées de corium. Dans l'installation VULCANO, la tension est limitée à 300V et la puissance reste inférieure à 200 kW lors de nos essais.

Les mélanges à fondre sont introduits sous la forme de poudres dans le four cylindrique (400 mm de diamètre, 500 mm de long) et sont centrifugés à environ 200-250 tours/minute. Afin de protéger les parois métalliques du four, une première étape a pour but de réaliser un

auto-creuset à partir de poudre de zirconite partiellement stabilisée. La surface extérieure du four est refroidie par une circulation d'eau, alors que la surface interne de la charge est soumise au rayonnement de l'arc (à une température entre 10 000 et 20 000°C).

Les échanges de chaleur par rayonnement, par convection dans la couche fondue et par conduction dans les couches de matériau fritté et de poudre, permettent la fusion d'une partie de la charge. Le corium est ensuite chargé dans le four et fondu. En pratique, on réalise deux étapes successives de chargement et de fusion, pour compenser l'écart important de densité entre les poudres et le corium fondu.

La fusion est contrôlée par des pyromètres visant la surface du corium et des thermocouples embarqués. Quand une quantité satisfaisante de corium a été fondue, les électrodes sont écartées et le four est incliné afin de verser le bain dans la section d'essai. L'arc est maintenu durant cette phase pour limiter les pertes thermiques lors du versement.

3.1.2 Sections d'essais

Quatre configurations d'essais ont été utilisées jusqu'à présent dans l'installation VULCANO. Lors des essais VULCANO-E (Étalement), la section d'essai est une surface d'étalement, soit en briques réfractaires (zirconite ou magnésite), en acier ou en béton. Trois géométries ont été utilisées : une section carrée, un secteur angulaire de 19° (Figure 3-2) et deux secteurs angulaires de 9,5° en parallèle. Les contours de l'aire d'étalement sont matérialisés par des briques en céramique

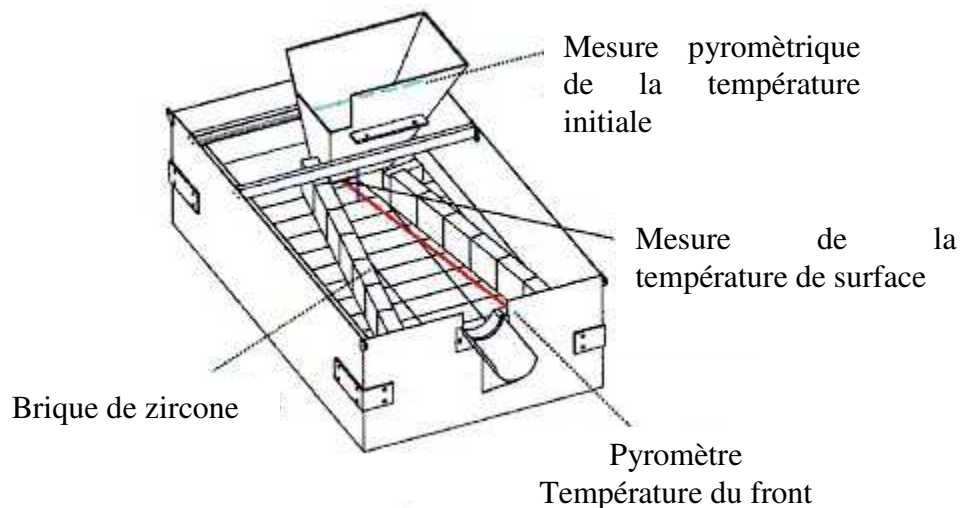


Figure 3-2 : Section d'essai d'étalement (secteur angulaire de 19°)

Dans la configuration VULCANO-P (Physicochimie), le corium est versé dans un creuset de zirconite entouré d'un inducteur solénoïdal permettant la réalisation d'essais de longue durée dédiés à l'étude du refroidissement lent du corium (Journeau et al., 2001). Lors des essais VULCANO-B (interaction corium-Béton), le corium est versé dans une cavité en béton et la puissance résiduelle est simulée par induction (Journeau et al., 2005). Finalement, pour la validation du concept COMET de récupérateur corium avec injection d'eau à partir du substrat (Tromm et al., 1995), on a utilisé une section d'essai fermée VULCANO-W (Water cooling), permettant la collecte de la vapeur formée lors du noyage du corium (Journeau & Alsmeyer, 2006).

3.1.3 Instrumentation

Une instrumentation dédiée aux essais d'étalement a été mise au point et installée dans la veine d'essai. Il s'agit de capteurs relativement classiques si ce n'est les adaptations qui ont

été rendues nécessaires par les hautes températures. En pratique, on a choisi principalement des mesures sans contacts afin de limiter les contraintes que subissent les dispositifs de mesure immergés dans le corium.

Le débit de coulée est mesurée à l'aide d'une balance sur laquelle est montée la section d'essai. La section d'essai pesant de l'ordre de 900 kg, la précision est de l'ordre de 0,5 kg.

Les températures de surface sont mesurées par pyrométrie bichromatique, afin de s'affranchir des incertitudes sur l'émissivité du corium, moyennant une hypothèse de corps gris. Une recherche bibliographique des émissivités spectrales des constituants du corium – UO_2 , ZrO_2 , ZrSiO_4 , Fe_2O_3 , Fe_2SiO_4 , Al_2O_3 – au-delà de 1000°C (Touloukian, 1967 ; Touloukian & de Witt, 1972 ; Sala, 1986) montre que le rapport des émissivités entre les longueurs d'ondes de $0,94$ et $1,02 \mu\text{m}$ utilisés par nos pyromètres, varie entre $0,93$ et $1,01$ ce qui correspond à une incertitude de l'ordre de $\pm 75^\circ\text{C}$ sur l'estimation de la mesure.

Une technique a été mise en place pour calibrer in-situ les images thermographiques à l'aide d'une mesure pyrométrique dont le point de visée est repéré sur l'image infrarouge (Cognet et al. , 1995). Une corrélation obtenue par ajustement au sens des moindres carrés permet de relier les niveaux de luminance (Figure 3-3) à la température mesurée et donc d'obtenir des cartes de température, tenant en compte simultanément du calibrage intrinsèque de la caméra et de l'émissivité du corium.

VE-U3 Thermographic cross-calibration

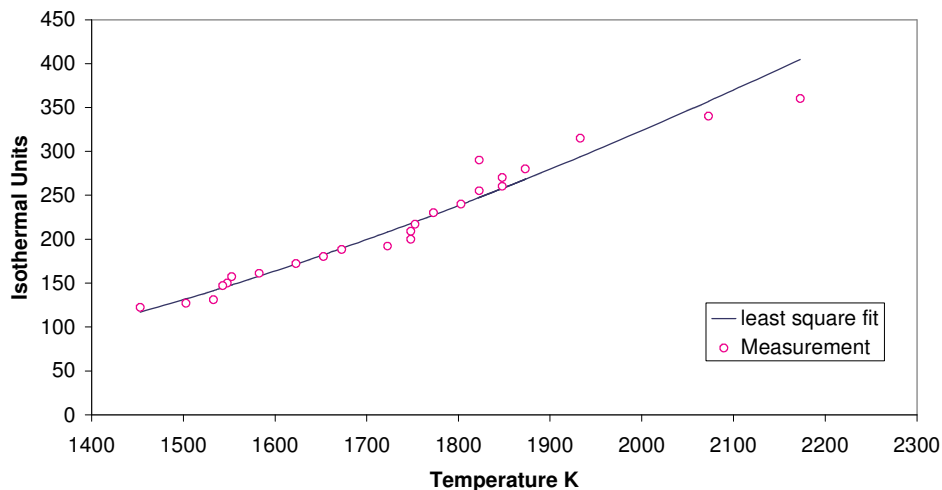


Figure 3-3 : Intercalibrage entre la thermographie infrarouge (niveaux de luminance exprimés en *unités isothermiques*) et la pyrométrie bichromatique.

Des thermocouples classiques, de type K, N, S, et en tungstène – rhénium, de types B ou C, permettent de mesurer la température dans le substrat et dans le corium. Il faut tenir compte du temps relativement long de mise en équilibre thermique des thermocouples plongés dans le corium, du fait de la formation d'une croûte isolante lors de la mise en contact avec le bain fondu (Journeau et al. , 1999).

On suit la progression de l'étalement et on mesure la vitesse de progression du front de coulée à l'aide de caméras pour lesquelles on a effectué un calibrage géométrique, ainsi que par la montée brutale en température des thermocouples positionnés à la surface de la veine d'étalement (Journeau et al. , 1998). Le calibrage géométrique s'effectue en positionnant un damier sur la veine et en corrélant les positions des pixels correspondant aux sommets des carreaux. La Figure 3-4, par exemple présente l'image de calibrage obtenue à l'air d'une caméra SONY XC999 munie d'un objectif grand angle (88°) qui a été installée dans un

caisson refroidi par air afin de pouvoir observer le corium, à moins de 10 cm d'une surface à plus de 1800°C.

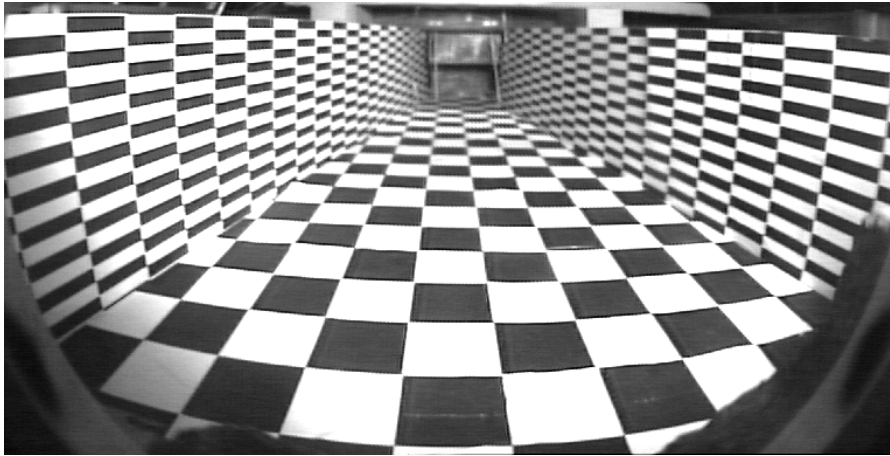


Figure 3-4 : Calibrage géométrique à l'aide de damiers.

3.2 ESSAIS EN SIMULANTS HAUTE TEMPERATURE

Du fait des contraintes pratiques et réglementaires liées à l'utilisation d'oxyde d'uranium naturel ou appauvri, on a réalisé des essais en matériaux simulants haute température avant d'utiliser des matériaux prototypiques. Ces essais serviront de référence pour quantifier « l'effet matériaux ». Les premiers essais ont été réalisés avec un mélange alumine-zircone permettant d'atteindre la gamme de températures souhaitée (1800-2000°C). Pour les suivants, on a utilisé la hafnie (HfO_2) comme simulant de l'uraninite (UO_2). Ce dioxyde a été choisi comme simulant du fait de sa densité élevée et de son haut point de fusion. Néanmoins les pseudo-binaires hafnie-zircone et uraninite-zircone ne sont pas équivalents (cf. Figure 3-5) : il y a un azéotrope vers 50 %_{mol} de zircone, entre UO_2 et ZrO_2 (Cohen & Schaner, 1963), alors que le pseudo-binaire HfO_2 - ZrO_2 ne présente pas de point singulier (Ruh et al. , 1968).

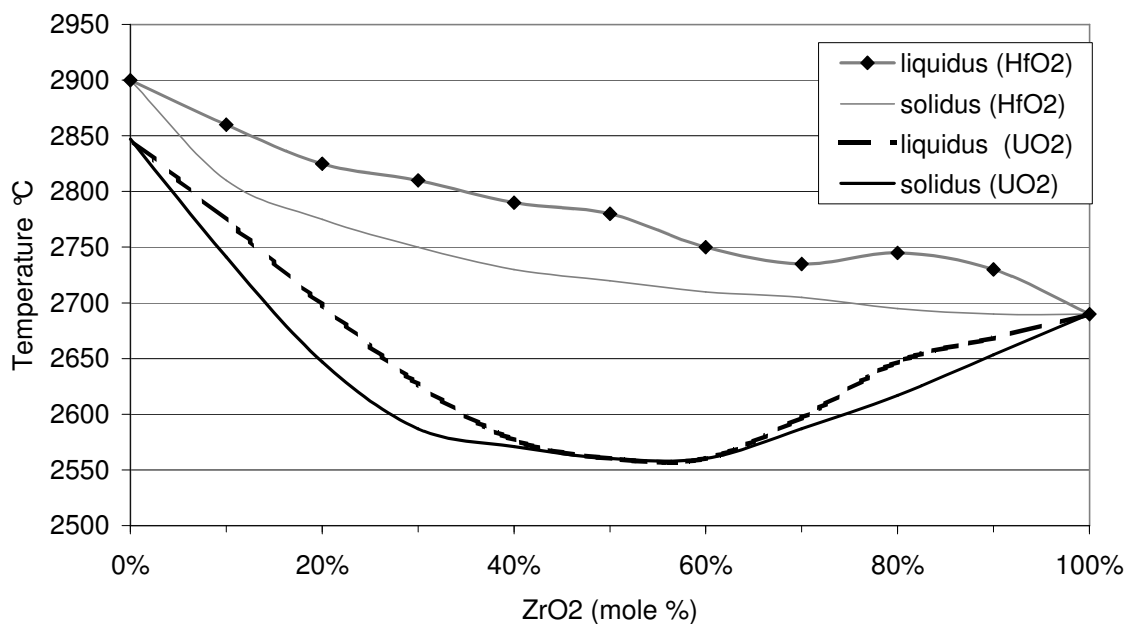


Figure 3-5 : Températures de liquidus et de solidus pour les pseudo-binaires HfO_2 - ZrO_2 (Ruh et al. , 1968) et UO_2 - ZrO_2 (Cohen & Schaner, 1963)

3.2.1 Etalement de matériaux simulants sur une section 2D

Deux essais ont été réalisés en étalant des mélanges de zircone et d'alumine fondues sur une section rectangulaire, la goulotte d'entrée étant moins large que la section d'essais. Lors de l'essai VR-18, première coulée réalisée dans l'installation VULCANO, on a coulé 6,5 kg d'un mélange de 55%_{masse} de zircone et 45% d'alumine sur une section de 450 x 525 mm. La Figure 3-6 montre l'aspect dissymétrique de la forme finale de l'étalement qui s'est immobilisé sans avoir atteint aucune des parois de la section.

Durant l'essai suivant, 23 kg d'un mélange de 69%_{masse} de zircone et 31% d'alumine ont rempli totalement les 0,24 m² de la section d'essai. La vitesse de progression du front était comprise entre 15 et 30 cm/s, d'après l'analyse des thermocouples de surface. Ces essais ont montré que des mélanges binaires à hautes températures avaient une bonne aptitude à l'étalement.



Figure 3-6 : Vue après l'essai de l'étalement bidimensionnel VR-18

3.2.2 Etalement de matériaux simulants sur un secteur angulaire

Cinq essais ont été réalisés avec un simulant à base de hafnie et une veine de 19° d'ouverture angulaire, afin de pouvoir modéliser, avec une masse limitée, des étalements axisymétriques. Dans cette configuration, la goulotte d'arrivée correspond à la largeur de la veine à l'origine (Figure 3-2). Les compositions de ces essais simulaient des mélanges corium-béton, en remplaçant, mole pour mole, l'uranium par le hafnium. Les principales caractéristiques de ces essais sont indiquées dans le Tableau 3-1. Ces coulées sont caractérisées par une fissuration faible et peu de porosité (correspondant uniquement au retrait de solidification).

Essai	Composition (en % masse)	Masse (kg)	Débit (L/s)	Temp. de versement (°C)	Liquidus – Solidus (°C)	Principales observations
VE-01	50% HfO ₂ , 10% ZrO ₂ , 34% Al ₆ Si ₂ O ₁₃ , 6% Al ₂ CaSi ₂ O ₈	12	0.1 discontinu	1800	2130 1350	Étalement court: 22 cm Épaisseur: 40 mm
VE-02	58% HfO ₂ , 10%ZrO ₂ , 31%Al ₆ Si ₂ O ₁₃ , 1%CaO	21	0.1 discontinu	2000	2230 1500	Accumulation: Épaisseur 40-100 mm
VE-03	40% HfO ₂ , 5%ZrO ₂ , 39%Fe ₂ SiO ₄ , 16%Fe ₃ O ₄	15	0.1 continu	1800	1830 1070	Longueur de coulée 30 cm Épaisseur au front 20 mm
VE-04	61% HfO ₂ , 11%ZrO ₂ , 21% Fe ₂ SiO ₄ , 4% Al ₂ O ₃ , 3% CaO	12	0.7 continu	2000	2130 1050	Accumulation Pas d'étalement
VE-07	33% HfO ₂ , 22%ZrO ₂ , 22%SiO ₂ , 22%FeO, 1% CaO	17	0.5 continu	1975	2100 1000	Longueur de coulée 55 cm Porosité faible Structure homogène

Tableau 3-1 : Caractéristiques des essais d'étalement sur des secteurs angulaires de 19°.
Les incertitudes sont d'environ ±75°C sur les températures et de ± 20% sur les débits

3.2.3 Essai avec un mélange oxyde simulant-métal

Lors d'un essai (VE-06), on a mélangé du fer métallique aux poudres d'oxydes de la charge. La composition de la coulée était, en pourcentages massiques, de 52% HfO_2 , 14% ZrO_2 , 27% Fe_2SiO_4 , 2% CaO , 5% Fe , ce qui simulait le mélange de 71% d'un corium oxyde-métal avec 29% de béton ferro-siliceux.

Une masse de 34 kg s'est étalée sur une longueur de 45 cm. Le fer fondu s'est maintenu sous la forme de gouttes qui ont formé une émulsion dans le bain d'oxydes. La Figure 3-7 montre une coupe de la coulée. L'analyse à la micro-sonde a confirmé que les gouttelettes d'aspect métallique étaient bien du fer avec une fine pellicule d'oxydation. Il n'y a pas eu de stratification entre les deux phases liquides bien que la température du bain soit restée durant au moins 3 minutes au-dessus du point de fusion du fer. En extrapolant ce résultat au cas réacteur et en tenant compte du brassage supplémentaire qui sera occasionné par le dégagement gazeux du béton, nous pensons que l'étalement et la stratification se produiront de façon séquentielle, et ne seront donc pas ou peu couplés.

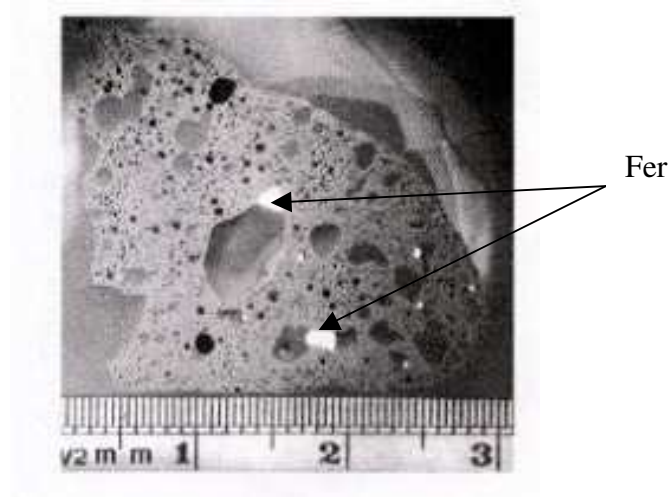


Figure 3-7 : Coupe de la coulée VE-06

3.3 ESSAIS EN MATERIAUX PROTOTYPIQUES

Cinq essais d'étalement ont été réalisés en matériaux prototypiques (contenant de 44 à 80 % massiques d'oxyde d'uranium) lors de la campagne VULCANO-Etalement. Leurs caractéristiques sont synthétisées dans le Tableau 3-2.

Essai	Composition (en % masse)	Masse (kg)	Débit (L/s)	Temp. de versement (°C)	Liquidus – Solidus (°C)	Principales observations
VE-U1	44% UO ₂ , 23% ZrO ₂ , 21% SiO ₂ , 12% FeOx	38.8	0.6	1820	1975 1030	Etalement sur 1,2 m Plusieurs langues. Grande porosité
VE-U3	63 % UO ₂ , 22% ZrO ₂ , 8% SiO ₂ , 7% FeO	15.6	0.3	2130	2375 1050	Etalement de 33 cm Porosité faible
VE-U5	46% UO ₂ , 10 % ZrO ₂ , 24% FeO, 20% SiO ₂ + zirconium metal	36	0.5	1830	1940 1100	Etalements successifs pour une longueur de 1 m
VE-U7	61% UO ₂ , 30% ZrO ₂ , 3% FeO, 2% Fe, 2% SiO ₂ , 2% CaSiO ₃ , 0.6% CaO, 0.4 % Al ₂ O ₃	26	0.7 L/s répartis en 2 veines.	2175	2375 1000	Etalements en parallèle sur des veines en céramique et béton siliceux (très peu ablaté). Longueurs (36/45 cm) et porosités similaires sur les deux substrats.
VE-U8	80% UO ₂ 20% ZrO ₂	30	1 L/s	2660	2650 2610	Etalement de 40 cm. Croûtes solides en surface. 2cm d'ablation du béton 80%silice-20%calcaire.

Tableau 3-2 : Caractéristiques des essais d'étalement en corium prototypique (campagne VE-U)

3.3.1 VE-U1

La composition du premier essai VULCANO en matériaux prototypique était la suivante (en masse) : 44% UO_2 , 23% ZrO_2 , 21% SiO_2 , 12% FeO_x . Elle est représentative du liquide qui s'étalerait dans un récupérateur de type EPR après le mélange de 67% de corium avec 33% de béton sacrificiel ferro-siliceux. La plage de solidification d'un tel mélange est d'environ 900°C avec un liquidus estimé à 1975°C.

Une masse de 38,8 kg a été coulée à une température initiale de $1820 \pm 100^\circ C$ et s'est étalée sur 1,2 m. La Figure 3-8 a été prise alors que le front de coulée avait parcouru 90 cm depuis l'entrée de la veine. L'évolution de la position du front a été déterminée par l'analyse des images vidéo et est confirmé par les temps de passage sur les thermocouples installés à la surface de la veine (Figure 3-9). La vitesse maximale de progression est de 0,2 m/s. La progression s'est effectuée de manière saccadée, comme pour les coulées de lave avec "peau" viscoplastique décrites par Hon et al. (1994).

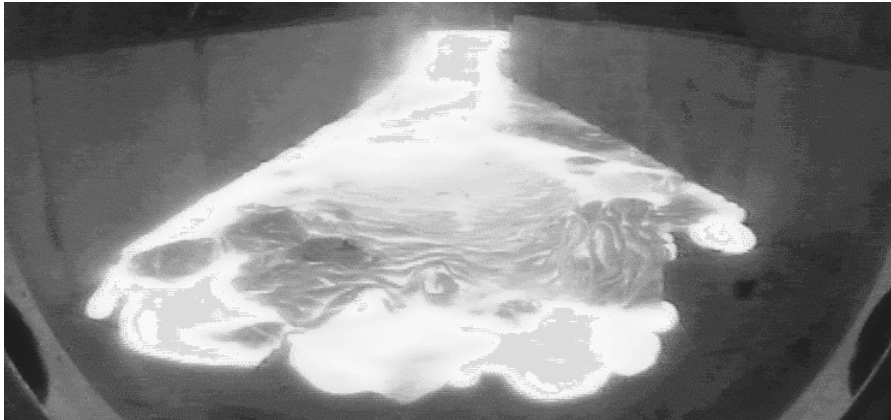


Figure 3-8 : Vue de face de la coulée VE-U1, prise avec la caméra calibrée selon la Figure 3-4 .

Etalement du corium - Essai VE-U1

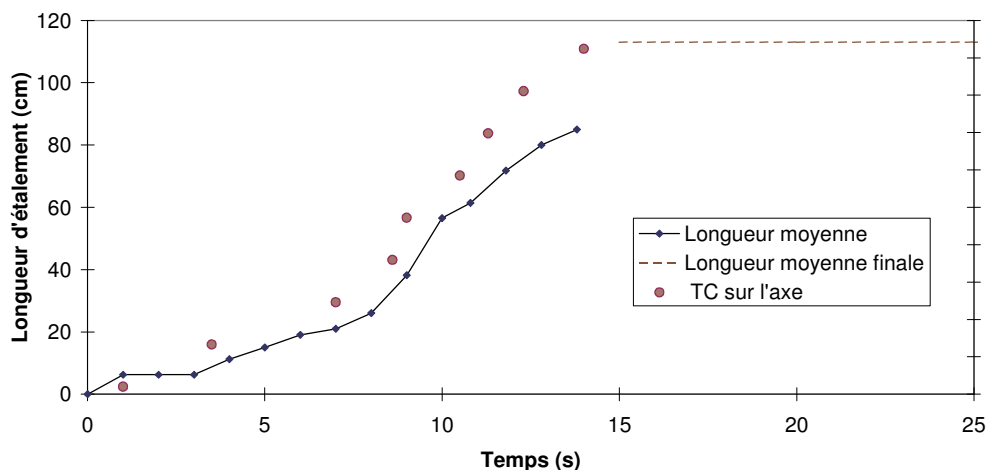


Figure 3-9 : Longueur moyenne de la coulée (valeurs moyennes issues du traitement des images, instants de montée en température des thermocouples placés sur l'axe) comparée aux calculs THEMA.

La coulée est sortie partiellement du champ de la caméra au bout de 15 s.

La température de surface du corium a été mesurée par deux pyromètres bichromatiques (Figure 3-10). Les températures du substrat en zircone sont suivies par des thermocouples en

surface et à 10 mm de profondeur. Les thermogrammes pour deux positions axiales (20 et 133 mm à l’aval de la goulotte) sont montrés sur la Figure 3-11. Le fait, a priori surprenant, que le thermocouple aval croit avant le thermocouple amont et atteint une température plus élevée est dû à la présence d’une “éclaboussure” de corium sur le thermocouple amont (observée à la vidéo), qui avait refroidi au début de l’étalement et a servi d’isolant thermique.

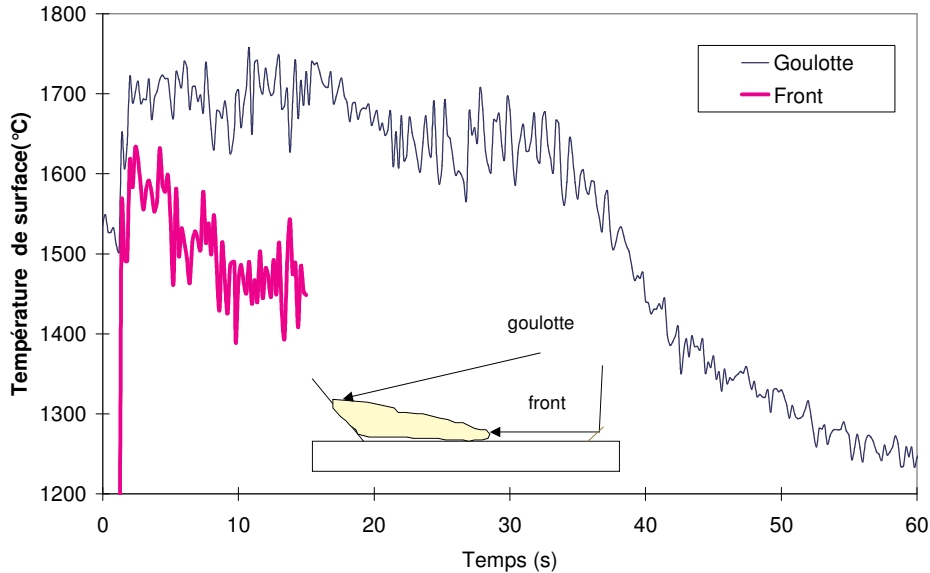


Figure 3-10 : Température de surface mesurée dans la goulotte et au front de coulée. Le miroir de renvoi pour la mesure au front de coulée a été atteint par le corium à t=15 s.

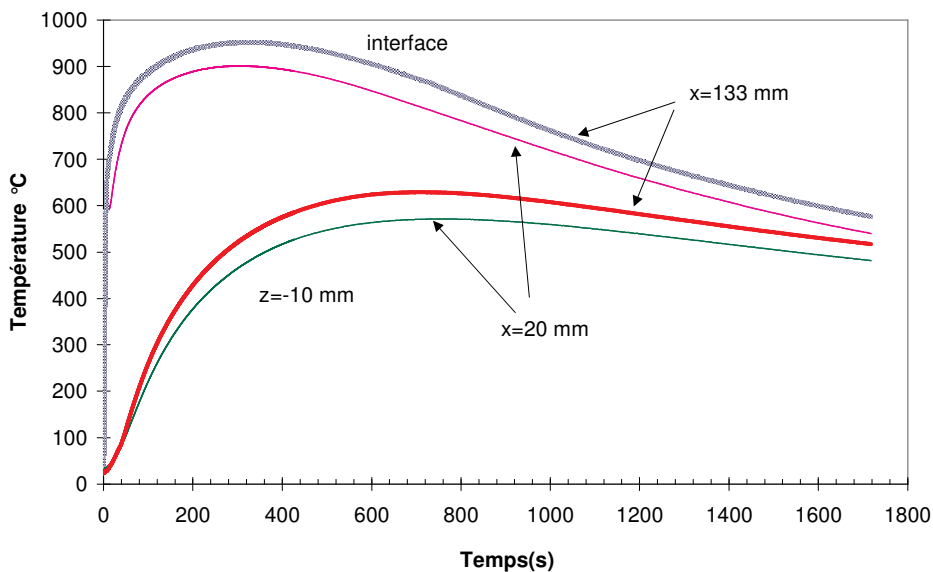


Figure 3-11 : Températures à la surface du substrat et à 1 cm de profondeur dans les briques de zircon

Les observations réalisées lors du démontage de l’essai ont mis en évidence la présence d’une très forte porosité, estimée à environ 30%. Il n’y a eu que très peu d’interaction entre la coulée de corium et les briques en zircon.

3.3.2 VE-U3

Pour l'essai VE-U3, la coulée de corium comportait une proportion de béton plus faible que lors de VE-U1 (cf. Tableau 3-2). Etant plus riche en dioxyde d'uranium, sa température de liquidus était plus élevée (2375°C). Une masse de 15,6 kg de corium s'est étalée à une température initiale de 2130 ± 60 °C- soit 250°C en dessous de la température de liquidus calculée par GEMINI2 à l'aide de la base de données thermodynamique TDBCR991 (Chevalier et al. , 1997) – et un débit de 0,3 L/s. Elle s'est étalée sur 33 cm, ce qui donne une hauteur moyenne de 32 mm. La Figure 3-12 montre la forme de la coulée telle que mesurée après l'essai. La porosité de cette coulée était très faible, correspondant au retrait de solidification.

L'enseignement majeur de cet essai est que, malgré les conditions initiales de coulée défavorables (température initiale à 250°C sous le liquidus et faible débit), le corium s'est bien étalé. Ceci est vraisemblablement un effet de l'étendue (1200°C) de son intervalle solidus-liquidus.

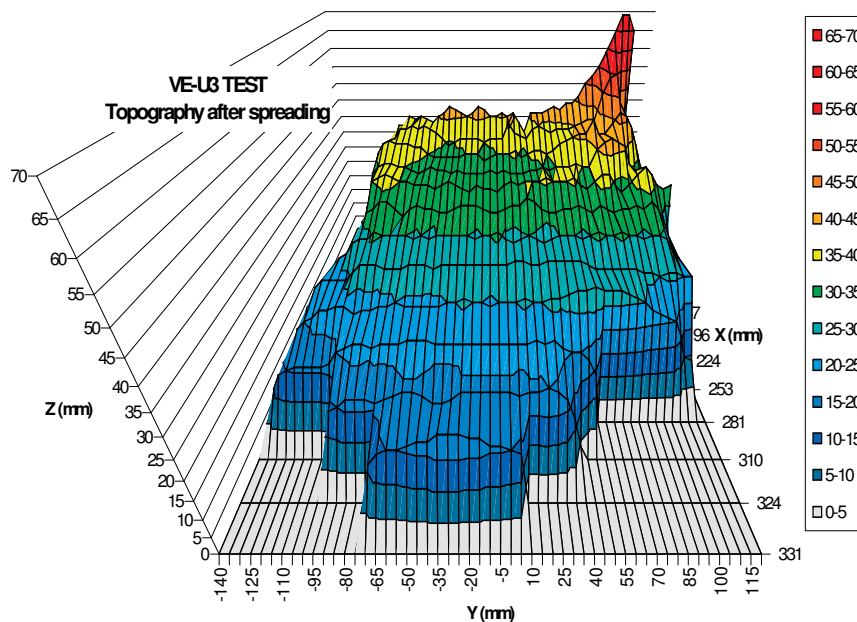


Figure 3-12 : Forme de la coulée VE-U3 – Issue de 481 points de mesure

La Figure 3-12 montre la forme de la coulée, mesurée à froid à l'aide d'un banc de télémétrie laser. On remarque que le profil de la coulée est proche de la forme parabolique théorique (§2.1.2).

3.3.3 VE-U5

Cet essai a permis de réaliser deux coulées successives avec un corium de composition massique : 46% UO_2 , 10 % ZrO_2 , 24% FeO , 20% SiO_2 . Une partie du corium a été versée directement sur la veine d'étalement en acier (Figure 3-13) pendant que la partie restante était retenue temporairement dans un creuset, où une réaction exothermique avec du zirconium assurait un maintien en température.



Figure 3-13 : Thermographie infrarouge de la première coulée de corium lors de l'essai VE-U5



Figure 3-14 : Etalements de corium sur une plaque d'acier (VE-U5)
(La vidange du creuset est visible : point brillant à l'amont de la coulée)

Quand la porte métallique de ce creuset a fondu, un deuxième écoulement s'est mélangé avec la première coulée qui était arrêtée. La coulée a gonflé, puis le front de la coulée s'est rompu, laissant apparaître du corium plus chaud (Figure 3-14). Ce comportement est voisin de celui décrit par Hon et al. (1994) pour les coulées à « peau » viscoplastique.

Cet essai a mis en évidence la capacité de s'étaler de ces mélanges à grand intervalle de solidification (ici 1100 – 1940°C) à s'étaler même lorsqu'une seconde coulée a lieu après l'arrêt de la progression d'une première coulée.

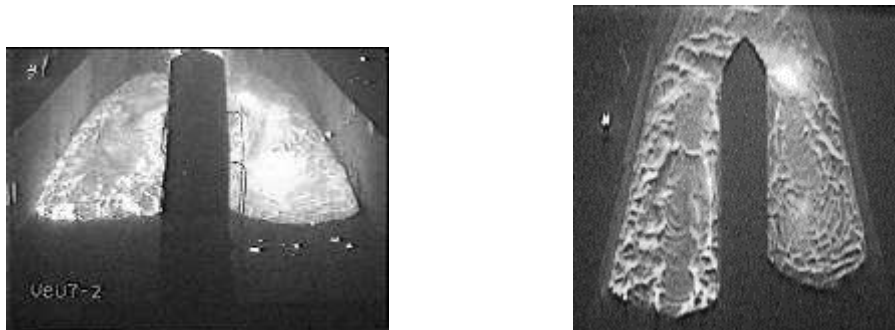
3.3.4 VE-U7

L'essai VE-U7 a été dédié à l'étude de l'effet du substrat sur l'étalement. Un corium, de composition (voir Tableau 3-2) voisine de celle qui a été calculée par Nie (2000) pour la composante oxyde du corium sortant du puits de cuve EPR, a été versé dans une section d'essai composée de deux veines d'étalement de 9,5° d'ouverture angulaire ayant respectivement un substrat en céramique et en béton. La veine en céramique était constituée de briques denses de zircon électrofondue. Le béton était constitué d'un ciment CEM I 32.5 R, d'eau et d'agrégats de silice. La veine a été conçue et positionnée de façon à ce qu'un écoulement hydrodynamique (sans solidification) issu du four s'écoule de manière identique dans les deux veines.

Environ 50 kg de corium ont été versés du four et 40 kg ont atteint la section d'essai à un débit de 3 kg/s et une température initiale de 2175 ± 75 °C, pour un liquidus de 2375°C et un solidus de 1000°C. 12 kg se sont écoulés sur le béton et 14 kg sur la céramique, le reste demeurant dans le déversoir (Figure 3-15). Cet essai a servi pour un exercice de comparaison européen des codes de calcul d'étalement THEMA, CORFLOW et LAVA (Journeau et al., 2006b, § 7.2).

L'écoulement sur le béton s'est terminé quelques centimètres avant celui sur la céramique et son profil est beaucoup plus abrupt que celui sur la céramique (Figure 3-16). Le faible effet du substrat sur l'étalement est consistant avec les résultats des essais S3E 3MDC-Ox1 et 3MDS-Ox1 (Dinh et al., 2000 et § 2.5.2) et COMAS EU 2b (Steinwarz et al., 1999 et § 2.6.2). Dinh et al. (2000) l'ont attribué au fait que l'arrêt de la progression de la coulée était principalement piloté par le front de coulée alors que la génération de gaz par vaporisation des composés volatils du béton nécessite un temps permettant au front de ne pas être soumis au bullage. Il faut néanmoins noter que dans le cas où un fluide très peu visqueux s'étale, comme dans le cas des essais KATS 12 et 13 (Engel et al., 2000 et §2.5.3) l'effet du bullage est plus important (7,5 m sur le béton et 12 m sur la céramique toutes choses égales par ailleurs, soit un écart de l'ordre d'un tiers), mais la viscosité serait dans la gamme intermédiaire, pour laquelle l'effet du bullage est faible, dans le cas réacteur.

Sur la veine en béton, on a observé des dégagements gazeux entraînant des projections de liquide et mettant à jour le bain à une température supérieure à celle de la surface. Ces éruptions ont duré 20 s après la fin des 25 s de progression du corium.



**Figure 3-15 : Vue de face et de dessus des coulées VE-U7.
Le béton est à droite, la céramique à gauche de l'image.**

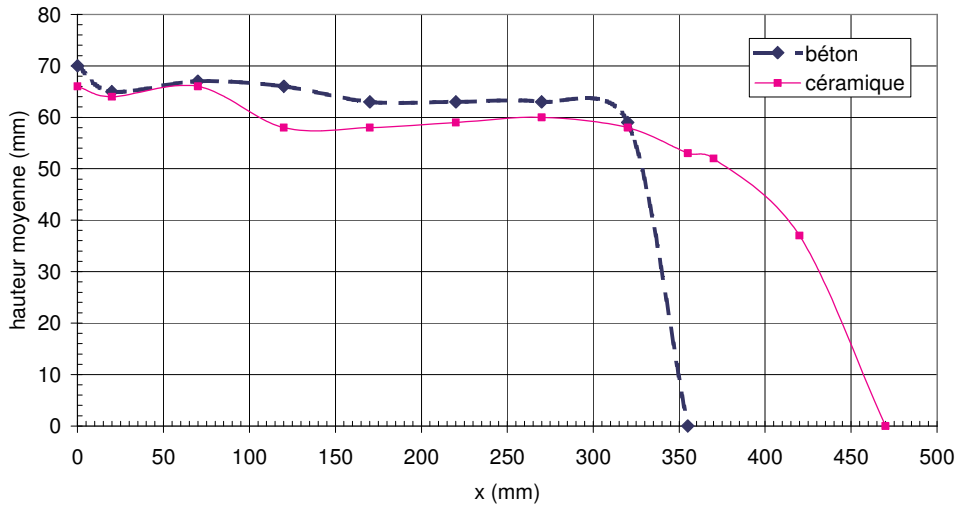


Figure 3-16 : Mesure télémétrique, à froid, du profil des coulées sur les deux substrats lors de VE-U7

On a observé des dégagements significatifs de fumée dans les deux veines, bien que la seule source de gaz extérieure au corium était l'eau libre et liée du béton. La porosité des deux coulées était importante dans les deux veines (Figure 3-17) et identique, aux incertitudes de mesure près : les densités mesurées après l'essai étaient toutes les deux de $5000 \pm 200 \text{ kg/m}^3$. Des billes de fer ont été observées à la surface des deux coulées et à proximité des pores, signe d'une légère réduction de la charge dans le four. Ces gouttelettes de fer, représentant quelques pour cent du volume des coulées, ne se sont pas stratifiées au fond la coulée, bien qu'elles soient plus dense que la phase oxyde. Nous n'avons observé aucune différence quant à leur répartition entre les deux coulées.

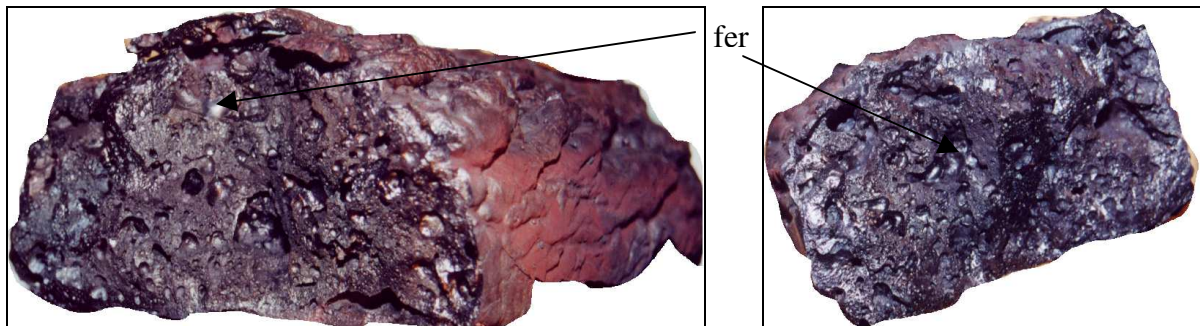


Figure 3-17 : Coupes de la coulée VE-U7 au-dessus de la zircone dense (à gauche) et du béton siliceux (à droite)

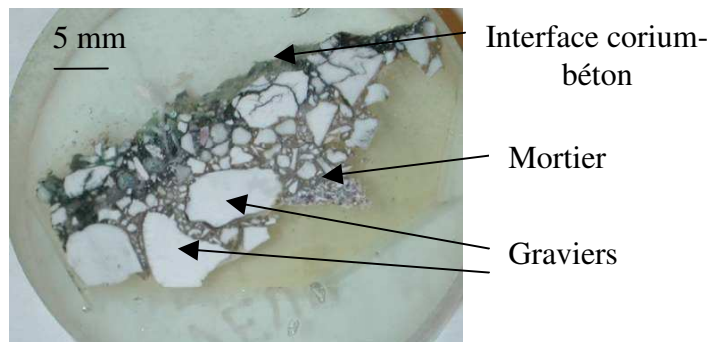


Figure 3-18 : Echantillon de béton prélevé après l'essai VE-U7

Le substrat en béton n'a été que faiblement attaqué sur quelques millimètres. On remarque que le mortier a été plus ablaté que les agrégats de silice (Figure 3-18).

3.3.5 VE-U8

L'essai VE-U8 a conclu la campagne d'essais consacrés à l'étalement en coulant un corium de type « en cuve » composé d'(U,Zr)O₂ à environ 2660°C sur un béton dont les agrégats étaient à 80%_{masse} siliceux et à 20% calcaire. Bien que le débit de versement ait été plus fort que lors des autres essais (1 L/s), la longueur d'étalement est restée assez faible.

Dans cette configuration, l'intervalle liquidus-solidus est réduit à 50°C (Cohen & Schaner, 1963) et se situe entre 2600 et 2700°C. Par conséquent, les incertitudes sur la mesure des températures sont du même ordre de grandeur que l'intervalle de solidification.

La Figure 3-19 montre la forme de cette coulée après refroidissement. Avec cette composition, et contrairement aux essais précédents avec des mélanges corium-béton, une croûte solide s'est formée rapidement à la surface, durant l'étalement. Cette croûte s'est brisée à plusieurs reprises, sous l'effet de l'écoulement du corium resté liquide, soit sous l'effet des gaz issus de la décomposition du béton. Le comportement de la coulée correspond à celui décrit par Hon et al. (1994) pour des coulées de lave avec une croûte fragile.



Figure 3-19 : La coulée VE-U8 : (U,Zr)O₂ sur béton silico-calcaire

Malgré l'absence de simulation de la puissance résiduelle, jusqu'à 2 centimètres de béton ont été ablatés (Figure 3-20). Les thermocouples installés dans le béton (Figure 3-21) montrent que le béton a atteint des températures plus élevées que lors de l'essai VE-U7 (au cours duquel le corium était à une température moins élevée). Des calculs thermodynamiques avec la base de données TDBCR001 indiquent que ce béton est à 50%_{vol} liquide vers 1300-1400°C. Au point de mesure (12 cm en aval du début de la veine), cette température a été atteinte dans les 12 millimètres supérieurs. La progression de cet isotherme a permis d'estimer la vitesse d'ablation (0,2 mm/s).

L'analyse des échantillons de béton suite à ces deux essais sur substrat en béton ont permis de noter les points suivants :

- Le corium pénètre de façon préférentielle dans le mortier par rapport aux agrégats.
- Les agrégats sont fissurés (thermiquement) et du corium pénètre dans ces fissures.

- Les agrégats calcaires soumis à la chaleur relâchent du dioxyde de carbone et forment de la poudre de chaux.
- Les relâchements de gaz ont donné lieu à la formation de quelques cheminées éruptives à la surface des coulées plutôt qu'à une distribution uniforme des relâchements.



Figure 3-20 : Béton avec agrégats siliceux-20% calcaire ablaté par l'(U,Zr)O₂ lors de l'essai VE-U8
Au maximum, 2 cm ont été ablatés.

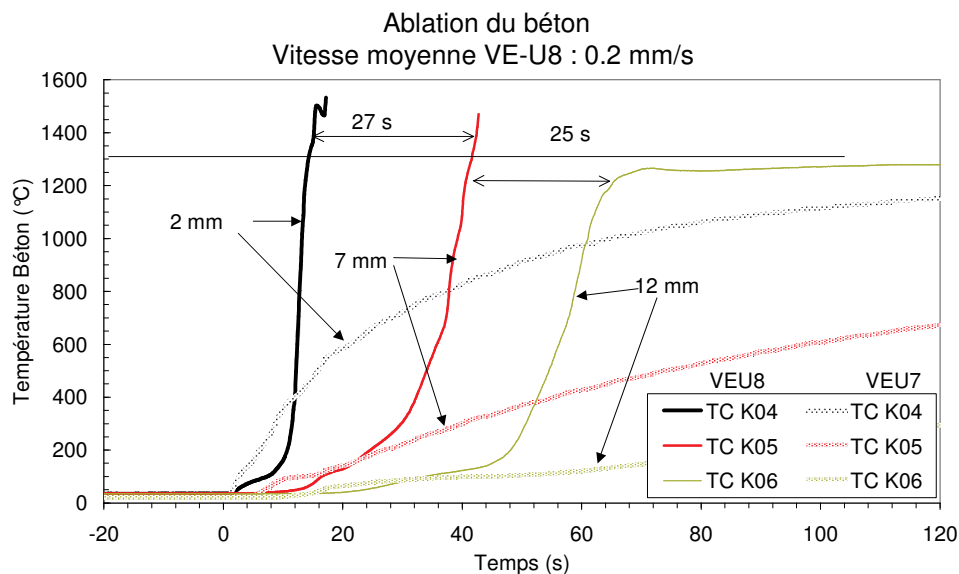


Figure 3-21 : Evolution des températures dans le béton lors des essais VE-U7 et VE-U8

3.4 CONCLUSIONS

Douze essais d'étalements ont été réalisés sur l'installation VULCANO dont cinq en matériaux prototypes, représentatifs soit du mélange qui s'écoulerait de la cuve, soit d'un corium mélangé avec un béton sacrificiel. Ces essais ont montré que même en dessous de la température de liquidus et avec une proportion significative de silice (jusqu'à 22%), le corium avait une bonne propension à l'étalement.

Une des principales différences entre matériaux simulants et matériaux prototypes a été la présence d'une forte porosité dans les coulées VE-U1, VE-U5, VE-U7 et VE-U8, alors que la coulée VE-07, simulant la composition de VE-U1 avec du hafnium à la place de l'uranium,

était très peu poreuse. De plus, l'essai VE-U7 a montré que cette porosité n'était pas affectée par la présence d'une source externe de gaz. Lors de l'essai VE-U5, on a même observé sous la croûte une poudre d' U_3O_8 et de SiO_2 qui est vraisemblablement due à la condensation d'oxydes volatils d'uranium (vraisemblablement UO_3) et de silicium (SiO). Il semble donc que ces porosités soient dues à des réactions d'oxydoréduction dans le corium amenant à la formation de gaz, de façon similaire au phénomène d'air lift observé par Petrov et al. (1999) lors d'essais en creuset froid.

Ces dégagements gazeux ont pour conséquence la formation de fissures en surface, alors que les coulées en matériaux simulants étaient très peu fissurées. Ces fissures favoriseront la refroidissabilité par noyage de la coulée (Lister, 1974). La présence de gaz va aussi contribuer à l'efficacité des transferts convectifs dans la coulée.

Pour ce qui est du processus d'étalement proprement dit, on a observé deux comportements différents en fonction de la composition du corium. Pour les compositions « en cuve » (VE-U8), de même que pour les essais d'étalement FARO (Tromm et al. , 2000 et §2.6.3), des croûtes rigides se forment à surface. Elles bloquent la progression du corium puis se rompent, donnant à l'étalement une progression saccadée. La surface de ces coulées est très déchiquetée. A l'inverse, dans le cas de mélanges corium-béton, on observe la présence d'une peau visqueuse, d'aspect lisse, à la surface de la coulée, qui est généralement plissée.

Dans les chapitres suivants, nous allons étudier plus en détail les différents aspects de l'étalement afin de qualifier nos modèles sur ces essais et de valider le concept de récupération par étalement.

REFERENCES DU CHAPITRE 3 :

- Bird, M.J., Millington, R.A., 1979, Fuel Coolant Interaction Studies with water and Thermite-generated molten uranium dioxide, 4th OECD/CSNI Specialists' Meeting on Fuel Coolant Interaction in Nuclear Reactor Safety, Bournemouth, UK (2-5/4/1979).
- Chevalier, P.-Y., Fischer, E., Cheynet, B., Rivet, A., Cénérino, J., 1997, Global thermodynamic approach of the molten core-concrete interaction (MCCI) and selected applications in the nuclear field, *J. Chim. Phys.* PCB 94, 849-860.
- Chu, T.Y., Brockmann, J.E., Gronager, J.E., 1983, Large-scale Melt Interaction Tests, Rapport Sandia National Laboratory, SAND-83-1868C.
- Cognet, G., Journeau, C., Jégou, C., 1995, Infrared thermometry for measuring the surface temperature of an oxidic melt. *Proc. Int. Symp. Radiative heat transfer*, Kusadasi, Turquie (14-18/8/1995).
- Cognet, G., Laffond, G., Jégou, C., Pierre, J., Journeau, C., Sudreau, F., Roubaud, A., 1999, Utilisation d'un four tournant à arc plasma transféré pour fondre et couler des mélanges d'oxydes autour de 2000°C, *Ann. Pharm. Fr.* 57, 131-136.
- Cohen, I., Schaner, B.E., 1963, A metallographic and X-ray study of the UO₂-ZrO₂ system, *J. Nucl. Mater.* 9, 18-53.
- Dinh, T.N., Konovalikhin, M.J., Sehgal, B.R., 2000, Core Melt Spreading on a reactor Containment Floor, *Progr. Nucl. Energ.*, 36, 4, 405-468.
- Engel, G., Fieg, G., Massier, H., Stegmaier, U., Schütz, W., 2000, KATS experiments to simulate corium spreading in the EPR core catcher concept, *Wiss. Ber. FZKA*, 6475, 145-155.
- Fulcheri, L., 1988, *Fusion d'un matériau poreux soumis à un flux surfacique intense. Application à la caractérisation énergétique d'un réacteur rotatif à source plasma*, Thèse de Doctorat, Université de Perpignan.
- Guéneau, C., Dauvois, V., Pérodeaud Gonella, C., Dugne, O., 1998, Liquid immiscibility in a (O, U, Zr) model corium, *J. Nucl. Mater.*, 254, 158-174.
- Hohmann, H., Magallon, D., Schins, H., Zeyen, R., Laval, H., Benuzzi, A., 1986, Contribution to FBR accident analysis: the FARO programme at JRC Ispra, *Proc. Int. Conf. Fast Reactor Safety*, Guernesey.
- Hon, K., Kauahikaua, J., Denlinger, R., MacKay, K., 1994, Emplacement and inflation of pahoehoe sheet flows: Observation and measurements of active lava flows on Kilauea Volcano, Hawaii, *Geol. Soc. Am. Bull.*, 106, 351-370.
- Huhtiniemi, I., Hohmann, H., Magallon, D., 1997, FCI experiments in the corium/water system, *Nucl. Eng. Des.*, 117, 339-349.

Journeau, C., Jung, Y., Pierre, J., 1998, Visualization of a 2000°C Melt spreading over a plane, *8th International Symposium on Flow Visualization*, Sorrente, Italie.

Journeau, C. Gatt, J.-M., de Palma, G., 1999, Transient Effects in Corium Temperature Measurements, *9th Int Topical Mtg Nuclear Reactor Thermalhydraulics, NURETH 9*, San Francisco, Californie.

Journeau, C., Piluso, P., Cranga, M., 2001, Transferts thermiques lors de la solidification lente de bains d'oxydes fondus, *Actes du Congrès SFT 2001*, C. Castelain, D. Delaunay, eds. Elsevier, Paris.

Journeau, C., Boccaccio, E., Brayer, C., Cognet G., Haquet, J.-F., Jégou, C., Piluso, P., Monerris, J., 2003, Ex-vessel corium spreading : results from the VULCANO spreading tests, *Nucl. Eng. Des.* 223, 75-102.

Journeau, C., Boccaccio, E., Bonnet, J.-M., Fouquart, P., Godin-Jacqmin, L., Haquet, J.-F., Magallon, D., Malaval, S., Mwamba, K., Piluso, P., Saldo, V., 2005, Accident Research at the PLINIUS Prototypic Corium Platform, In: *Proc. Int. Congr. Advances nuclear Power plants (ICAPP05)*, Seoul, Corée.

Journeau, C., Alsmeyer, H., 2006, Validation of the COMET bottom-flooding core-catcher with prototypic corium, *2006 Int. Congr. Advances nucl. Power Plants (ICAPP06)*, Reno, Nevada.

Journeau, C., Haquet, J. -F., Spindler, B., Spengler, C., Foit, J., 2006b, The VULCANO VE-U7 Spreading Benchmark, *Progr. Nucl. Energ.*, 48, 215-234.

Lister, C.R.B., 1974, On the penetration of water into hot rock, *Geophys. J. R. Astron. Soc.*, 39, 465-509.

Mwamba, K., Piluso, P., Eyries, D., Journeau, C., 2006, Self-Propagating High-Temperature Synthesis of a nuclear reactor core melt for safety experiments, soumis à *Int. J. Self-propag. High-temp. Synth.*

Nagasaka H., Kato, M., Sakaki, I., Cherepnin, Yu., Vassilyev Yu., Kolodeshnikov, A., Zhdanov V., Zuev, V., 1999, COTELS Project (1): "Overview of Project to study FCI and MCCI during a Severe Accident", *Proc. of OECD Workshop on Ex-Vessel Debris Coolability*, Karlsruhe, Allemagne.

Nie, M., 2000, Application of sacrificial concrete for the retention and conditioning of molten corium in the EPR core melt retention concept, *Wiss. Ber. FZKA 6475*, 527-534.

Petrov, Yu. B., 1983, *Fusion des oxydes par induction* (en russe), Energoatomizdat, Moscou.

etr v, ., il h, ., r ž k, ., , ir-lift effect in the induction melting if model corium alloys, *Nucleon*, 2, 39.

Ruh, R., Garrett, H.J., Domagala, R.F., Tallan, N.M., 1968, The system zirconia-hafnia, *J. Am. Ceram. Soc.*, 51, 23-27.

Sala, A., 1968, *Radiant Properties of materials*, Elsevier, Amsterdam.

Sappok, M., Steinwarz, W., 1999, Large scale experiments on ex-vessel core melt behavior, *Nucl. Technol.*, 125, 363-370.

Steinwarz, W., Häfner, W., Alkan, Z., Fischer, M., 1999, Großexperimente mit repräsentativer Kernschmelze in Hinblick auf die Beherrschung eines Kernschmelzunfalls, *Jahrestagung Kerntechnik*, 44, 436-441.

Touloukian, Y.S., 1967, *Thermophysical properties of high temperature solid materials, vol 4: Oxides and their solutions and mixtures, Part II: Solutions and their Mixtures of simple Oxygen Compounds, including Glasses and Ceramic Glasses*, MacMillan, New York.

Touloukian, Y.S., de Witt, D.P., 1972, *Thermal Radiative Properties - Non Metallic Solids*, IFI/Plenum, New York.

Tromm, W., Alsmeyer, H., 1995, Experiments for a core catcher concept based on water addition from below, *Nucl. Eng. Des.* 157, 437-445.

Tromm, W., Foit, J.J., Magallon, D., 2000. Dry and Wet spreading experiments with prototypic material at the FARO facility and theoretical analysis. *Wiss. Ber. FZKA*. 6475,178-188.

Chapitre 4 : Analyse des matériaux et interprétation thermodynamique

Après la fin de l'étalement et le refroidissement complet du corium, des échantillons sont prélevés pour analyse lors du démontage de la veine d'essais. Ces analyses (Journeau et al. , 2001) permettent d'une part d'obtenir des informations sur la phénoménologie, d'autre part de déterminer la composition précise du corium. En comparant ces analyses à un modèle thermodynamique, il est possible de caractériser les différents chemins de solidification qu'ont suivis les différentes parties de la coulée. On peut ensuite estimer la composition et en déduire les propriétés physiques du corium en fonction de la température et de la localisation dans la coulée.

Dans ce chapitre, la démarche d'analyse et d'interprétation sera généralement illustrée sur l'essai VE-U1 (§ 3.3.1).

4.1 ANALYSES MATERIAUX

4.1.1 Prélèvement d'échantillons

Des échantillons de corium sont prélevés en plusieurs zones de la coulée, ainsi que dans la goulotte de transfert (pour se prémunir d'éventuelles interactions avec le substrat). Des échantillons de substrats sont aussi prélevés en cas d'interaction. Lors de l'essai VE-U1, 4 échantillons ont été prélevés pour analyse : en amont de la coulée, au centre, à l'aval et dans la protrusion à l'extrémité aval de la coulée (Figure 4-1).

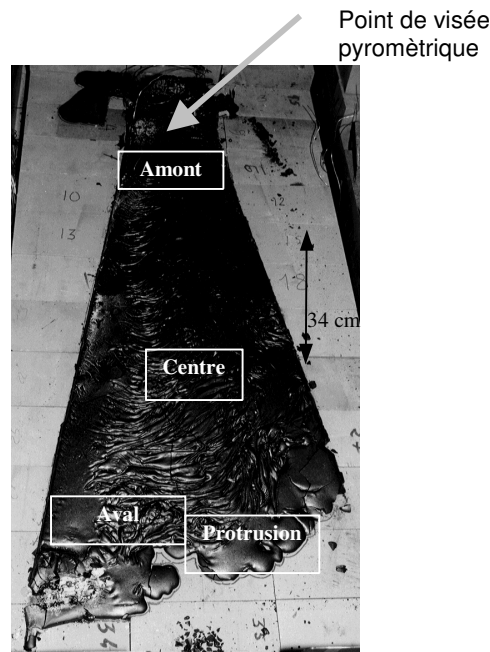
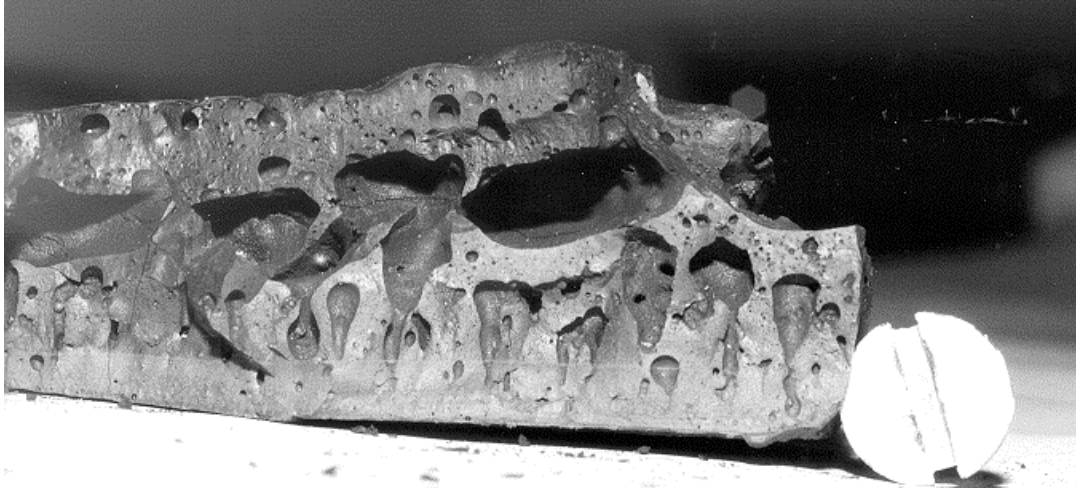


Figure 4-1 : Vue de la coulée VE-U1 et des positions des échantillons

Un des aspects significatifs de la plupart des essais avec un corium prototypique est la présence d'une macroporosité importante (Figure 4-2) alors que la porosité des essais en simulants (hafnie) était beaucoup plus faible. On a attribué cette porosité importante aux relâchements gazeux dus aux changements de stœchiométrie d'oxygène de l'uraninite ($UO_{2\pm x}$)

lors de son refroidissement (Edwards et al., 1969 ; Petrov et al., 1999) ; En effet, ces gaz ne peuvent provenir du substrat ou du gaz emprisonné dans les pores de celui-ci, car on a obtenu une forte porosité lors des essais VE-U5 et VE-U7 bien que la coulée se soit étalée respectivement sur une plaque d'acier et sur de la zircone dense.



**Figure 4-2: Echantillon VE-U1 montrant la forte porosité de corium.
(Diamètre de la tête de vis servant d'échelle : 14 mm)**

Des sous-échantillons sont broyés pour les analyses chimiques et par diffraction des rayons X. D'autres sont découpés pour analyse au microscope optique, au microscope électronique à balayage et à la microsonde. Ils sont enrobés dans de la résine et polis avec des disques diamantés de finesse croissante, le dernier polissage étant réalisé avec des particules de 1 μm .

4.1.2 Analyses Chimiques

Les analyses chimiques sont réalisées sur des échantillons broyés avec un spectromètre à fluorescence X Philips 1404. La précision relative de ce type d'analyse est de $\pm 5\%$. Il faut noter qu'on ne peut mesurer que les contributions des éléments chimiques de numéro atomique supérieur à 11. En particulier l'oxygène et le carbone ne sont pas mesurés, et sont donc estimés à l'aide des résultats des autres analyses (analyse X par dispersion d'énergie, phases observées avec la diffraction des rayons X).

Eléments	Charge	amont	centre	aval	protrusion
U	53.1	51.5-52.3	51-52.9	51.3-52	51.6
Zr	19.1	22.7-23	21.7-22.5	22.3-22.7	22.4
Fe	14.8	11.2-11.6	11.8-12.6	11.6-11.7	12.1
Si	12.3	12.6-13.3	11.9-14.1	12.6-13.4	13.0
Ca	0.6	0.1-0.2	0.2	0.3-0.5	0.2
Al	0.1	0.1-0.1	0.1	0.1	0.1

Tableau 4-1 : Composition chimique du corium VE-U1 (pourcentage massique des éléments Z>11)

Les analyses de 8 échantillons de VE-U1 n'ont montré aucune variation significative de composition dans la coulée, tant horizontalement que verticalement. Cette homogénéité de composition chimique a été observée lors de tous les essais d'étalement VULCANO-E, y compris pour l'essai VE-U5 avec deux coulées successives. Le Tableau 4-1 montre les compositions mesurées pour les 4 zones de la coulée VE-U1 ainsi que la composition de la

charge introduite dans le four. Le corium s'est enrichi en zircon au contact du culottage. Cet effet qui a été observé dans la majorité des coulées VULCANO est d'autant plus marqué que la température de liquidus du corium est élevé.

La concentration en carbone, déterminée par analyse infrarouge des gaz issus de la combustion en milieu oxydant de trois échantillons, était inférieure à 0,28%_{masse}. De ce fait, nous avons négligé cet élément dans la suite de l'étude.

La concentration en oxygène estimée à partir de la microsonde se situe dans l'intervalle 25-27,3 %_{masse}.

4.1.3 Microscopes et microsonde

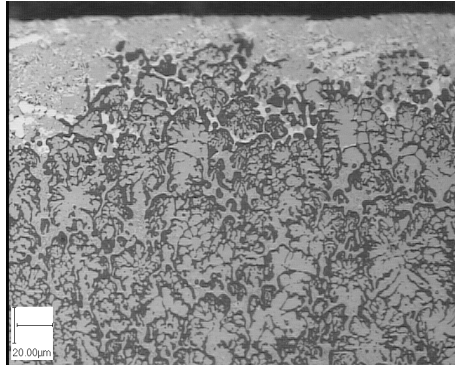
4° couche :

- $(U_{0.3}, Zr_{0.5}, Fe_{0.2})O_{1.85}$
- Fe_2O_3

3° couche :

- $(U_{0.33}, Zr_{0.47}, Fe_{0.20})O_{1.83}$
- $(U_{0.42}, Zr_{0.55}, Fe_{0.03})O_{1.83}$
- SiO_2

⇒ $0.7 < U/Zr < 0.8$



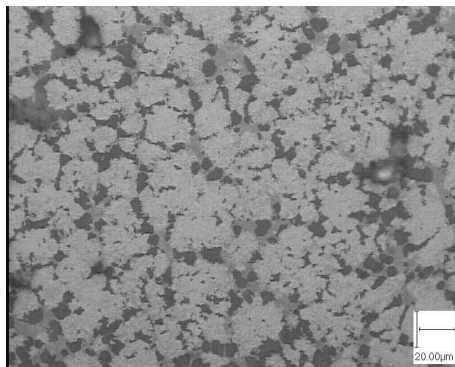
a : Haut de la coulée (3° et 4° couches)

2° couche :

- $(U_{0.78}, Zr_{0.12}, Fe_{0.10})O_{1.87}$
- $(U_{0.26}, Zr_{0.65}, Fe_{0.09})O_{1.60}$
- SiO_2
- $Fe_{1.2}SiO_{3.56}$

⇒ U rich sol. sol. : $U/Zr \approx 7$

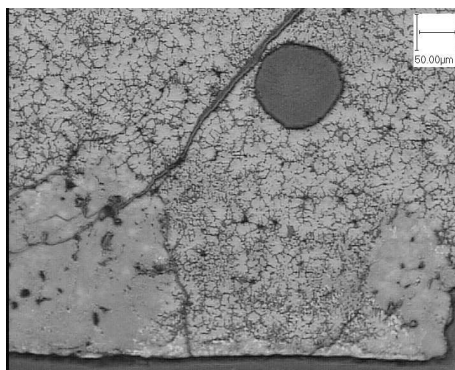
⇒ Zr rich sol. sol. : $U/Zr \approx 0.4$



b : Intérieur (2° couche)

1° couche :

- $(U_{0.85}, Zr_{0.11}, Fe_{0.04})O_{1.69}$
- UO_2
- $(U_{0.32}, Zr_{0.82})SiO_{3.64}$
- $(U_{0.13}, Zr_{0.98})SiO_{3.75}$
- SiO_2
- $Fe_{2.2}SiO_{3.76}$



c : Bas de la coulée (1° couche)

Figure 4-3 : Evolution de la microstructure de VE-U1 microstructure selon l'altitude, et indication de compositions typiques (d'après l'EDS) des phases observées
a) Haut de la coulée ; b) Intérieur ; c) Bas de la coulée

Les observations aux microscopes et les analyses à la microsonde (Spectromètre à Dispersion d'Énergie Oxford ISIS 300) montrent qu'il n'y a pas de différences significatives entre l'amont, le centre et l'aval de la coulée, protrusion comprise (à l'exception pour cette dernière de l'aspect non plissé de sa surface). Par contre, les microstructures varient significativement selon la direction verticale, comme le montre la Figure 4-3.

La coulée est donc constituée sur toute sa longueur de quatre couches :

1. En bas de la coulée, les 250 μm inférieurs sont constitués de deux microstructures très fines. Certaines zones (comme en bas à gauche de la Figure 4-3c) sont formées de quatre phases : une solution solide de composition typique¹ $(\text{U}_{0.85}, \text{Zr}_{0.11}, \text{Fe}_{0.04})\text{O}_{1.7}$, une solution solide proche du zircon de composition typique $(\text{U}_{0.3}, \text{Zr}_{0.8})\text{SiO}_{3.6}$, une solution solide proche de la fayalite, de composition typique $\text{Fe}_{2.2}\text{SiO}_{3.8}$, et de la silice. Le reste comprend 3 phases : de la silice (en noir sur les micrographies), un oxyde mixte de silice et de fer (en gris) ayant pour composition typique $\text{Fe}_{1.2}\text{SiO}_{3.6}$, et une phase réfractaire (gris clair) qui est formée de 2 solutions solides d'oxydes d'uranium, de zirconium et de fer ayant des rapports U/Zr très distincts : 7 et 0,4 respectivement.
2. Les trois dernières phases décrites ci-dessus ont été observées sur toute la hauteur de la coulée, de 250 μm au-dessus de la surface inférieure à 450-500 μm sous la surface libre, soit sur une hauteur d'environ 30 mm.
3. L'aspect microstructural du corium change 450 à 500 μm sous la surface libre. Ici, il n'y a plus qu'une seule solution solide réfractaire de composition comprise entre $(\text{U}_{0.33}, \text{Zr}_{0.47}, \text{Fe}_{0.20})\text{O}_{1.8}$ et $(\text{U}_{0.42}, \text{Zr}_{0.55}, \text{Fe}_{0.03})\text{O}_{1.8}$. Le rapport U/Zr vaut ici 0.7. Cette phase réfractaire est entourée de silice.
4. Finalement, on observe à la surface une couche très fine (40 μm) formée d'un mélange entre la phase réfractaire de la 3^e couche et de l'hématite ($\text{FeO}_{1.5}$).

4.1.4 Diffraction des Rayons X

Les analyses par rayon X sont réalisées à l'aide d'un diffractomètre Siemens-Bruker D5000 utilisant un monochromateur plan en graphite disposé après l'échantillon. Les spectres de diffractions sont évalués qualitativement à l'aide du logiciel Diffrac+ et de la base de données PDF-2. Des échantillons ont été découpés à plusieurs altitudes et ont été broyés.

Les 10 analyses de diffraction des rayons X réalisés sur VE-U1 confirment l'homogénéité du corium selon les directions horizontales. Par contre des variations significatives sont observées entre le bas, le centre et le haut de la coulée (Figure 4-4).

L'intérieur de la coulée est constitué de deux composants. Le premier est de structure cubique avec un paramètre de maille de 0,545 nm, voisin de 0,547 nm de l' UO_2 à température ambiante (Albinati et al., 1980). Ce paramètre de maille rentre aussi dans la plage (0,5410 à 0,54542 nm) mesurée par Duco & Trotabas (1989) sur des échantillons de corium de Three Mile Island, en association avec une phase tétragonale riche en zircone et une spinelle. Si on utilise la loi de Vegard proposée par Kim (1989) et recommandée par Trillon (2004) pour les solutions solides cubiques $\text{U}_{1-x}\text{Zr}_x\text{O}_2$:

$$a = 0,5468 - 0,03296x \quad (5.1)$$

on trouve une fraction de zircone de 5%_{molaire} dans cette phase. Il faut néanmoins noter que cette loi ne prend pas en compte l'éventuelle solubilité du fer dans cette phase. Quant à la stœchiométrie en oxygène, elle a un effet faible sur le paramètre de maille. La deuxième phase est tétragonale avec un spectre proche de celui de la zircone.

Dans la couche inférieure du corium, on a détecté la présence de quartz et de cristobalite, deux formes cristallines de la silice, alors que dans l'intérieur et à la surface de la coulée, on

¹ Les compositions sont entachées d'une incertitude relative de l'ordre de $\pm 5\%$. Les incertitudes sur les éléments légers (ici, l'oxygène) sont plus importantes.

n'a pas détecté de forme cristallisée de silice par diffraction des rayons X. On peut alors penser que la silice se trouvait sous forme vitreuse ou dans des oxydes mixtes tels que la fayalite.

Au niveau de la surface supérieure de la coulée de corium, les pics les plus intenses se situent entre ceux de l'uraninite et de la zircon. Ils ont une base élargie. On a affaire pour la phase principale à une solution solide $(U,Zr)O_2$ avec un paramètre de maille de 0,526 nm. En utilisant la loi de Vegard (5.1), on en déduit une fraction molaire de zircon de l'ordre de 60 % - proche de la composition du point azéotrope du diagramme UO_2-ZrO_2 (Cohen & Schaner, 1963).

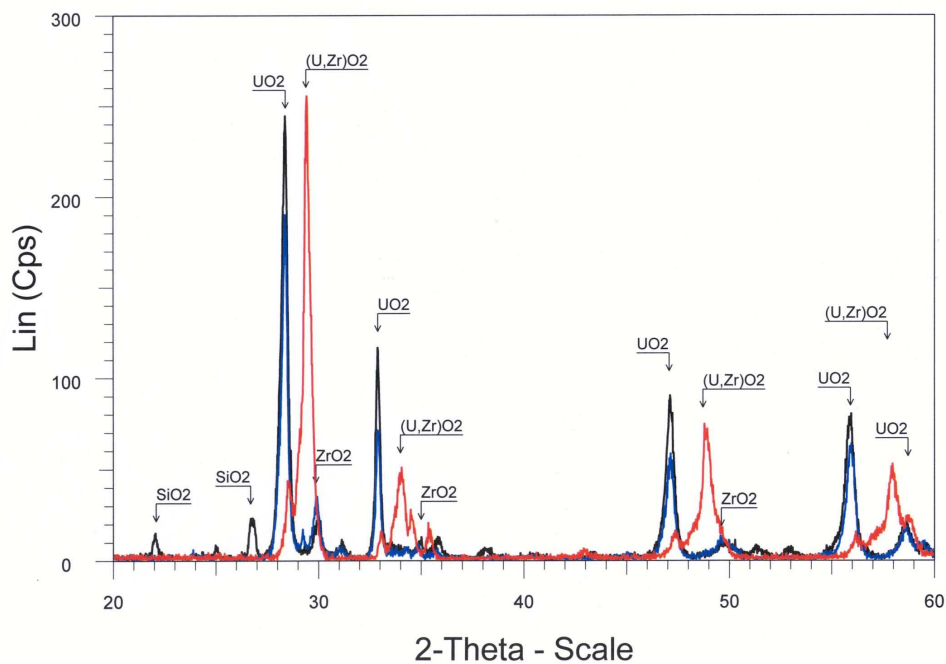


Figure 4-4: Diffraction des rayons X – Echantillons VE-U1
Surface inférieure ($h = 0$ mm, noir) ; centre (bleu) ; Surface supérieure (rouge)

4.1.5 Synthèse des analyses matériaux de l'essai VE-U1

Les diverses analyses (chimiques, analyse X par dispersion d'énergie et microscopie électronique, diffraction des rayons X) montrent une évolution des compositions de chacune des phases en fonction de l'altitude. Pour simplifier, nous avons considéré quatre couches de bas en haut.

4.1.5.1 Première couche (bas)

La principale particularité de cette couche, d'environ 250 μm d'épaisseur, est la présence d'une solution solide $(Zr, U)SiO_4$. La présence de cette solution implique que le corium a été refroidi relativement lentement, au moins en deçà de 1950 K. En effet, la transformation d'une solution solide $(U,Zr)O_2$ en $(U,Zr)SiO_4$ implique que la silice se combine avec les oxydes d'uranium et de zirconium à une température inférieure à la température de décomposition du zircon, comprise entre 1949 K selon Buttermann & Foster (1967) et 1900 K selon Ball et al. (1993) [Figure 4-5].

Il faut noter que, malgré les articles de Stern & Steiff (1954) et de Fuchs & Hoekstra (1959), il reste une incertitude sur l'existence du silicate d'uranium $USiO_4$. Nous pensons que

USiO_4 n'existe pas à l'état pur, mais que l'uranium peut rentrer en solution solide dans du zircon ZrSiO_4 . Ceci explique pourquoi la solution solide riche en uraninite est restée sous forme $(\text{U,Zr})\text{O}_{2-x}$, alors que la solution solide riche en zircon s'est transformée en silicate.

Cette solution solide a été observée par Anderson et al. (1993) et Pazukhin (1994) dans le corium de Tchernobyl. Ils ont nommé cette phase la *tchernobylite*. La solubilité maximale de l'uranium observée sur les échantillons de Tchernobyl est de 6 à 12%_{masse}, soit 5 à 11 %_{mol}. Par contre, Pazukhin (2005) m'a informé de ce que des essais en laboratoire lui ont permis d'obtenir des solubilités de l'uranium plus élevées. Cette observation, ainsi que celle des analyses par microsonde indiquent que la limite de solubilité de l'uranium dans le zircon doit être plus élevée que les valeurs de 2.5%_{mol} présentées par Mumpton & Roy (1961) ou les 4 ± 2 %_{mol} issus des travaux d'Ushakov et al. (1999). Suite à ces observations, la base de données a été modifiée afin d'y inclure cette solution solide.

En conclusion la couche inférieure du corium s'est probablement refroidie en deux étapes. Une croûte s'est formée très rapidement au contact entre le corium et le substrat froid. Le retrait à la solidification de cette croûte a créé une résistance thermique de contact (qui sera étudiée plus en détail au paragraphe 6.3) limitant les échanges thermiques vers le bas. La seconde phase du refroidissement s'est alors déroulée beaucoup plus lentement, permettant la formation de la solution solide $(\text{U,Zr})\text{SiO}_4$.

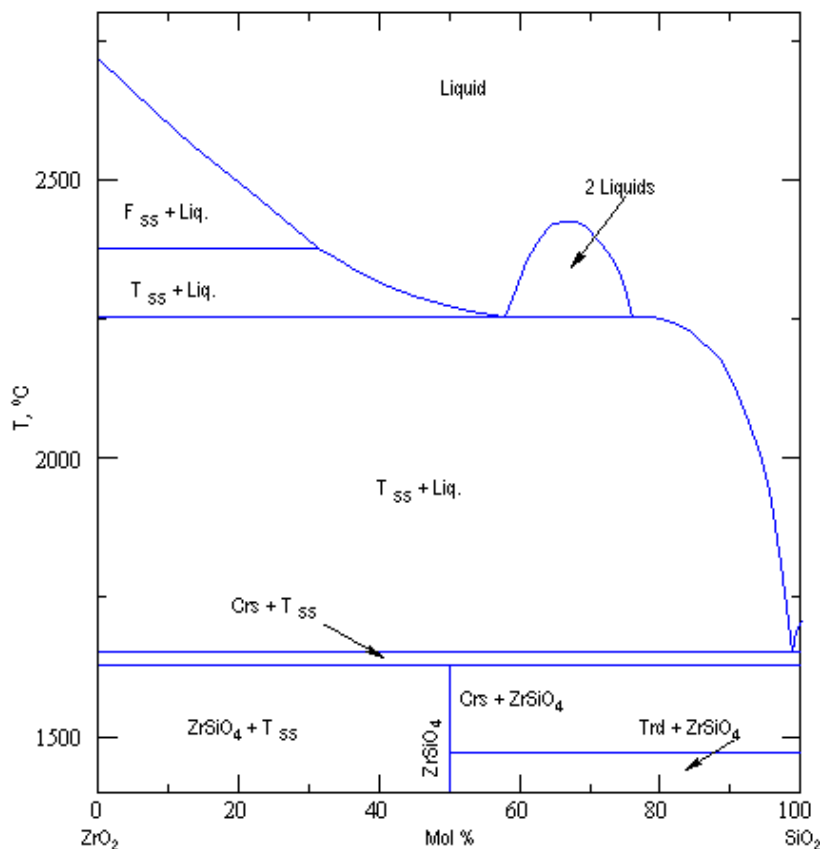


Figure 4-5 : Diagramme de phase $\text{ZrO}_2\text{-SiO}_2$, d'après Ball et al. (1993)

4.1.5.2 Deuxième couche (intérieur de la coulée)

La deuxième couche comprend plus de 97% du volume de la coulée, de 250 μm au dessus de la surface inférieure à 500 μm sous la surface supérieure. Dans cette couche, le refroidissement était trop rapide pour permettre la formation du silicate de zirconium et d'uranium. Le corium est donc formé de $(\text{U,Zr})\text{O}_2$, SiO_2 et de Fe_2SiO_4 . Le diagramme de phase $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ (Cohen & Schaner, 1963 ; Ball et al. , 1993 -Figure 4-6) présente une lacune de miscibilité en dessous de 1950 K entre une solution solide cubique (de type fluorite) riche en uranium (90-95% $_{\text{mol}}$ selon les analyses) et une solution solide tétragonale riche en zircon (de l'ordre de 80% $_{\text{mol}}$). Ceci explique la présence de deux solutions solides différentes dans cette couche. Par ailleurs, le fait qu'on n'ait pas observé de silice cristalline par diffraction des rayons X est consistant avec un refroidissement rapide qui explique la formation de silice vitreuse.

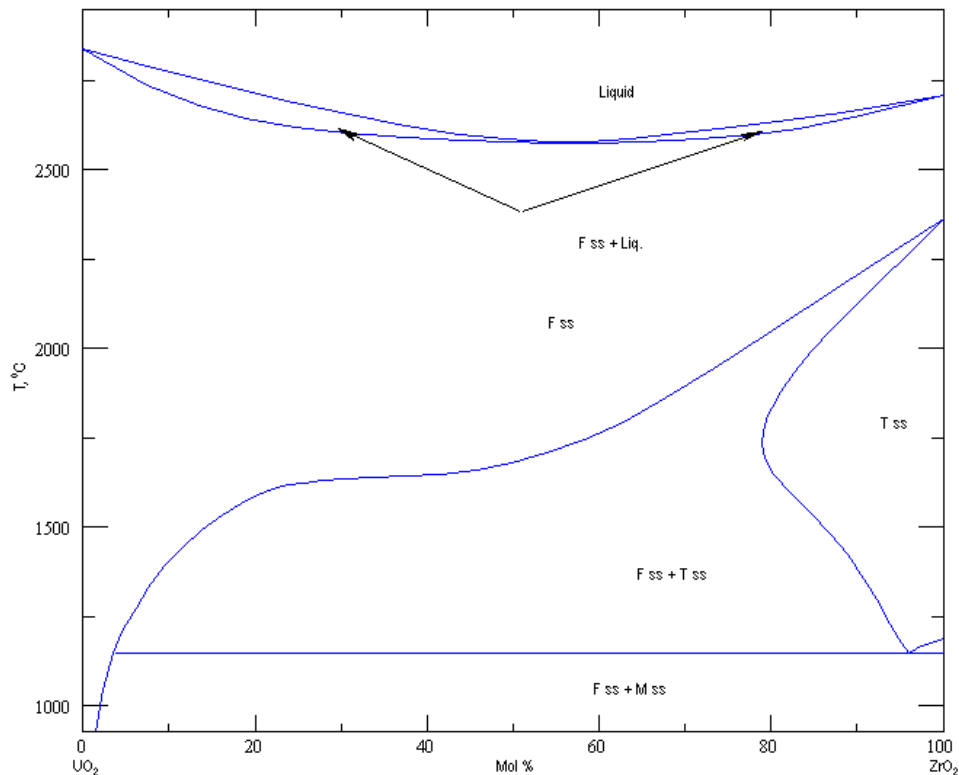


Figure 4-6 : Diagramme de phase $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$, d'après Ball (1993)

4.1.5.3 Troisième couche (haut de la coulée)

La troisième couche, à proximité de la surface, a été refroidie encore plus rapidement que l'intérieur de la coulée. Ceci se traduit par le fait que la solution d'oxydes d'uranium et de zirconium est maintenue dans la forme cristalline correspondant aux hautes températures : solution solide cubique (fluorite) avec un rapport U sur Zr de l'ordre de 0,7.

4.1.5.4 Quatrième couche (surface libre)

La quatrième couche est très fine : 20 à 50 μm sous la surface du corium. Elle est caractérisée par une oxydation par l'air ambiant du fer II en fer III. Elle est de ce fait composée

d'(U,Zr)O₂, de FeO_{1,5} et de silice. Il faut noter que l'interaction entre le corium et l'atmosphère a été limitée à une couche très fine, vraisemblablement du fait du refroidissement très rapide de la surface.

4.2 RECONSTITUTION DES CHEMINS DE SOLIDIFICATION – THERMODYNAMIQUE

Les analyses décrites dans la section précédente, montrent que les phases présentes dans le corium dépendent du type de solidification. Pour y accéder, il faut disposer d'une modélisation thermodynamique du corium. C'est l'objet des bases de données TDBCR puis NUCLEA qui ont été développées ces dernières années. Ces bases serviront à recalculer l'essai d'étalement VE-U1, ce qui permettra d'interpréter les observations présentées au § 4.1.

4.2.1 Modélisation thermodynamique du corium.

Le corium est un mélange composé de nombreux constituants. On ne peut donc se contenter de diagrammes de phases binaires ou ternaires pour estimer les phases présentes à l'équilibre thermodynamique. Il faut avoir recours à l'approche numérique CALPHAD (CALculation of PHase Diagrams) utilisant une base de données thermodynamique et à un logiciel de minimisation de l'énergie de Gibbs pour estimer, pour toute composition, température et pression, les phases à l'équilibre (Hack, 1996).

Par exemple, le code GEMINI2 (Cheynet, 1989) est basé sur une technique d'optimisation générale due à Hooke & Jeeves (1961). Pour déterminer l'équilibre thermochimique d'un système, on minimise l'énergie de Gibbs du système, en tenant en compte les contraintes de conservation de la masse de chaque élément. De ce fait, il faut pouvoir décrire l'énergie de Gibbs en fonction de la température et de la composition pour toutes les phases possibles. Ce calcul nécessite le calcul des fonctions thermodynamiques (énergie, entropie) de tous les constituants possibles (corps purs, solutions) du corium. Pour ce faire, on a collecté et évalué les données disponibles et on les a regroupées dans des bases de données thermodynamiques. Par exemple, dans le cadre des projets européens CIT (Adroguer, 1999) et ENTHALPY (de Bremaecker et al., 2003), THERMODATA a développé les bases TDBCR et NUCLEA pour la R&D sur les accidents graves. NUCLEA est maintenant la base européenne de référence pour le corium. Elle contient le système O-U-Zr/B-C/Ag-In/Fe-Cr-Ni/Al-Ca-Mg-Si/Ba-La-Sr-Ru correspondant aux cas en cuve et hors cuve, auxquels ont été rajoutés l'hydrogène et l'argon, pour les formes gazeuses. En tout, il y a donc actuellement 18+2 éléments dans la base.

Les calculs présentés ci-après ont été réalisés avec la base de données TDBCR981, qui était la plus récente au moment de cette étude.

4.2.2 Chemins de solidification

La composition (en pourcentages massiques) suivante a été utilisée pour recalculer l'essai VE-U1 :

25,5% O ; 38,7% U ; 16,9% Zr ; 9,7% Si ; 8,8% Fe ; 0,2% Ca ; 0,1% Mg ; 0,1% Al

En fonction du type de refroidissement qu'a subi le corium, les hypothèses suivantes ont été effectuées sur le chemin de solidification.

4.2.2.1 Premier chemin de solidification (équilibre + système fermé)

On suppose que le corium est à l'équilibre thermodynamique et qu'il n'a interagi ni avec l'atmosphère, ni avec le substrat. Il s'agit du calcul de base des logiciels de thermodynamique.

4.2.2.2 2° chemin de solidification (Scheil-Gulliver + système fermé)

Du fait du refroidissement rapide (on quantifiera ce que l'on entend par refroidissement rapide au paragraphe 6.2.4.), on peut supposer que la diffusion en phase solide est trop lente pour permettre à ces phases d'atteindre l'équilibre avec le liquide. Pour ce deuxième chemin de solidification, on se place dans l'hypothèse de Scheil (1942) – Gulliver (1922) : on suppose que la diffusion est nulle dans les solides et infinie dans les liquides. Il n'y a donc qu'un équilibre thermodynamique local à la surface des solides mais pas d'équilibre global. En pratique, la solidification est calculée pas à pas, de la température de liquidus à la température de disparition de la dernière goutte de liquideⁱ.

On considère que les solides qui se forment à chaque pas de température ne se modifieront plus et n'interagiront plus avec le liquide lors des pas de température suivants. De ce fait, après chaque pas de température, on retire les phases solides de la composition du corium et le calcul thermodynamique n'est plus effectué que sur la composition de la (des) phase(s) liquide(s). La quantité finale de chaque phase solide est obtenue, après avoir atteint la solidification complète, en additionnant les dépôts correspondants à chaque pas de température. De même que pour le premier chemin de solidification, on considère le corium comme un système thermodynamique fermé.

4.2.2.3 3° chemin de solidification (Scheil Gulliver en dessous de 1900 K + système fermé)

La deuxième couche de la coulée VE-U1 (cœur de la coulée) et la troisième (près de la surface) se différencient par la transition entre une composante réfractaire constituée de deux solutions solides, l'une riche en uranium, l'autre en zirconium, et une seule phase réfractaire de rapport U/Zr constant. Pour expliquer cette transition, on a effectué un calcul en supposant que l'on avait respecté l'équilibre thermodynamique du liquidus à 1900 K, puis qu'en dessous de ce seuil on suivait l'hypothèse de Scheil-Gulliver, les coefficients de diffusion étant devenus trop faibles pour permettre d'atteindre l'équilibre global. Le seuil de température a été choisi entre autour de 1900 K car c'est vers cette température qu'apparaît le zircon ($ZrSiO_4$) comme le montre le diagramme de phase pseudo-binaire (Figure 4-5).

4.2.2.4 4° chemin de solidification (Scheil Gulliver + atmosphère oxydante).

Le dernier chemin de solidification est calculé avec la même méthode que le deuxième (Scheil-Gulliver sur tout l'intervalle de solidification), mais en prenant en compte le pouvoir oxydant de l'atmosphère. Pour ce faire, on rajoute à la composition du corium un mélange constitué de 20 %_{molaire} d'oxygène et de 80 % d'argon. Puisqu'il n'y pas eu d'interaction entre le corium et l'azote de l'air, ce dernier est remplacé, pour le calcul, par de l'argon, présent dans la base de données.

ⁱ Comme l'on n'est pas à l'équilibre thermodynamique, il ne s'agit pas toujours du solidus, par exemple dans le cas de diagrammes de phases binaires en « fourreau » il s'agit du point de fusion le plus froid.

4.2.3 Comparaison calcul-analyses

Le Tableau 4-2 montre que les évolutions générales observées lors de l'analyse des échantillons de la coulée VE-U1 peuvent être reproduites par les quatre chemins de solidification définis précédemment.

Couche de corium	Chemin de solidification	Analyses Exemples de compositions mesurées	Calcul TDBCR981 (fraction massique)
4° couche : Surface libre	4 : Scheil-Gulliver Atmosphère oxydante	$(U_{0.3}, Zr_{0.5}, Fe_{0.2})O_{1.85}$ Fe_2O_3 SiO_2	$(U_{0.52}, Zr_{0.47})O_2$ 53% $(U_{0.14}, Zr_{0.86})O_2$ 3% U_4O_9 4% $ZrSiO_4$ 7% Fe_2O_3 14% SiO_2 18%
3° couche : Haut de la coulée	2 : Scheil-Gulliver système fermé	$(U_{0.33}, Zr_{0.47}, Fe_{0.20})O_{1.83}$ $(U_{0.42}, Zr_{0.55}, Fe_{0.03})O_{1.83}$ SiO_2	$(U_{0.54}, Zr_{0.46})O_{2.00}$ 60 % $(U_{0.17}, Zr_{0.83})O_{2.04}$ 3 % $ZrSiO_4$ 7 % SiO_2 16 % Fe_2SiO_4 7 % Fe_3O_4 7 %
2° couche: Cœur de la coulée	3: Equilibre thermodynamique au dessus de 1900 K Scheil-Gulliver en dessous de 1900 K Système fermé	$(U_{0.78}, Zr_{0.12}, Fe_{0.10})O_{1.87}$ $(U_{0.26}, Zr_{0.65}, Fe_{0.09})O_{1.60}$ SiO_2 $Fe_{1.2}SiO_{3.56}$	$(U_{0.77}, Zr_{0.23})O_{2.02}$ 44 % $(U_{0.18}, Zr_{0.82})O_{2.00}$ 19 % $ZrSiO_4$ 7 % SiO_2 16 % Fe_2SiO_4 7 % Fe_3O_4 7 %
1° couche: Bas de la coulée	Equilibre thermodynamique Système fermé	$(U_{0.85}, Zr_{0.11}, Fe_{0.04})O_{1.69}$ UO_2 $(U_{0.32}, Zr_{0.82})SiO_{3.64}$ $(U_{0.13}, Zr_{0.98})SiO_{3.75}$ SiO_2 $Fe_{2.2}SiO_{3.76}$	UO_2 44 % $ZrSiO_4$ 34 % SiO_2 7 % Fe_2SiO_4 7 % Fe_3O_4 7 %

Tableau 4-2 : Comparaison entre les analyses et les calculs pour la coulée VE-U1

La température du liquidus a été calculée à 2300 K et le solidus est entre 1300 et 1400 K selon le chemin de solidification considéré. L'intervalle de solidification recouvre donc environ mille kelvins, ce qui est le cas pour la majorité des mélanges corium-béton.

Des résultats similaires ont été obtenus pour les autres coulées, à l'exception de la coulée VE-U8, avec un mélange très réfractaire d' UO_2 et de ZrO_2 , pour lequel l'intervalle de solidification est de quelques dizaines de degrés (cf. Figure 4-6).

4.2.3.1 Oxydes de fer

Le Tableau 4-2 montre que l'interaction du corium et de l'atmosphère conduit en l'oxydation de la wüstite (FeO) en hématite (Fe_2O_3). Une des conséquences directe de cette transformation est l'absence de fayalite (FeSiO_4) pour le quatrième chemin de solidification et la quatrième couche de la coulée. Si on prend comme temps caractéristique le temps durant lequel la surface est restée au dessus de la température de solidification des oxydes de fer, soit une minute et comme dimension caractéristique l'épaisseur de la 4^o couche (500 μm), l'ordre de grandeur du coefficient de diffusion de l'oxygène dans la couche de surface est de $5.10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$.

Lorsque la wüstite n'est pas oxydée, elle réagit avec la silice et forme de la fayalite (FeSiO_4), comme le montre les compositions calculées et observées de la première et la deuxième couche (Tableau 4-2). Dans la 3^o couche, en haut de la coulée, le calcul thermodynamique donne une formation de fayalite alors qu'on ne l'a pas observée expérimentalement. Ceci est vraisemblablement dû à la solubilité significative du fer dans l'oxyde mixte $(\text{U,Zr})\text{O}_2$ qui a « consommé » tout le fer disponible. Cet effet n'a pas été pris en compte dans le calcul car la base de données TDBCR981 ne tient pas compte de cette solubilité.

4.2.3.2 Zircon et Tchernobylite

Le Tableau 4-2 confirme que la couche inférieure de la coulée était très proche de l'équilibre thermodynamique global. Dans ce cas, le premier chemin de solidification donne une proportion de 34%_{masse} de ZrSiO_4 , de façon consistante avec les observations. La solubilité de l'uranium dans le silicate de zirconium n'était pas prise en compte par la base de données TDBCR981 et n'a donc pas pu être calculé. Suite à cet essai, THERMODATA a pris en compte dans les versions ultérieures de la base cette solution solide. Il reste néanmoins un doute quant à la limite de solubilité.

Par ailleurs, le pseudo-binaire UO_2 , SiO_2 est mal connu : il n'est basé dans les hautes températures que sur les mesures de Lungu (1966) qui ont été rejetées comme douteuses lors de l'évaluation des diagrammes MO_x - SiO_2 menée par Hudon & Baker (2002). Il est donc nécessaire d'améliorer nos connaissances sur le quaternaire (U, Zr, Si, O) qui est le quaternaire principal pour l'étude des mélanges corium-béton.

4.2.3.3 Oxydes d'uranium et de zirconium

Les deuxièmes et troisièmes chemins de solidification montrent clairement que lorsqu'on néglige la diffusion en phase solide, au moins en dessous de 1900 K, il y a une nette diminution de la fraction de la phase de type zircon au bénéfice des oxydes d'uranium et de zirconium. Cet effet est encore plus prononcé dans les analyses, avec une non-détection de la phase de type zircon (tchernobylite).

Entre les deuxièmes et troisièmes couches, on met en évidence l'effet d'un refroidissement plus rapide par les différences de rapport U/Zr dans les phases observées : A la surface, le refroidissement très rapide ne permet jamais la diffusion en phase solide. Dans ce cas, on trouve un rapport U/Zr de 1 à 1,2 selon le calcul et de l'ordre de 0,7 dans les analyses. Par contre, un refroidissement plus lent permettra la diffusion chimique aux températures les plus élevées de l'intervalle de solidification. La phase cubique se transforme (Figure 4-6) en une phase cubique riche en uranium (rapport U/Zr de 3,3 pour le 3^o chemin de solidification ; 6,6 selon la microsonde et plus de 10 selon la diffraction des rayons X ; les différences entre mesures et calculs sont attribuables à la non prise en compte dans le calcul thermodynamique et dans la loi de Vegard de la présence de fer dans la solution solide) et une phase tétragonale riche en zirconium [rapport U/Zr compris entre 0,2 à 0,4].

Pour les valeurs supérieures à 0,2 du rapport U/Zr, la phase tétragonale est métastable (Figure 4-6). Cette phase métastable a été mise en évidence lors de l'essai VE-U8 avec un corium

constitué d'un mélange de dioxydes d'uranium et de zirconium. Grâce aux analyses quantitatives de diffraction des rayons X, Piluso et al. (2005) ont mis en évidence la formation d'une phase métastable tétragonale de composition $U_{0.4}Zr_{0.6}O_2$. Or, comme l'indique le diagramme pseudobinaire de la Figure 4-6 (Ball et al. , 1993) et les mesures d'activités de Baïchi et al. (2001), la limite de solubilité de l'uranium dans la phase tétragonale n'est que de 20%_{at}, à l'équilibre. Il convient de noter qu'une phase métastable similaire a été observée dans le corium du fond de la cuve du réacteur de Three Mile Island (Brown et al. , 1989). Dans ce cas là, l'hypothèse d'équilibre thermodynamique, même local, n'est plus applicable. Néanmoins, les calculs thermodynamiques à l'équilibre local ou global ont permis d'interpréter globalement les résultats des analyses, et nous devons nous en contenter, en l'absence de modèles prenant en compte la métastabilité pour ces mélanges avec un grand nombre de constituants à haute température.

Enfin, la phase U_4O_9 est obtenue par le calcul (en faible proportion) mais n'a pas été observée expérimentalement, vraisemblablement parce que l'oxydation était légèrement moins importante que dans les conditions du calcul.

4.2.4 Discussion

En conclusion, les principales différences entre les quatre couches de la coulée, qui ont été trouvées expérimentalement, ont été retrouvées à l'aide de quatre calculs thermodynamiques prenant des hypothèses adaptées en terme de vitesse de refroidissement et d'interaction avec l'atmosphère. Les principales caractéristiques de ces couches sont :

1. la présence de tchernobylite, $(U,Zr)SiO_4$, est détectée uniquement dans une couche inférieure de moins de 1 mm d'épaisseur.
2. le fer est sous forme ferreuse dans toute l'épaisseur de la coulée à l'exception d'une fine couche de surface où il est sous forme ferrique.
3. la dissociation d'une phase $(U,Zr)O_2$ en deux phases riches respectivement en uraninite et en zirconne marque la transition entre la surface supérieure, refroidie plus rapidement, et le cœur de la coulée.

Ces différences sont interprétées comme les conséquences des changements de conditions de solidification entre les couches. Cette interprétation est validée grâce à une méthodologie de calcul thermodynamiques avec des hypothèses simplificatrices : équilibre thermodynamique global, hypothèse de Scheil-Gulliver, système fermé ou en contact avec l'atmosphère.

On a pu montrer ainsi, et ce sera confirmé par les essais suivants, que la plus grande partie de la coulée de corium n'était pas à l'équilibre thermodynamique global et que l'effet de l'atmosphère était limité à des couches minces aux surfaces du corium. Par ailleurs, l'analyse de ces essais a permis d'améliorer la base de données thermodynamique, en y introduisant la solubilité en phase solide du fer dans l'oxyde d'uranium et de zirconium et de l'uranium dans le silicate de zirconium.

Une des différences majeures entre les coulées en simulants et celles contenant du dioxyde d'uranium est la présence d'une forte porosité dans les coulées avec de l'oxyde d'uranium. Cette porosité ayant été observée même au-dessus de substrats étanches ne peut provenir que d'une source de gaz à l'intérieur de la coulée. Les hypothèses les plus plausibles tendent à considérer la formation de phases gazeuses telles que UO_3 et SiO . Les bases de données thermodynamiques devront être améliorées pour mieux tenir compte de la formation de ces espèces volatiles.

4.3 CONCLUSIONS

Les analyses chimiques des coulées VULCANO ont mis en évidence l'homogénéité de la composition élémentaire des coulées. La solidification ne crée pas une zone pâteuse

dendritique, mais plutôt une suspension de solides dans le liquide résiduel, comme pour les alliages semi-solides (Flemmings, 1991).

Par contre, la microstructure et les phases en présence varient fortement selon l'axe vertical. Ces différences peuvent être expliquées par une modélisation thermodynamique des chemins de solidification du corium à différentes altitudes.

La comparaison entre les analyses et les calculs thermodynamiques permettent aussi de valider la base de données thermodynamique sur corium multi-constituants (de Bremaecker et al. , 2002). Cela a permis, par exemple de prendre en compte dans la base la solution solide d'uranium dans le zircon (la « tchernobylite ») même si des doutes persistent quant à la limite de solubilité de l'uranium. De même ces analyses tendent à montrer une dissolution significative du fer dans l'(U,Zr)O₂ qui n'était pas pris en compte dans la base de données TDBCR981, mais qui a été introduite dans les versions ultérieures de la base telle que NUCLEA051.

Le calcul thermodynamique, validé par la confrontation avec l'état final observé lors des analyses matériaux, permet d'estimer à chaque instant la composition et la proportion des phases en présence dans les coulées et donc l'évolution de ses propriétés physiques (Journeau et al. , 1999). Ceci nous permettra ensuite d'étudier les phénomènes se produisant lors de son refroidissement. Pour ce faire, nous devons négliger la surfusion et supposer que la solidification s'effectue à l'équilibre thermodynamique local. Huppert et al. (1984) estiment la surfusion à 50-70°C pour des laves komatiites peu visqueuses (0,1 –1 Pa.s) refroidies de plusieurs centaines de degrés par heures. La présence de phases métastables nous indique que le corium ne reste pas toujours à l'équilibre. Néanmoins, l'absence de données expérimentales sur la surfusion du corium nous a amené à négliger cet effet dans la suite de cette étude.

Il faut aussi noter que les phases spécifiques qui ont été observées dans le corium de TMI-2 (la phase tétragonale métastable) et de Tchernobyl (la tchernobylite) ont été toutes les deux synthétisées lors des essais d'étalement VULCANO.

En conclusion, les analyses de matériaux poussées pour ces essais ont montré que des essais globaux en matériaux prototypes pouvaient fournir des informations précieuses sur les processus physiques ainsi que contribuer à la validation des bases thermodynamiques.

REFERENCES DU CHAPITRE 4 :

- Adroguer, B., 1999, Corium Interactions and Thermochemistry. CIT Project, *FISA-99 Symposium*, EUR 19532 EN, Off. Official Publ. Eur. Comm., Luxembourg.
- Albinati, A., Cooper, M.J., Rouse, K.D., Thomas, M.W. , Willis, B.T. M., 1980, Temperature dependence of the atomic thermal displacements in UO_2 : a test case for the Rietveld profile-refinement procedure, *Acta Cryst.*, A36, 265-270.
- Anderson, E.B., Burakov, B.E., Pazukhin, E.M., 1993, High uranium zircon from “Chernobyl Lavas”, *Radiochim. Acta*, 60, 149-151.
- Baïchi, M., Chatillon, C., Guèneau, C., Chatain, S., 2001, Mass spectrometric study of UO_2 - ZrO_2 pseudo-binary system, *J. Nucl. Mater.*, 294, 84-87.
- Ball, R. G. J., Mignanelli, M. A., Barry, T. I., J. A. Gisby, 1993, The calculation of phase equilibria of oxide core-concrete systems, *J. Nucl. Mater.*, 201, 238-249.
- Brown, A., McIntyre, G. J., Gräslund , C., 1989, Analysis of crystalline phases in core bore materials from Three Mile Island Unit 2, *Nucl. Technol.* 187, 137-145.
- Butterman, W. C. , Foster, W. R., 1967, Zircon stability and the ZrO_2 - SiO_2 phase diagram, *Am. Mineral.*, 52, 880-885.
- Cheyne, B., 1989, Complex Chemical Equilibria Calculations with the THERMODYNAMIC System, *Computer Software in Chemical and Extractive Metallurgy*, Ed. par W.T. Thomson, Pergamon Press, New York, pp. 31-44.
- Cohen, I., Schaner, B. E., A metallographic and X-ray study of the UO_2 - ZrO_2 system, *J. Nucl. Mater.*, 9, 18-52 (1963).
- De Bremaecker, A., Barrachin, M., Jacq, F., Defoort, F., Mignanelli, M., Chevalier, P. Y., Cheynet, B., Hellmann, S., Funke, F., Journeau, C., Piluso, P., Marguet, S., Hozer, Z., Vrtilkova, V., Belovsky, L., Sannen, L., Verwert, M., Duvigneaud, P.H., Mwanba, K., Bouchama, H., Ronneau, C., 2002. European Nuclear Thermodynamic Database validated and Applicable in Severe Accident Codes (ENTHALPY). In: Van Goetem, G., Zurita, A., Martin Bermejo, J., Manolatos, P., Bischoff, H. (Eds), *FISA 2001 EU Research in reactor safety*, Office Official Publ. Eur. Comm., Luxembourg, pp. 261-273.
- De Bremaecker, A., Barrachin, M., Jacq, F., Defoort, F., Mignanelli, M., Chevalier, P.Y., Cheynet, B., Hellmann, S., Funke, F., Journeau, C., Piluso, P., Marguet, S., Hozer, Z., Vrtilkova, V., Belovsky, L., Sannen, L., Verwerft, M., Duvignaud, P.-H., Mwamba, K., Bouchama, H., Ronneau, C., 2003, European Nuclear Thermodynamic Database for In- & Ex-Vessel applications (ENTHALPY). In: *Proc. Symposium FISA 2003, EU Research in Reactor Safety*, Luxembourg, 10-12/11/2003.
- Duco, J., Trotabas, M., 1989, Examination of Three Mile Island Unit 2 Core Materials at Commissariat à l’Energie Atomique, *Nucl. Technol.*, 87, 104-119.

- Edwards, R.K., Chandrasekharaiah, M.S., Danielson P.M., 1969, The congruently evaporating compositions of urania, *High Temp Sci.*, 1, 98-113.
- Flemmings, M.C., 1991, Behavior of metal alloys in the semisolid state. *Metall. Trans.* 22B, 269-293.
- Fuchs, L.H., Hoekstra, H.R., 1959, The preparation and properties of uranium (IV) silicate, *Am. Mineral.* 52, 1057-1063.
- Gulliver, G.M., 1922, *Metallic Alloys*, Griffiths, Londres.
- Hack, K., 1996, *The SGTE Casebook: Thermodynamics at work*, The Institute of Materials, Londres.
- Hudon, P., Baker, D.R., 2002, The nature of phase separation in binary oxide melts and glasses. I. Silicate systems, *J. Non-Cryst. Solids*, 303, 299-345.
- Huppert, H.E., Sparks, R.S.J., Turner, J.S., Arndt, N.T., 1984, Emplacement and cooling of komatiite lavas, *Nature*, 309, 19-22.
- Hooke, R., Jeeves, T.A., 1961, Direct Search" Solution of Numerical and Statistical Problems, *J. Assoc. Computing Machinery*, 8, 212-229.
- Journeau, C., Sudreau, F., Gatt, J.-M., Cognet, G., 1999, Thermal, physico-chemical and rheological boundary layers in multi-component oxidic melt spreads, *Int. J. Therm. Sci.*, 38, 879-891.
- Journeau, C., Sudreau, F., Magne, S., Cognet, G., 2001, Physico-chemical analyses and solidification path reconstruction of multicomponent oxidic spread melts, *Mater. Sci. Eng.* A299, 249-266.
- Kim, D.-J. , 1989, Lattice Parameters, Ionic Conductivities, and Solubility Limits in Fluorite-Structure MO₂ Oxide [M = Hf⁴⁺, Zr⁴⁺, Ce⁴⁺, Th⁴⁺, U⁴⁺] Solid Solutions, *J. Am. Ceram. Soc.*, 72, 1415 – 1421.
- Lungu, S., 1966, Etude des courbes de liquidus et des propriétés thermodynamiques des systèmes SiO₂-ThO₂ et SiO₂-ThO₂-UO₂, *J. Nucl. Mater.* 19, 155-159.
- Mumpton, F. A., Roy, R., 1961, Hydrothermal stability studies of the zircon-thorite group, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 21, 217-238.
- Pazukhin, E.M., 1994, Fuel-containing lavas of the Chernobyl NPP fourth block: topography, physicochemical properties and formation scenario, *Radiochem.*, 36, 109-154.
- Pazukhin, E.M., 2005, Communication privée.
- etr v, ., il h, ., r ž k, ., ir-lift effect in the induction melting of model corium alloys, *Nucleon*, 2, 39.
- Piluso P., Trillon G., Journeau C., 2005, The UO₂-ZrO₂ system at high temperature (T>2000K): importance of the meta-stable phases under severe accident conditions, *J. Nucl. Mat.* 344, 259–264.

Scheil, E., 1942, Bemerkungen zur Schichtkristallbildung, *Z. Metallk.*, 34:70-73.

Stern, T.W., Steiff, L.R., 1954, Preliminary description of coffinite – A new uranium mineral, *Nucl. Sci. Abstr.*, 8, 62.

Trillon, G., 2004, Analyse des phases du corium par diffraction des rayons X, Rapport CEA-R-6045.

Ushakov, S.V., Gong, W., Yagovkina, K.B., Lutze, W., Ewing, R.C., 1999, Solid solutions of Ce, U, and Th in zircon, *Ceram. Trans.*, 93, 357-363.

Chapitre 5 : La rhéologie du Corium

Comme nous l'avons décrit dans le paragraphe 2.4, l'étalement est piloté par la compétition entre les forces hydrodynamiques et les changements de rhéologie du corium dus à son refroidissement. C'est pourquoi, la connaissance de la rhéologie du corium est un élément important de ce travail de recherche (cf. Ramacciotti, 1999, Ramacciotti et al. 2001).

En suivant la méthodologie proposée par Ryerson et al. (1988) pour les laves, puis par Seiler & Ganzhorn (1997) pour le corium, nous étudierons, dans un premier temps, la rhéologie des phases liquides du corium, en distinguant les compositions sans et avec silice, car du fait de la formation de réseaux, la silice joue un rôle singulier pour la rhéologie de ces bains. Puis nous nous intéresserons à la rhéologie de mélanges en cours de solidification sous cisaillement, par lesquels nous exprimerons la viscosité comme le produit de la viscosité de la phase liquide par un terme prenant en compte la présence des particules solides. Enfin, nous établirons une méthodologie pour l'estimation de la viscosité d'un corium.

5.1 RHEOLOGIE DES PHASES LIQUIDES

5.1.1 Mélanges sans silice

Sudreau et Cognet (1997) ont montré, pour les mélanges ne contenant pas de silice, que le calcul de la viscosité au-dessus de la température de liquidus à l'aide de la formule théorique d'Andrade(1934) basée sur les données moléculaires donnait satisfaction :

$$\eta = K. (M.T_m)^{1/2}.V_M^{-2/3}.exp[(Q_n/R).(T^{-1} - T_m^{-1})] \quad (4-1)$$

où M est la masse molaire et V_M le volume molaire qui sont calculés, dans le cas de mélanges, à l'aide des relations:

$$M = \sum_i \chi_i.M_i \quad (4-2)$$

$$V_M = \sum_i \chi_i.V_i = \sum_i \chi_i.M_i/\rho_i \quad (4-3)$$

où χ_i , M_i , V_i et ρ_i sont respectivement la fraction molaire, la masse molaire, le volume molaire et la densité du constituant i . La densité considérée est celle du constituant i , sous forme liquide, à sa température de fusion $T_{m,i}$.

Pour les mélanges, la température de fusion est prise égale à la température de liquidus. Ainsi, pour calculer l'évolution de la viscosité d'un mélange lors de son refroidissement, deux étapes sont à distinguer. Tant que la température du mélange est supérieure à sa température de liquidus, la composition de la phase liquide ne change pas et T_m est constant entre deux pas de calcul. Il faut donc déterminer la température du liquidus du mélange et l'utiliser dans la relation (4-2). Lorsque la température devient inférieure à la température de liquidus du mélange, la composition du liquide suit la courbe du liquidus et change donc continûment. En revanche, il n'est pas nécessaire de calculer T_m car, par définition, la température du liquide est égale à T_m . Dans ce cas, la formule simplifiée suivante est utilisée :

$$\eta = K. (M.T)^{1/2}.V_M^{-2/3} \quad (4-4)$$

Notons néanmoins que dans le cas où des liquides immiscibles coexistent à l'équilibre thermodynamique, la température de liquidus est la même pour les deux et est égale à la température de monotectique.

L'énergie d'activation, Q_n , est calculée, dans le cas des alliages métalliques, en utilisant la formule d'Hirai et al. (1993) :

$$Q_n = 2,65.T_m^{1,272} \quad (4-5)$$

Dans le cas des mélanges d'oxydes, il a été montré par Sudreau & Cognet(1997) que ni la formule proposée par Hirai, ni celle proposée par Grosse & Kirschenbaum (1963) ne conviennent pour calculer l'énergie d'activation de la viscosité des liquides de type « corium ». Dans ce cas, il est proposé d'utiliser, dans l'attente de mesures de viscosités faites sur des corium liquides, une énergie d'activation moyenne calculée de la façon suivante :

$$Q_n = \sum_i y(i) . Q(i) \quad (4-6)$$

où $y(i)$ est la fraction molaire et $Q(i)$ l'énergie d'activation de la viscosité de l'espèce i . Les valeurs des $Q(i)$ utilisées sont calculées avec la formule d'Hirai et al. (2-12) pour les espèces métalliques et pour la chaux et la magnésie, ou sont prises égales à $36,36 \text{ kJ.mol}^{-1}$ pour la wüstite (Mills & Keene, 1997) et, par extension, pour l'hématite, à $514,4 \text{ kJ.mol}^{-1}$ pour la silice (Urbain, 1972), à 35 kJ.mol^{-1} pour l'oxyde d'uranium – d'après les mesures de Tsai & Olander (1972) et de Woodley (1974) -. Pour la zircone, en l'absence de données expérimentales sur le corps pur, Sudreau & Cognet (1997) recommandent d'utiliser la valeur de 247 kJ.mol^{-1} , estimée à partir de deux mélanges (U,Zr,O).

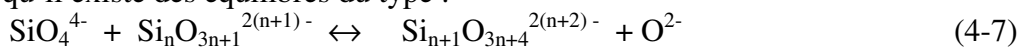
On recommande d'utiliser pour la formule 4-1, le préfacteur K proposé par Hirai et al. (1993), dans le cas des alliages métalliques, $0,171.10^{-6} \text{ kg}^{1/2}.\text{m.K}^{-1/2}.\text{s}^{-1}$.

Sinon, pour les mélanges liquides de type oxyde, on recommande celui de Nazaré et al. (1976) : $0,194.10^{-6} \text{ g}^{1/2}.\text{m.K}^{-1/2}.\text{s}^{-1}$.

Ces corrélations ont été validées sur les données expérimentales réalisées sur des mélanges $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2\text{-Zr(O)}$ par Abalin et al. (2000).

5.1.2 Mélanges contenant de la silice

Depuis les travaux d'Endell & Hellbrügge (1942) puis de Bockris et al. (1955), on modélise la structure des silicates fondus en considérant que les anions SiO_4^{4-} peuvent polymériser et former des complexes tels que $\text{Si}_3\text{O}_9^{6-}$, $\text{Si}_4\text{O}_{12}^{8-}$, $\text{Si}_6\text{O}_{15}^{6-}$, etc. (Figure 5-1). Urbain (1972) en a déduit qu'il existe des équilibres du type :



dont la constante d'équilibre dépend de la composition du bain et de la température.

Par condensation, ces chaînes peuvent s'assembler et former des plans et un réseau tridimensionnel. La présence de ces cations de grande dimension et/ou de ces réseaux explique la viscosité élevée que l'on observe pour les bains riches en silice. Par contre, après cristallisation, on n'a pas observé ces structures lors de l'analyse des échantillons de corium (§ 4.1).

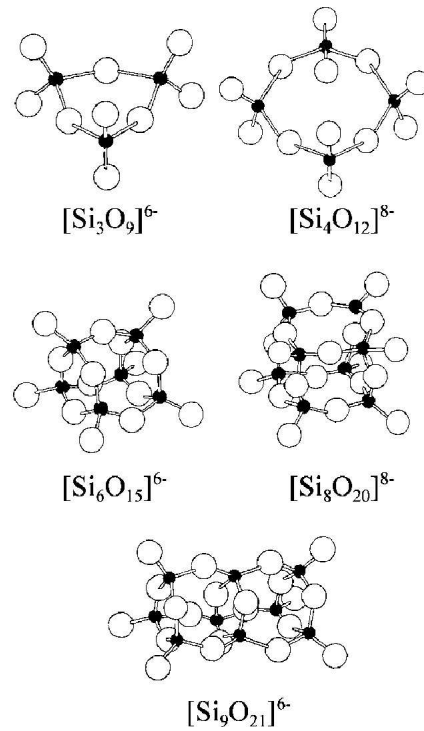


Figure 5-1 : Représentation spatiale des anions silicium (pont noir)-oxygène (ronds blancs) d'après Bockris et al. (1955)

Certains cations (tels que Na^+ , Ca^{2+} , ...) présents dans le bain vont rompre les chaînes entre tétraèdres de silice, et de ce fait diminuer la viscosité du fluide.

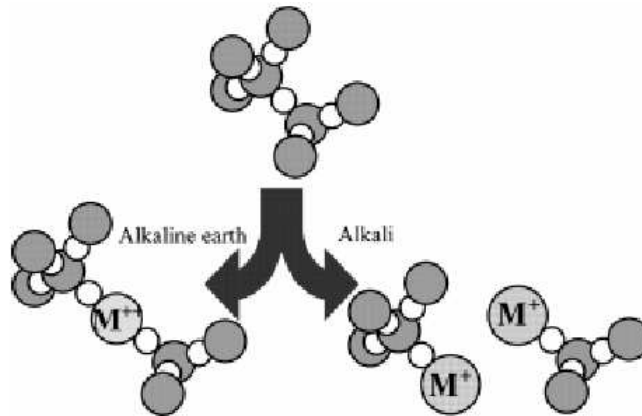
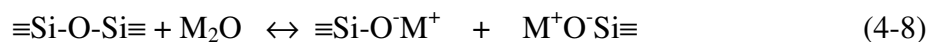


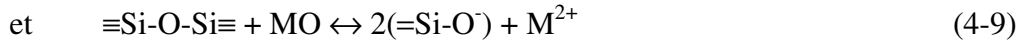
Figure 5-2 : Rôle des ions alcalino-terreux (M^{2+}) et alcalins (M^+) dans la modification des réseaux de silice d'après Vargas et al. (2001).

Les espèces présentes en solution dans le bain silicaté peuvent être regroupées en trois familles, selon la classification proposée par Carron (1969) :

- Les formateurs de réseaux (SiO_4^{4-} dans notre cas) qui forment des structures tridimensionnelles ;
- Les modificateurs (tels que Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Fe^{2+} , Cr^{3+} ainsi que H^+ provenant de l'eau dissoute) qui tendent à détruire le réseau. D'après Vargas et al. (2001), les ions alcalins M^+ vont rompre la liaison entre deux tétraèdres de silice (dépolymérisation) :



alors que pour des ions alcalinoterreux M^{2+} , on observe seulement un relâchement de la structure en s'intercalant entre deux liaisons Si-O (Figure 5-2) selon les deux mécanismes suivants :



Selon Hudon & Baker (2002), les modificateurs de réseaux sont des cations ayant un rayon ionique supérieurs à 87.2 pm et un nombre de coordination supérieur à 5.

- Les amphotères (Al^{3+} , Fe^{3+}) sont des ions qui peuvent agir comme des formateurs ou des modificateurs de réseau en fonction de leur nombre de coordination dans le bain, qui varie en fonction de la composition du bain. D'après Hudon & Baker (2002), les cations ayant un rayon ionique inférieur à 87.2 pm en coordinence 6 (ou 78.6 pm en coordinence 4) doivent être considérés comme des amphotères.

Vargas et al. (2001) présentent une revue des différents modèles proposés pour estimer la viscosité de bains de silicates et une base de données expérimentales sur lesquelles valider ces différentes lois. Il convient de noter que de très nombreux modèles s'intéressent aux silicates en dessous de leur liquidus, et même autour de la transition vitreuse - voir par ex. les travaux regroupés par Stebbins et al. (1995) – alors que nous ne nous intéressons qu'à la rhéologie de mélanges corium-béton au dessus du liquidus, ou au liquidus de la phase liquide résiduelle.

Pour ce type de bains, nous avons, de ce fait, préconisé d'utiliser l'extension proposée par Ramacciotti (1999, 2001) du modèle empirique d'Urbain (1987) qui permet d'estimer la viscosité à partir de la température et de la répartition entre formateurs, modificateurs et amphotères [des modèles plus précis nécessiteraient la connaissance d'un nombre significatif de mesures avec U^{4+} et Zr^{4+} , éléments constitutifs du corium pour lesquels on dispose de peu de données, car il n'apparaissent qu'à l'état de traces dans les fluides étudiés pour les autres domaines d'application (laves, magmas, laitiers, cendres)].

La viscosité est exprimée en suivant la formule de Weymann (1962) :

$$\eta = 0,1 \cdot AT \exp(1000B / T) \quad (4-10)$$

A partir de mesures de viscosités pour 48 compositions de bains silicatés, Urbain (1987) a montré que les paramètres A et B étaient liés par la corrélation :

$$-\ln A = 0,29 B + 11,57 \quad (4-11)$$

Pour le paramètre B, Urbain (1987) a proposé l'abaque de la Figure 5-3, que l'on peut approcher par :

$$B = B_0 + B_1 \cdot N + B_2 \cdot N^2 + B_3 \cdot N^3 \quad (4-12)$$

Où N est la somme des fractions molaires de formateursⁱ,

X_M celle des modificateurs et X_A des amphotères.

$$\alpha = \frac{X_M}{X_M + X_A} \text{ et}$$

ⁱ Les fractions molaires des formateurs de valence différente de 2 est obtenu en se ramenant à une mole d'oxygène (Urbain, 1985).

$$B_0 = 13,2 + 41,5.\alpha - 45.\alpha^2,$$

$$B_1 = 30,5 - 117,2.\alpha + 130.\alpha^2,$$

$$B_2 = -40,4 + 232,1.\alpha - 298,6.\alpha^2,$$

$$B_3 = 60,8 - 156,4.\alpha + 213,6.\alpha^2$$

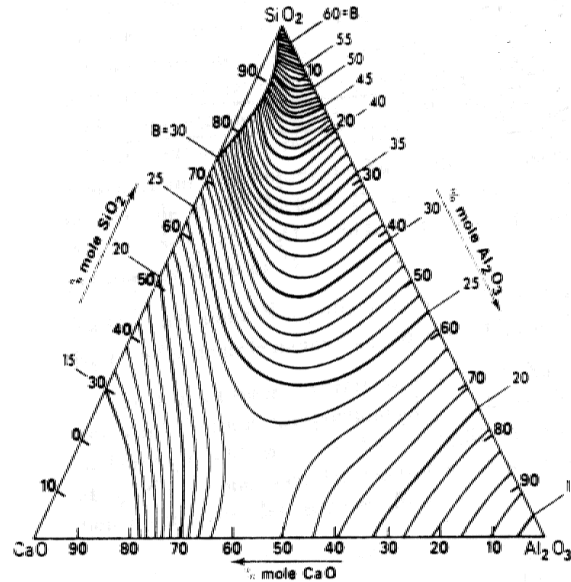


Figure 5-3 : Abaque d'Urbain (1987) pour le paramètre B de la formule (4-8) SiO₂ représente les formateurs, CaO les modificateurs et Al₂O₃ les amphotères.

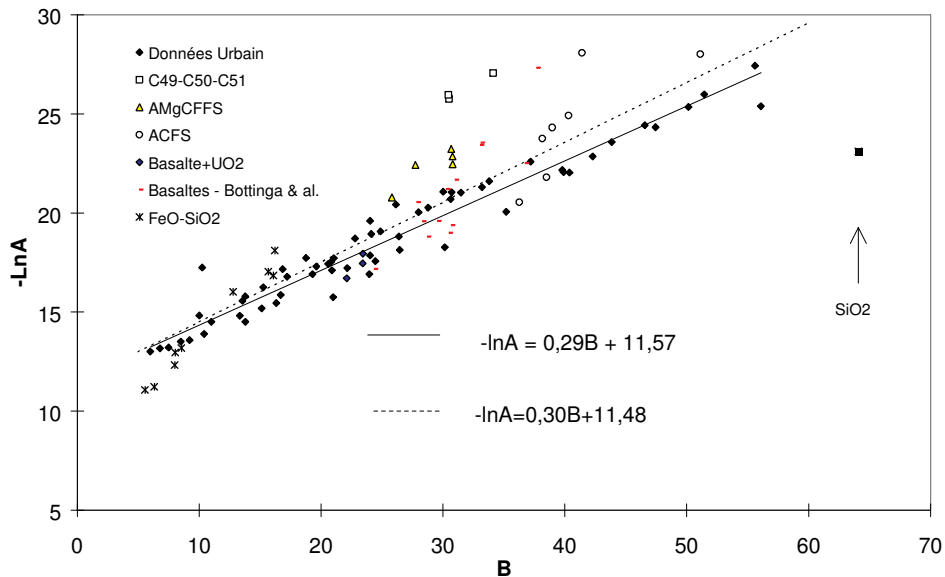


Figure 5-4 : Validation de la loi empirique d'Urbain (1987)

Nous avons vérifié (Figure 5-4) la validité de la corrélation (4-5) sur une base de données expérimentale plus étendue que celle d'Urbain (1987) : mélanges C49-C50-C51 riches en oxydes de fer (Urbain et al. , 1981) ; AMgCFFS [Al₂O₃, MgO, CaO, FeO, Fe₂O₃ (0,1 à 0,6%), SiO₂] (Ryan & Blevins, 1987) ;ACFS [Al₂O₃, CaO, FeO, SiO₂] (Ryan & Blevins, 1987) ; Basaltes + UO₂ (Leibowitz et al. 1974). On remarque que la silice pure ne suit par contre pas cette relation, contrairement aux autres mélanges étudiés, y compris les mélanges à forts taux

d'oxyde de fer, dont on verra ci-après qu'ils ne suivent pas l'abaque de la Figure 5-3, mais vérifient néanmoins la corrélation (4-4).

Ramacciotti et al. (2001) ont validé la possibilité d'utiliser cette approche, en considérant les oxydes d'uranium et de zirconium comme des modificateurs. Par exemple, pour les mélanges basalte – UO₂ dont Leibowitz et al. (1974) ont mesuré la viscosité, cette modélisation permet de la recalculer d'une manière satisfaisante en supposant que l'UO₂ est un modificateur de réseau (Figure 5-5). Ceci est conforme à la classification de Hudon & Baker (2002), puisque le rayon ionique d'U⁴⁺ est de 89 pm en coordination 6 et 100 pm en coordination 8.

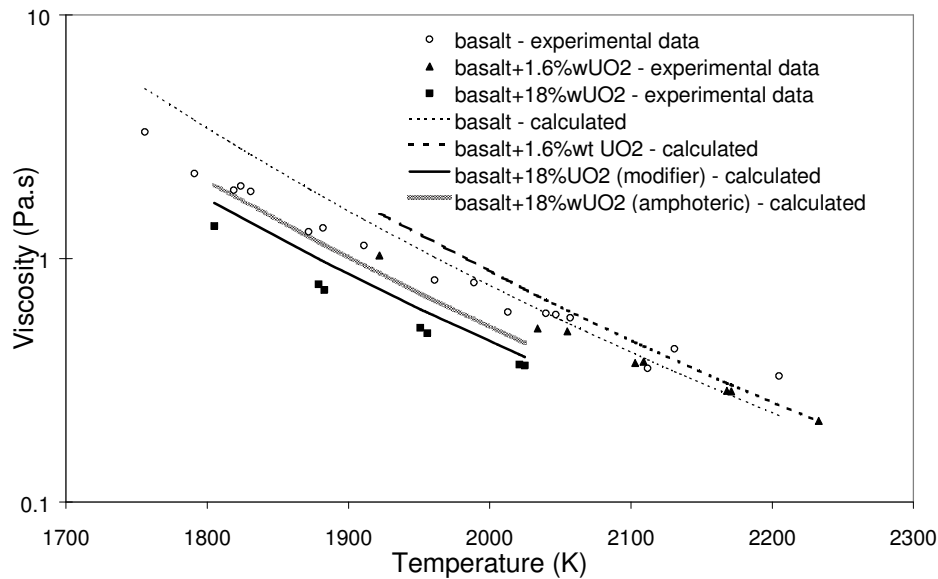


Figure 5-5 : Comparaison mesure- estimation pour des mélanges basalte –UO₂

Pour ce qui est de Zr⁴⁺, en l'absence de données sur des silicates avec des teneurs significatives en zircon, nous avons choisi de le classer comme modificateur, en suivant Urbain et al. (1981) – bien que la plus grande concentration en zircon dans les mélanges qu'il ait analysés soit de 0.14 %_{masse} – alors que Hudon & Baker (2002) le considèrent comme amphotère avec des rayons ioniques de 72 et 84 pm pour les coordinations 6 et 8 respectivement. Ceci met en évidence, comme pour les mélanges sans silice, la nécessité de réaliser des mesures de viscosité dans des bains contenant des teneurs significatives en zircon. C'est l'objectif de l'installation VITI (Piluso et al. , 2002).

Pour les oxydes de fer, on considère que la wüstite (FeO) est un modificateur et que l'hématite est un amphotère. Ceci entraîne une augmentation de la viscosité du corium dans la couche supérieure oxydée (§ 5.1.2) par rapport aux autres couches où l'on trouve de la wüstite et de la fayalite.

La principale limitation de cette approche concerne les mélanges contenant plus de 20 %_{masse} d'oxydes de fer, pour lesquels des écarts importants ont été observés entre le calcul et les mesures, mais ils sont peu probables lors d'un scénario d'accident grave.

Pour tenter de surmonter ces difficultés, nous avons testé néanmoins le modèle que Seetharaman & Du Sichen (1997) ont proposé pour certains mélanges de silicates. Il est basé sur l'énergie de Gibbs d'activation du mélange représentant le corium. L'expression de la viscosité est donnée par la formule :

$$\eta = \frac{\rho N h}{M} \exp\left(\frac{\Delta G^*}{RT}\right) \quad (4-13)$$

où ρ est la masse volumique du mélange

M est la masse moléculaire du mélange

N est la constante d'Avogadro, $N = 6,02.10^{23} \text{ mole}^{-1}$

h est la constante de Planck, $h = 6,6265.10^{-34} \text{ N.m.s}$

T représente la température en K

R est la constante des gaz parfaits, $R = 8,31 \text{ J.K}^{-1}$

ΔG^* représente l'énergie de Gibbs d'activation fonction de la température et de la composition du mélange

Minck (2001) a appliqué ce modèle aux données de la littérature pour les bains silicatés et le corium, en utilisant l'énergie de Gibbs d'activation déterminée à partir de la base de données thermodynamiques TDBCR001 (Thermodata). Il s'avère que les résultats obtenus par cette approche ne sont pas très satisfaisants, en particulier en présence de fortes concentrations d'oxyde de fer. Nous maintenons donc notre préconisation du modèle d'Urbain étendue par Ramacciotti.

5.2 RHEOLOGIE DES MELANGES EN COURS DE SOLIDIFICATION

Dans cette partie, nous supposons connue la viscosité de la phase liquide résiduelle et étudions la rhéologie du mélange constitué de cette phase liquide et des solides qui se sont formés dans son sein. Flemmings (1991) a montré que le cisaillement avait un effet déterminant sur la forme des particules et par conséquent sur la rhéologie de la suspension. Outre le cas du corium, ce type de configurations se retrouve pour les laves et magmas (Shaw, 1969 ; Pinkerton & Norton, 1995) et pour les alliages dits semi-solides utilisés dans les procédés de rhéomoulage, rhéocoulée (Flemmings, 1991). On emploiera dans ce mémoire le terme de *semi-solide* pour désigner la suspension de solides dans un liquide en cours de solidification soumis à un cisaillement.

5.2.1 Synthèse bibliographique

Auteur(s)	Expression
Einstein (1911)	$\eta_{rel} \approx 1 + 2,5 \phi$ (4-14)
Arrhenius (1917)	$\eta_{rel} \approx e^{2,5\phi}$ (4-15)
Roscoe (1952)	$\eta_{rel} \approx (1 - \phi / \phi_{emp})^{-2,5}$ (4-16)
Mooney (1951)	$\eta_{rel} \approx e^{\frac{2,5\phi}{1 - \phi / \phi_{emp}}}$ (4-17)
Krieger & Dougherty (1959)	$\eta_{rel} \approx (1 - \phi / \phi_{emp})^{-2,5\phi_{emp}}$ (4-18)
Thomas (1965)	$\eta_{rel} \approx 1 + 2,75\phi + 10,05\phi^2 + 0,00273e^{16,6\phi}$ (4-19)
Chong et al. (1971)	$\eta_{rel} \approx \left(1 + \frac{0,75 \cdot \phi / \phi_{emp}}{1 - \phi / \phi_{emp}}\right)^2 ; \phi_{emp} = 0,55$ (4-20)
Batchelor (1977)	$\eta_{rel} \approx 1 + 2,5\phi + 6,2\phi^2$ (4-21)
Brady (1993)	$\eta_{rel} \approx 1,3 (1 - \phi / \phi_{emp})^{-2}$ (4-22)

Tableau 5-1: Lois de viscosités pour des suspensions de sphères dures;

ϕ : fraction volumique de solide, ϕ_{emp} : fraction d'empilement ; η_{rel} : viscosité relative ($\eta/\eta_{liquide}$)

La viscosité des suspensions de sphères peut servir de modèle simplifié à la base de notre études. Depuis Einstein (1911), de nombreux auteurs ont proposés des lois donnant la viscosité relative η_{rel} des suspensions (rapport entre la viscosité apparente de la suspension et celle de la phase suspendante) en fonction de la fraction volumique de solide et éventuellement de la fraction d'empilement (fraction solide maximale possible, vu la forme et la granulométrie des particules). Le Tableau 5-1 récapitule ces différentes lois. Certaines ont été dérivées théoriquement alors que d'autres ne sont que des corrélations.

Pour des particules non sphériques, d'autres expressions existent (voir par. ex. Douglas & Garboczi, 1995). La viscosité de la suspension sera d'autant plus élevée que la forme de ces particules s'éloignera de celle d'une sphère.

Néanmoins, l'étude de la rhéologie des mélanges semi-solides en cours de solidification montre que ces lois ne sont pas applicables à ces configurations. Deux configurations académiques sont étudiées généralement pour les semi-solides : soit le semi-solide est étudié à une température fixe, entre le solidus et le liquidus, soit sa viscosité apparente est mesurée alors qu'il se refroidit (généralement avec une vitesse de refroidissement constant) en étant soumis à un cisaillement (généralement de taux constant). Nous allons nous consacrer à ce deuxième cas, qui s'approche le plus de ce que subit le corium lors d'une phase d'étalement.

Dans sa synthèse sur les alliages semi-solides, Flemmings (1991) indique qu'aux forts taux de cisaillement et aux faibles vitesses de refroidissement, on va obtenir des particules globulaires et une viscosité apparente assez faible, alors qu'aux faibles taux de cisaillement et aux fortes vitesses de refroidissement, on obtient des particules plus dendritiques et des viscosités plus élevées.

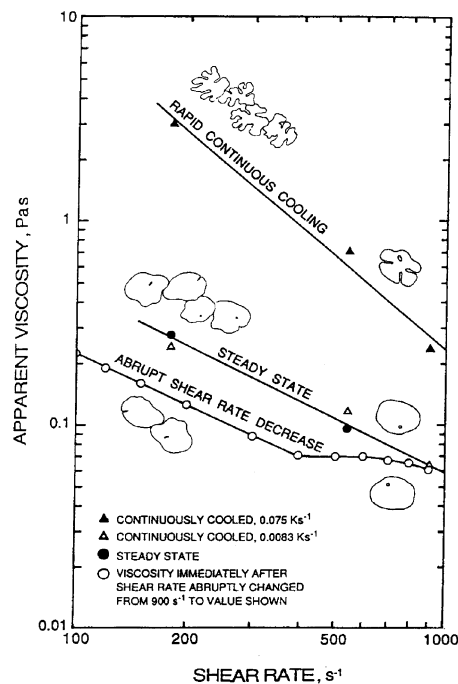


Figure 5-6 : Evolution de la viscosité apparente et de la morphologie des particules dans un semi-solide (d'après Flemmings, 1991)

Dans cette configuration, Ramati et al. (1978) ont proposé de représenter la viscosité d'un alliage semi-solide avec des fractions solides supérieures à 20 %_{vol} sous la forme d'une exponentielle. Taha et al.(1988) a proposé l'expression suivante pour la viscosité apparente d'un semi-solide Bi-17%_{masse} Sn :

$$\eta = 0,34e^{13,08\phi} \dot{\gamma}^{-0,6} \quad (4-23).$$

Turng (1989) a indiqué la relation :

$$\eta_{\text{rel}} = e^{16\phi} \quad (4-24)$$

pour des semi-solides (Sn-15%_{masse}Pb et Zn-27%_{masse}Al-2%_{masse} Cu) refroidis rapidement (1000°C/min). Ces résultats confirment que le comportement rhéologique des semi-solides s'éloigne fortement des modèles applicables aux sphères dures listés dans le Tableau 5-1.

5.2.2 Modèle de Ramacciotti.

Avec Ramacciotti (1999, 2001), nous avons proposé de représenter la viscosité relative d'un semi-solide par une formulation étendant la loi d'Arrhénius (1917) :

$$\eta_{\text{rel}} = e^{2.5.C.\phi} \quad (4-25)$$

avec un coefficient C qui dépend du taux de cisaillement et de la vitesse de solidification. Ce coefficient est en pratique compris entre 3 et 8. De plus, les post-calculs à l'aide du code THEMA d'essais d'étalement (voir détails au paragraphes 2.4.2 et 7.2.2) donnent un meilleur accord calcul-expérience pour des valeurs de C autour de 6 (entre 6,1 et 6,3).

L'introduction du coefficient C peut être considérée comme une façon simplifiée de prendre en compte la fraction solide effective définie par Quemada (1998) et appliquée aux semi-solides par Pérez (2000).

Cette loi empirique, issue de travaux sur les alliages métalliques semi-solides, a été validée sur des basaltes tholéïtique du lac de lave Makaopuhi à Hawaï dont la viscosité a été mesurée in situ par Shaw et al. (1968). Il apparaît clairement que les modèles de suspension (du Tableau 5-1) ne peuvent pas représenter la viscosité d'un tel système, contrairement à la loi de Ramacciotti avec C= 7,5 dans ce cas.

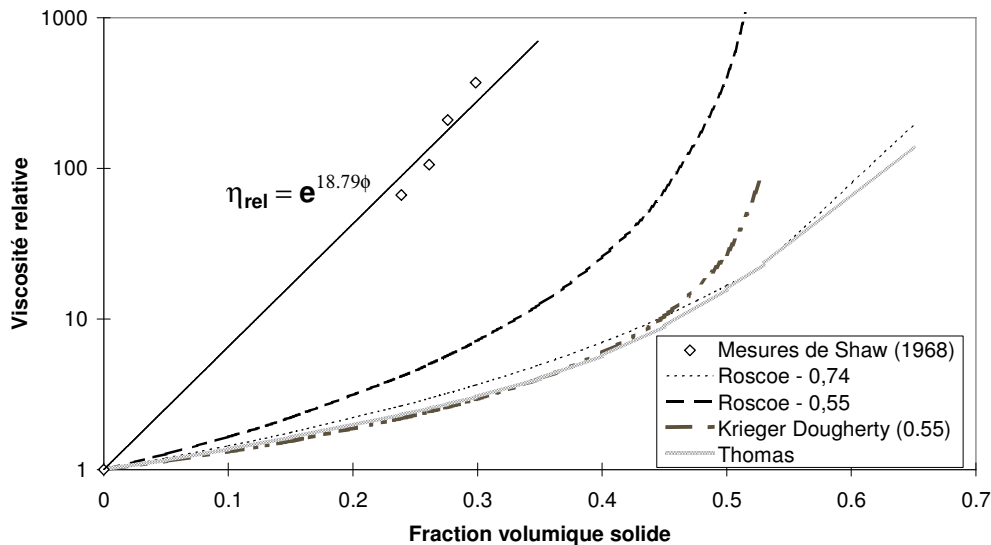


Figure 5-7 : Viscosité relative de basaltes tholéïtiques. Comparaisons mesures – lois de viscosité

Un accord similaire a été obtenu avec $C \approx 3$ pour la lave issue de la coulée de 1983 de l'Etna (Pinkerton & Norton, 1995). Par contre, la loi de Ramacciotti ne s'applique pas bien aux données de Lejeune & Richet (1995) correspondant à du pyrope ($\text{Mg}_3\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{12}$) fondu dans lequel on avait mis en suspension des cristaux d'enstatite alumineux – produit de la solidification du pyrope dans les conditions de cette expérience -, alors que le modèle de Roscoe (4-16) reproduit bien les données expérimentales (Figure 5-8). Ceci est une indication de l'importance de la façon dont les solides sont formés pour la viscosité de la suspension semi-solide.

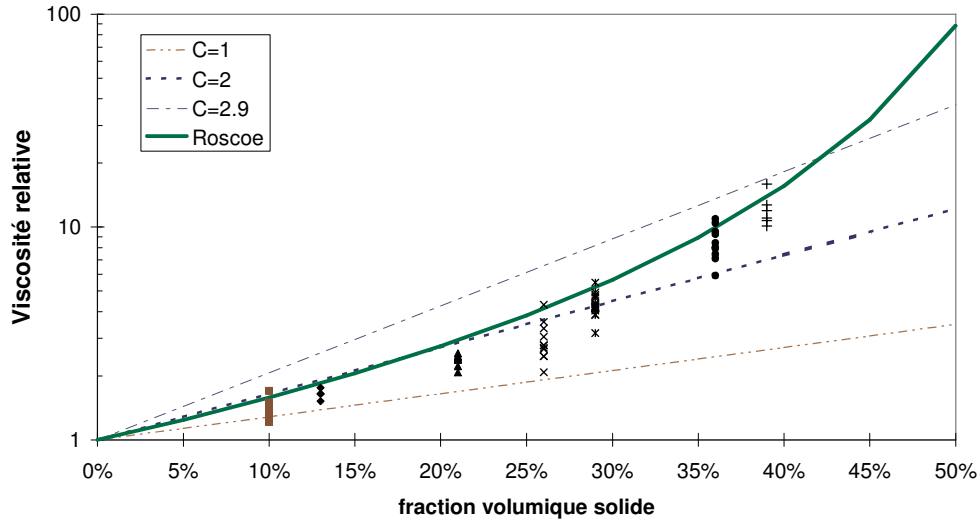


Figure 5-8 : Comparaison des mesures de viscosité relative de Lejeune & Richet (1995) pour une suspension d’énstatite dans du pyrope fondu, avec les lois de Ramacciotti pour diverses valeurs de C et de Roscoe. Pour chaque fraction solide, la viscosité relative a été mesurée à plusieurs températures.

Cette corrélation est aussi applicable à des sels fondus (Jeulain et al. , 2001). La Figure 5-9 montre les viscosités relatives d’un mélange de nitrates d’argent et d’ammonium au dessous de son liquidus (170°C). Ces viscosités relatives ont été mesurées dans un viscosimètre de Couette et suivent des lois de type Ramacciotti avec un paramètre C d’autant plus faible que le taux de cisaillement est élevé, en concordance avec les résultats de Flemmings (1991) sur les semi-solides métalliques.

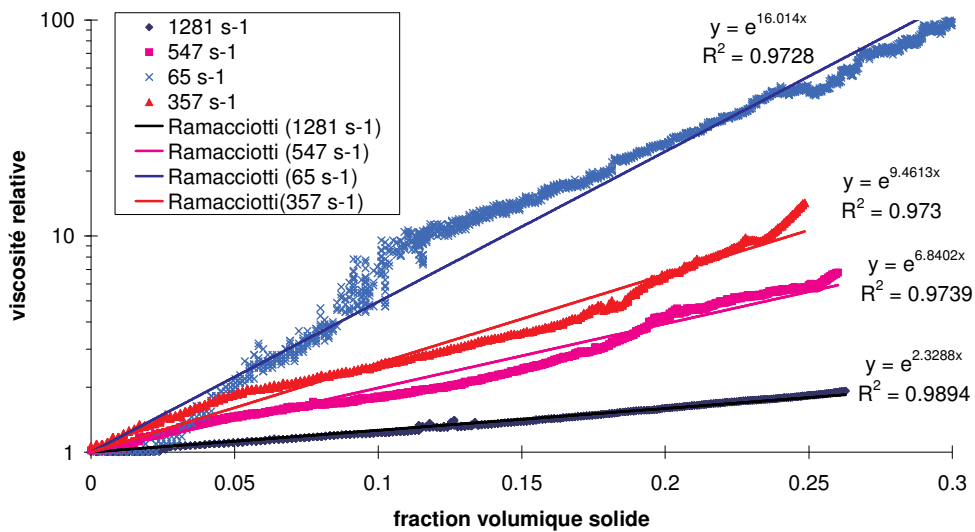


Figure 5-9 : Comparaison des viscosités relatives d’un mélange d’un mélange AgNO_3 -10%_{masse} NH_4NO_3 refroidi à 1.8°C/min et cisailé à 4 taux différents, mesurées par Jeulain et al. (2001) avec la loi de Ramacciotti

La corrélation de Ramacciotti donne aussi des bons résultats pour de l’huile partiellement figée. Par exemple, avec $C \approx 7$, on retrouve les données expérimentales de Webber (1999) sur une huile neutre Chevron RLOP 100 refroidie de 10°C/h sous 2 s^{-1} jusqu’à -35°C (16% solide).

Finalement, cette corrélation décrit de façon satisfaisante la rhéologie d’un mélange corium-béton de composition massique suivante :

56,55% UO_2 , 19,95% ZrO_2 , 21,51% SiO_2 , 4,2% CaO , 1,26% Al_2O_3 , 0,22% MgO

entre 2171°C (légèrement au dessus du liquidus) et 1731°C (environ 45%_{vol} solide) que Roche et al. (1993) ont caractérisé avec un viscosimètre Brookfield RVRH pour lequel le rotor en acier inoxydable avait été remplacé par un rotor de même géométrie en molybdène ou en molybdène-tungstène. Pour chaque température, un calcul thermodynamique à l'aide de GEMINI2 (selon l'approche décrite plus en détails au chapitre 4.2) a permis d'obtenir la composition de la phase liquide, et donc sa viscosité selon le modèle d'Urbain étendu décrit dans le paragraphe 5.1.2, et la fraction volumique de solide.

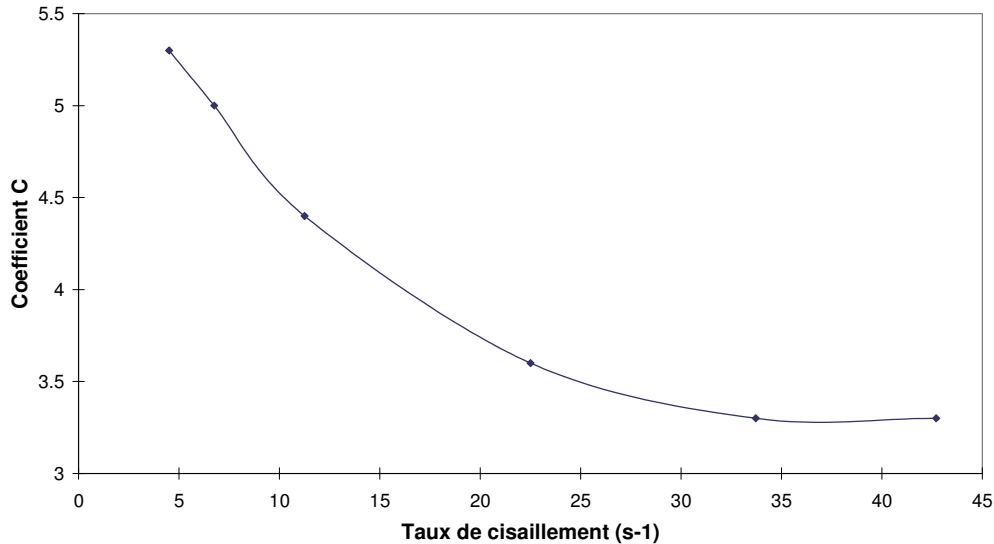


Figure 5-10 : Coefficient C des corrélations de Ramacciotti pour le mélange corium-béton mesuré par Roche et al. (1993) en fonction du taux de cisaillement.

Pour chaque valeur du taux de cisaillement, la viscosité relative est approché par la corrélation de Ramacciotti (4-19) avec un coefficient de corrélation supérieur à 0,8. La Figure 5-10 montre l'évolution du coefficient C de cette corrélation en fonction du taux de cisaillement.

Ramacciotti (2001) a montré par ailleurs que les mesures de viscosité de Skoutajan et al. (1979) sur un mélange corium béton de composition massique suivante : 34,11% SiO₂, 26,7% UO₂, 15,6%FeO, 9,8% FeO, 6,3% Al₂O₃, 5,85% CaO, 2,1% Fe₂O₃, 1,6% MgO, et réalisées dans un viscosimètre Couette construit en tungstène, peuvent être estimées par les modèles d'Urbain et de Ramacciotti, avec C= 4,8.

5.2.3 Effet du cisaillement

Il est possible de reconstituer le rhéogramme virtuel pour une fraction de solide constante non pas en faisant varier le cisaillement pour un mélange avec une fraction solide constante mais à partir de l'ensemble des courbes viscosité-fraction solide obtenues à cisaillement constant. La Figure 5-11 (Jeulain et al. , 2001) présente le rhéogramme virtuel obtenu pour les nitrates d'argent et d'ammonium dont la viscosité a été présentée dans la Figure 5-9.

Pour une fraction solide inférieure à 10%, le comportement est proche de celui d'un fluide newtonien. Saar et al. (2001) ont montré numériquement, pour des suspensions de particules de formes diverses qu'au-delà d'une fraction solide comprise entre 8 et 29 % selon la forme des particules, on forme un réseau de particules.

Au-delà, le comportement rhéologique est très particulier : il présente un maximum local de contrainte de cisaillement et une valeur de cisaillement critique à partir de laquelle les viscosités dynamiques sont proches d'un régime Newtonien (650s⁻¹). Wang et al. (1990) avaient déjà rapporté un comportement que l'on retrouve aussi en construisant ce type de rhéogramme virtuel avec les données classiques de Joly & Mehrabian (1976) sur les semi-solides étain-plomb.

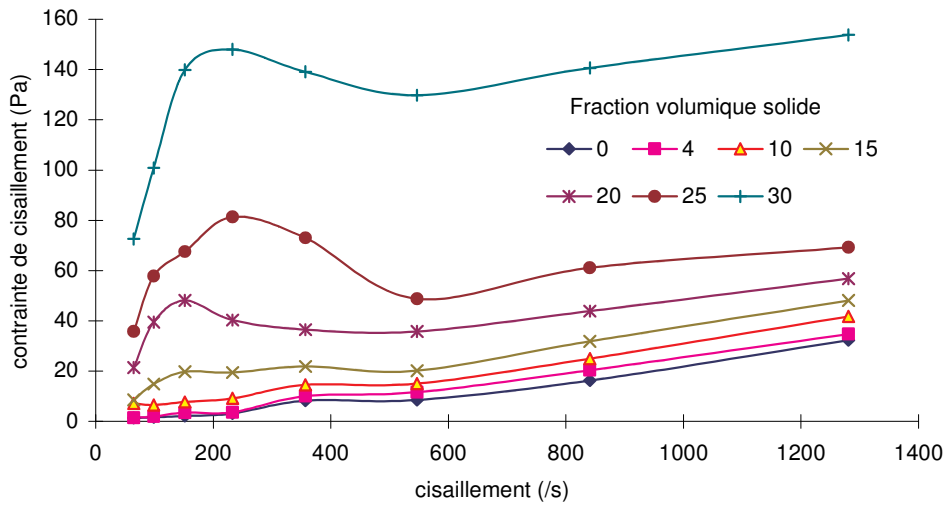


Figure 5-11: Rhéogrammes reconstitués à fraction volumique de solide constante

Si on se place plutôt dans la formulation de Ramacciotti, on note que le facteur C diminue lorsque le cisaillement augmente (Figure 5-10). Dans le cas limite d'une solidification sans cisaillement, la viscosité du mélange liquide-solide va être très importante. Au contraire pour les cisaillements intenses, la situation se rapproche des conditions théoriques du modèle de sphères dures inertes. A partir de ces conditions limites et des données expérimentales, nous avons cherché, par optimisation au sens des moindres carrés, une expression de la forme :

$$C = 1 + \left(\frac{\dot{\gamma}_c}{\dot{\gamma}} \right)^n \quad (4-26)$$

On obtient alors :

$$C = 1 + \left(\frac{942}{\dot{\gamma}} \right)^{0.77} \quad (4-27)$$

Le cisaillement critique de l'expression (4-20) est du même ordre de grandeur que le cisaillement au-delà duquel on se rapproche d'un comportement newtonien sur le rhéogramme de la Figure 5-11. L'exposant est voisin de celui proposé par Taha et al. (1988).

L'analyse des données de Roche (1993) sur un semi-solide corium-béton indique, pour ces conditions expérimentales, que les coefficients C du modèle de Ramacciotti (Figure 5-10) suit la corrélation :

$$C = 1 + \left(\frac{325}{\dot{\gamma}} \right)^{0.31} \quad (4-28)$$

Il reste maintenant à quantifier l'effet de la vitesse de refroidissement et à comprendre les causes physiques de ce type de comportement rhéologique.

5.2.4 Visualisation de la solidification sous cisaillement

Dans la partie précédente, nous avons vu que la viscosité dépendait étroitement de la vitesse de refroidissement et du cisaillement. Les particules sont d'autant plus globulaires que le refroidissement est lent et/ou le cisaillement intense (Flemmings, 1991). Cependant deux points essentiels restent à expliquer : le mécanisme de globularisation (deux hypothèses : Fragmentation des bras de dendrites ou effet thermosolutal) et les interactions entre les particules (formation d'amas, notion de fraction volumique effective de solide).

La méthode d'observation utilisée jusqu'à présent sur les semi-solides est une méthode « post mortem » : à une température fixée, l'échantillon est trempé brutalement, la phase liquide se solidifie alors avec une microstructure très fine permettant de la discerner facilement de la phase solide issue du refroidissement. l'échantillon est ensuite observé par microscopie. Cette méthode ne fournit que des renseignements ponctuels et ne traduit pas l'évolution morphologique des particules. De plus, même si elle permet de mettre en évidence des contacts entre particules, il n'est pas possible d'évaluer les interactions (collisions entre particules ou liaisons fortes ?).

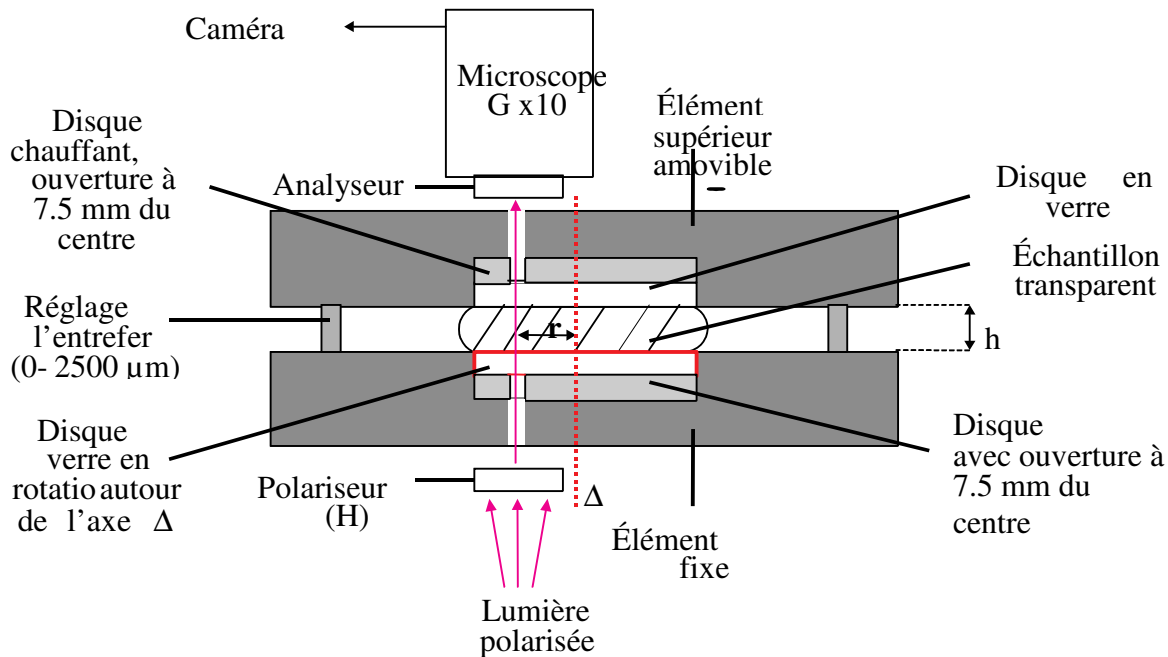


Figure 5-12 : Dispositif permettant l'observation des nitrates lors de leur solidification sous cisaillement (Université du Maine)

Pour valider l'une ou l'autre des hypothèses émises sur la globularisation des particules ou les interactions, il est nécessaire d'observer en temps réel la solidification d'un mélange. C'est pour cela que nous avons choisi un matériau simulant qui soit transparent à l'état liquide et translucide à l'état solide qui sera ainsi observable par microscopie optique. Le dispositif expérimental permet d'observer un échantillon cisailé au cours du refroidissement (Jeulain, 2001b). Le bain fondu est maintenu par capillarité entre deux disques tournants. Les particules solides sont mises en évidence grâce à une lumière polarisée (Figure 5-12). La vitesse de refroidissement est fixée à $1.8^\circ\text{C}/\text{min}$ et les cisaillements sont compris entre 0 et 70 s^{-1} , pour le rayon correspondant à la fenêtre de visualisation.

En l'absence de tout cisaillement, l'apparition de la phase solide entraîne la croissance de dendrites colonnaires (unidirectionnelles). Cette microstructure est classique lors de la solidification d'alliages métalliques. La formation d'une structure colonnaire est expliquée par l'existence d'un gradient thermique macroscopique généré par un flux de chaleur unidirectionnel et d'un gradient de concentration de la phase liquide.

La présence d'un cisaillement, même faible (1 s^{-1}), modifie totalement la structure de solidification. En effet, le sel cristallise alors en dendrites plus ou moins équiaxes (pour la gamme de cisaillement observée) (Figure 5-13). Ces observations permettent d'affirmer que, quel que soit le cisaillement imposé (entre 1 s^{-1} et 50 s^{-1}), la phase solide cristallise sous forme dendritique conformément à l'hypothèse émise par Apaydin et al. (1980) ou Flemings (1991).

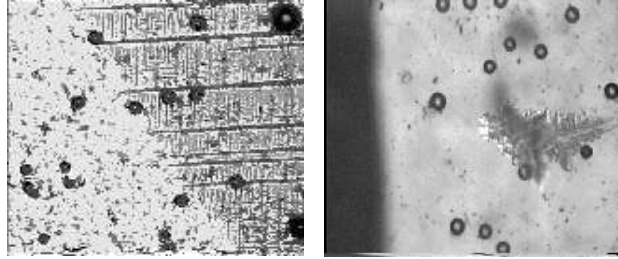
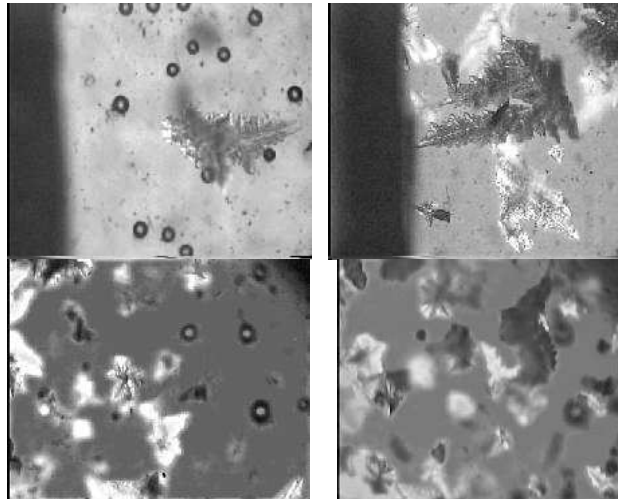


Figure 5-13: Solidification sans cisaillement (à gauche) et avec 1 s^{-1} de taux de cisaillement (à droite).

Cependant, l'évolution en termes de taille, nombre, morphologie semble dépendre de l'écoulement. La taille des dendrites diminue lorsque le cisaillement augmente, corroborant les résultats d'Apaydin et al. et de Flemings (fig. 4a et 4c). Au cours du refroidissement, le nombre de particules (notamment des petites, inférieures à 100 microns) augmente avec le cisaillement (Figure 5-14b et d), ce qui permet de confirmer les résultats de Wang (1989). En outre, les dendrites ont une structure d'autant plus équiaxe et grossière que le cisaillement est important. L'évolution morphologique des particules est faible lors du refroidissement, même si un cisaillement soutenu semble favoriser une diminution des espaces interdendritiques (écartement entre les bras de dendrites), permettant de définir une enveloppe quasi lisse des dendrites (Figure 5-14d). L'observation (dans la gamme de cisaillements utilisée) n'a pas permis de mettre en évidence de phénomène de déformation ou de fragmentation de bras de dendrites.

La formation d'amas n'est observable que pour des cisaillements faibles (inférieurs à 5 s^{-1}) (Figure 5-14b). Au delà, le temps de contact entre les particules après collision est très court (pas d'établissement de liaisons). Il est intéressant de remarquer, qu'après le seuil de percolation (formation d'un réseau solide continu), certaines particules possèdent encore quelques degrés de liberté. De plus, dans certaines manipulations, des bulles de gaz étaient présentes. Ces bulles cassaient les amas lors de leur passage, ce qui corrobore l'hypothèse d'interactions faibles entre particules.



**Figure 5-14 : Solidification sous cisaillement
en haut : à 1 s^{-1} : a) début –b) milieu de solidification
en bas : à 30 s^{-1} : c) début –d) milieu de solidification**

Cette expérience confirme la cristallisation dendritique des particules quelques soient les conditions de solidification.

Les interactions observées entre les particules, lors d'un refroidissement continu sont faibles. Pour le matériau d'étude (mélanges de nitrates), il ne s'agit pas de liaisons par frittage. Par

conséquent, sans amas, la notion de fraction volumique effective n'englobe plus que le liquide qui peut être compris entre les bras de dendrites (liquide interdendritique).

De plus, aucun phénomène de déformation ou de fragmentation de bras de dendrites n'a été observé dans la gamme de cisaillement utilisé. La globularisation des particules avec le cisaillement semble être due à un effet thermosolutal. En effet, l'augmentation du cisaillement montre nettement que les dendrites sont plus grossières et équiaxes : il est alors possible de définir une enveloppe continue autour des particules. Le cisaillement engendre un profil de concentration de la phase liquide beaucoup plus plat que lors d'une solidification classique. Le phénomène de surfusion constitutionnelle est alors faible, permettant une solidification en front plan.

5.3 METHODOLOGIE POUR L'ESTIMATION DE LA VISCOSITE

Même si tous les phénomènes ne sont pas encore modélisés en détail, nous disposons de modèles et corrélations permettant d'estimer la viscosité d'un corium à partir de la connaissance de la composition de la (ou des) phase(s) liquides et de la fraction volumique de solide (Journeau et al. , 2004). La Figure 5-15 présente la méthode de calcul de la viscosité à partir de la composition du corium et de sa température. On calcule à l'aide d'un code thermodynamique les phases en présence et leur composition. La viscosité des phases liquides est calculée à l'aide du modèle d'Andrade décrit au § 5.1.1, s'il y a moins de 5%_{masse} de silice, ou du modèle d'Urbain étendu au §5.1.2, dans le cas d'un mélange contenant plus de 5%_{masse} de silice. La viscosité apparente de la suspension liquide-solide est estimée à l'aide de la corrélation de Ramacciotti décrite au §5.2.2 avec un coefficient multiplicatif C compris entre 4 et 8 (valeur par défaut : 6). Dans le cas où il y a une lacune de miscibilité, on doit estimer la viscosité apparente de chaque liquide (ou semi-solide) en utilisant, par exemple, le modèle de Taylor (1932) :

$$\eta_r = \frac{\eta}{\eta_c} = 1 + \frac{5K+2}{2(K+1)}\phi \quad (4-29)$$

où η_c est la viscosité de la phase continue, K le rapport des viscosités des deux fluides et ϕ la fraction volumique de la phase dispersée.

Il convient de noter que l'ordre des opérateurs d'émulsion et de suspension n'est pas neutre vis à vis du calcul de la viscosité. L'observation des microstructures obtenues lors de l'essai VE-06 (§3.2.3) nous amène à penser que la phase réfractaire va se déposer dans le liquide oxyde et non dans le liquide métallique. Même si la thermodynamique indique que les deux liquides sont à l'équilibre avec le solide déposé, le coût énergétique de l'apparition du solide dans une seule des phases liquides est plus favorable, du fait des différences d'énergie d'interface solide-liquide (Ballhaus, 1998). De ce fait, on va considérer une suspension des solides dans la phase liquide d'où ils sont majoritairement issus, puis une émulsion entre ces deux milieux.

Dans le cas de la présence de gaz dans le corium, par exemple au-dessus d'un béton en cours de décomposition, la viscosité de l'émulsion peut être obtenue à l'aide du modèle de Llewellyn et al. (2002) :

$$\eta = \eta_0 (1+9\phi) \quad (4-30)$$

où η_0 est la viscosité de la phase continue et ϕ la fraction volumique de gaz.

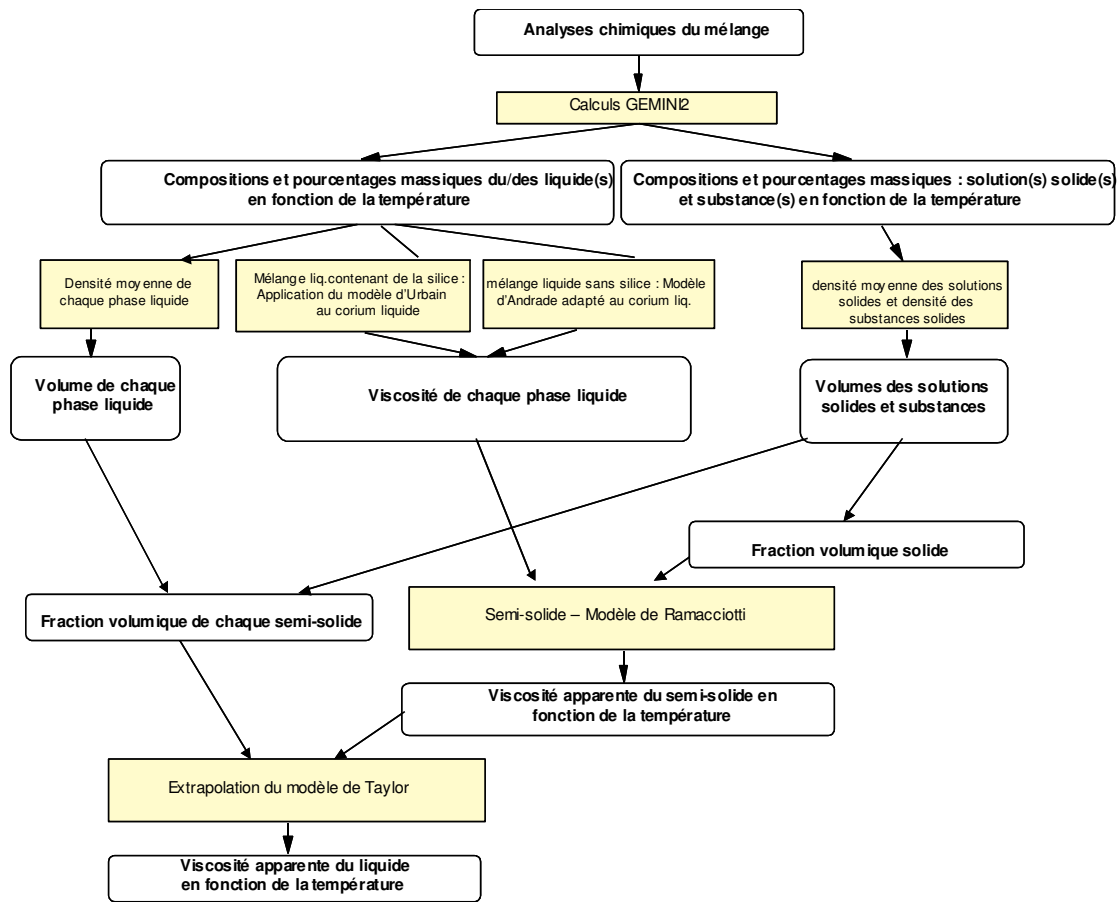


Figure 5-15 : Méthodologie d'estimation de la viscosité apparente du corium

REFERENCES DU CHAPITRE 5 :

- Abalin, S.S., Asmolov, V.G., Daragan, V.D., D'yakov, E.K., Merzlyakov, A.V., Vishnevsky, V. Yu., 2000, Corium kinematic viscosity measurement, *Nucl. Eng. Des.*, 200, 107-115.
- Andrade, E. N. D. C., 1934, A theory of the viscosity of liquids, *Phil. Mag.* S17, 497-511 et 698-732.
- Apaydin, N., Prabhakar, K.V., Doherty, R.D., 1980, Special Grain Boundaries in Rheocast Al-Mg, *Mater. Sci. Eng.*, 46, 145-150.
- Arrhenius, S., 1917, The Viscosity of Solutions, *Biochem. J.* 11, 112-133.
- Ballhaus, C., 1998, Origin of podiform chromite deposits by magma mingling, *Earth Planet. Sci. Lett.* 156, 185-193.
- Batchelor, G.K., 1977, The effect of Brownian motion on the bulk stress in a suspension of spherical particles. *J. Fluid Mech.*, 83, 97-117.
- Bockris, J.O'M., Mackenzie, J.D., Kitchener, J.A., 1955, Viscous flow in silica and binary liquid silicates, *Trans. Farad. Soc.*, 51, 1734-1748.
- Brady, J.F., 1993, The rheological behavior of concentrated colloidal dispersions, *J. Chem. Phys.* 99, 567-581.
- Carron, J.P., 1969. Vue d'ensemble sur la rhéologie des magmas silicatés naturels. *Bull. Soc. Minéral. Cristallogr.* 92, 435-446.
- Chong, J.S., Christiansen, E.B., Baer, A.D., 1971. Rheology of concentrated suspensions. *J. Appl. Polymer Sci.* 15, 2007-2021.
- Douglas, J.F., Garboczi, E.J., 1995, Intrinsic viscosity and the polarizability of particles having a wide range of shapes, in: Prigogine, I, Rice, S.A., eds., *Advances in Chemical Physics*, vol. XCI.
- Einstein, A., 1911. Investigations on the Theory of the Brownian Movement, *Ann. Phys.* 34, 591-592.
- Endell, K., Hellbrügge, J., 1942, Über den Einfluss der Ionenkonzentration auf die elektrische Leitfähigkeit von Silikateschmelzen, *Naturwiss.* 30, 421-422.
- Flemmings, M.C., 1991, Behavior of metal alloys in the semisolid state, *Metall. Trans.* 22B, 269-293.
- Grosse, A.V., Kirshenbaum, A.V., 1963, The densities of liquid iron and nickel and an estimate of their critical temperature", *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 25, 331-334.
- Hirai M., Takebayashi K., Yoshikawa Y., 1993, Effect of chemical composition on apparent viscosity of semi-solid alloys, *ISIJ Int.* 133, 1182-1189.

- Hudon, P., Baker, D.R., 2002, The nature of phase separation in binary oxide melts and glasses. I. Silicate systems, *J. Non-Cryst. Solids*, 303, 299-345.
- Jeulain, G., Journeau, C., Benyahia, L., Tassin, J.F., Abélard, P., 2001, Rhéologie de mélanges en cours de solidification, *36° colloque annuel du Groupe Français de Rhéologie*, Marne la Vallée (10-12/10/2001).
- Jeulain, G., 2001b, Visualisation d'un mélange de nitrates en cours de solidification sous cisaillement, *Actes de la Conférence sur la Visualisation en Mécanique des Fluides FLUVISU 2001*, Rouen.
- Journeau, C., Pilluso, P., Frolov, K.N., 2004, Corium Physical Properties for Severe Accident R&D, *Proc. Int. Conf. Advances Power Plants (ICAPP04)*, Pittsburgh, PA (13-17/6/2004), 4140.
- Joly, P.A., Mehrabian, R., 1976, The rheology of a partially solid alloy, *J. Mater. Sci.* 11, 1393-1418.
- Krieger, I.M., Dougherty, T.J., 1959, A mechanism for non-newtonian flow in suspensions of rigid spheres, *Trans. Soc. Rheol.* 3, 137-152.
- Leibowitz, L., Williams, C., Chassanov, G., 1974, The viscosity of UO₂- basalt melts, *Nucl. Technol.* 24, 234-237.
- Lejeune, A.-M., Richet, P., 1995, Rheology of crystal-bearing silicate melts : An experimental study at high viscosities, *J. Geophys. Res.* 100B, 4215-4229.
- Llewelin, E. W., Mader, H.M., Wilson, D.R., 2002, The rheology of a bubbly liquid, *Proc. R. Soc. Lond.*, A458, 987-1016.
- Mills K.C., Keene B.J., 1987, Physical properties of BOS slags. *Int. Mater. Rev.* 32, 1-120.
- Minck, A., 2001, *Etude de la viscosité d'un corium liquide*, Rapport de stage, IFMA, Clermont-Ferrand.
- Mooney, M., 1951, The viscosity of a concentrated suspension of spherical particles. *J. Colloid. Sci.*, 6, 162-170.
- Nazaré, S., Ondracek, G., Schultz, B., 1976, Stoffwerte von LWR-Coreschmelzen, *Wissen. Ber. KFKA 2217*, 381-393.
- Perez, M., 2000, Computer simulation of the microstructure and rheology of semi-solid alloys under shear, *Acta Mater.*, 48, 3772-3782.
- Piluso, P., Moneris, J., Journeau, C., Cognet, G. , 2002, Viscosity measurements of ceramic oxides by aerodynamic levitation, *Int. J. Thermophys.* 23, 1229-1240.
- Pinkerton, H., Wilson, L., 1994, factors controlling the lengths of channel-fed lava flows, *Bull. Volcanol.*, 56, 108-120.

- Pinkerton, H., Norton, G., 1995, Rheological properties of basaltic lavas at sub-liquidus temperatures: laboratory and field measurements on lavas from Mount Etna. *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, 68, 307-323.
- Quemada, D., 1998, Rheological modeling of complex fluids. The concept of effective volume fraction revisited. *Eur. Phys. J. A.P.*, 1, 119-127.
- Ramati S.D.E., Abbaschian G.J., Mehrabian R., 1978, The structure of a partially solid alloy, *Metall. Trans.*, 9B, 241-245.
- Ramacciotti, M., 1999, *Étude du comportement rhéologique de mélanges issus de l'interaction corium-béton*, Thèse de doctorat, Université de Provence, Aix-Marseille I.
- Ramacciotti, M., Journeau, C., Sudreau, F., Cognet, G., 2001, Viscosity models for corium melts, *Nucl. Eng. Des.* 204, 377-389.
- Roche, M.F., Steidl, P.F., Leibowitz, L., Fink, J.K., Sehgal; B.R., 1993, *Viscosity of corium concrete mixtures at high temperatures*, Argonne Nat. Lab. Report ACE-TR-C37.
- Roscoe, R., 1952, The viscosity of suspensions of rigid spheres, *Brit. J Appl. Phys.*, 3, 267-269.
- Ryan, M.P., Blevins, J.Y.K., 1987, The Viscosity of Synthetic and Natural Silicate Melts and glasses at High Temperatures and 1 Bar (10^5 Pascals) and at Higher Pressures, *US Geological Survey Bull.* 1764.
- Ryerson, F.J., Weeb, H.C., Piwinski, A.J., 1988, Rheology of subliquidus magmas, 1. Picritic compositions, *J. Geophys. Res.*, 93, 3421-2436
- Saar, M.O., Manga, M., Cashman, K.V., Fremouw, S., 2001, Numerical model of the onset of yield strength in crystal melt suspensions, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 187, 367-379.
- Seetharaman, S., Du Sichen, 1997, Viscosities of High Temperature Systems – A modelling approach, *ISIJ Int.*, 37, 109-118.
- Seiler, J.-M., Ganzhorn, J., 1997, Viscosity of corium-concrete mixtures, *Nucl. Eng. Des.* 178, 510-535.
- Shaw, H.R., Wright, T.L., Peck, D.L., Okamura, R., 1968, The viscosity of basaltic magma: An analysis of field measurements in Makaopuhi lava lake, Hawaii, *Am. J. Sci.*, 266, 225-264.
- Shaw, H.R., 1969, Rheology of Basalt in the Melting Range, *J. Petrol.*, 10, 510-535
- Skoutajan, R., Baukal, W., König, R., Wagmar, W., Walter, G., 1979, *Durchführung von Viskosität an oxidischen Corium-Beton schmelzen*, Rapport Batelle Inst. BF-R-63.556-1, Frankfurt/Main.
- Stebbins, J.F., McMillan, P.F., Dingwell, D.B., 1995, *Structure, Dynamics and Properties of Silicate Melts*, Mineral. Soc. Am. (Rev. Mineral., 32), Washington, DC.

- Sudreau, F., Cognet, G., 1997, Corium Viscosity Modelling above Liquidus Temperature, *Nucl. Eng. Des.* 178, 269-277.
- Taha M.A., El-Mahallawy N.A., Assar A.M., 1988, Control of the continuous rheocasting process. Part 2 : rheological behaviour analysis, *J. Mater. Sci.*, 23, 1385-1390.
- Taylor, G. I., 1932, The viscosity of a fluid containing small drops of another fluid, *Proc. Royal Soc.* 138A, 41-48.
- Thomas, D. G., 1965, Transport Characteristics of Suspension, VIII. A note on the Viscosity of Newtonian Suspensions of Uniform Spherical Particles, *J. Colloid Sci.*, 20, 267-277.
- Tsai H.C., Olander D.R., 1972, The Viscosity of Molten Uranium Dioxide, *J. Nucl. Mater.*, 44, 83-86.
- Turng, L.S., Wang, K.K., 1989 Modelling the flow and solidification for a semi-solid Sn-Pb alloy. *Proc. 15th Int. Die Casting Congress and Exposition*, St Louis, Missouri.
- Urbain G., 1972, *Etude expérimentale de la viscosité de silicoalumineux liquides et essai d'interprétation structurale*, Thèse de Doctorat d'Etat, Université de Paris VI.
- Urbain, G., Cambier F., Deletter M., Anseau, M.R., 1981, Viscosity of Silicate Melts, *Brit. Ceram. Trans. J.*, 80: 139 –141.
- Urbain, 1985, Viscosity of silicate melts: measure and estimation, *J. Mater. Educ.* 7, 1007-1078.
- Urbain, G., 1987, Viscosity estimation of slags, *Steel Res.* 58, 111-116.
- Vargas, S., Frandsen, F.J., Dam-Johansen, K., 2001, Rheological properties of high temperature melts of coal ashes and other silicates, *Progr. Energ. Combust.*, 27, 237-429.
- Wang, N., Shu, G., 1989, Merging growth of metallic crystals in shear flow, *J. Cryst. Growth*, 96, 996-998.
- Wang N., Shu G., Yang H., 1990, Rheological study of partially solidified Tin-Lead and Aluminium-Zinc Alloys for Stir-casting, *Mater. Trans. JIM*, 31, 715-722.
- Webber, R.M., 1999, Rheological characterization of Wax crystal Structuring in Mineral Oils: Effects of Stress and Temperature History, *AICHE Spring Meeting*, Houston, TX.
- Weymann, H.D., 1962, On the Hole Theory of Viscosity, Compressibility and Expansivity of Liquids, *Kolloid Z. Z. Polym.*, 181, 131-137.
- Woodley R.E., 1974, The Viscosity of Molten Uranium Dioxide, *J. Nucl. Mater.*, 50, 103-106.

Chapitre 6 : Etude Thermique de l'étalement

Les analyses de matériaux nous ont permis de déterminer un chemin de solidification pour le corium et d'estimer pour chaque température les phases en présence et leur composition. Ceci nous permet d'estimer les propriétés physiques du corium et en particulier sa rhéologie selon la méthodologie établie précédemment. A partir de cela, nous pouvons modéliser son comportement et en particulier son refroidissement. Pour cela nous utiliserons le code de conduction transitoire CRUST pour étudier le refroidissement à la surface puis à l'interface corium-substrat. Comme lors de la présentation des analyses de matériaux, l'essai VE-U1 servira d'illustration.

6.1 PROPRIETES PHYSIQUES DU CORIUM

Connaissant la composition initiale et le chemin de solidification suivi, on peut estimer, à l'aide d'un code de minimisation de l'enthalpie libre de Gibbs, la composition et la proportion des phases présentes dans la coulée à chaque température. Par exemple, la Figure 6-1 présente l'évolution de la fraction massique de solide lors de l'essai VE-U1 selon deux des chemins de solidifications décrits au chapitre 4.2.2. On remarque que, même si les espèces chimiques en présence sont différentes, cela n'influe que peu sur des grandeurs globales comme la fraction massique ou les températures de liquidus (2280 K) et de solidus (1400 K). Une des caractéristiques majeures des mélanges corium béton est le très grand intervalle de solidification (de 800 à 1200 K selon les compositions). Les processus d'étalement d'un mélange corium-béton vont se dérouler à l'intérieur de cet intervalle.

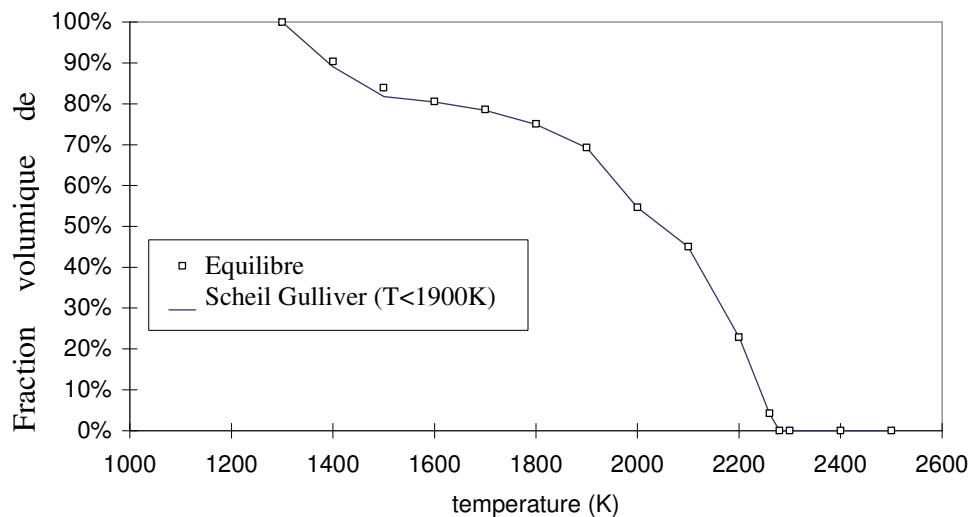


Figure 6-1 : Evolution de la fraction massique solide lors de l'essai VE-U1

6.1.1 Masse volumique

Les propriétés physiques des constituants du corium ont été passées en revue par de nombreux auteurs (Hohorst, 1990 ; Cleveland, 1997 ; Fink & Pietry, 1997 ; Journeau et al. , 2004). Ces données sont de qualités inégales en fonction des espèces : les données sur la masse volumique de l'uranium et de son dioxyde sont de bonne qualité, alors que les données pour d'autres composants du corium sont incomplètes ou incohérentes. Par exemple, une recherche

bibliographique n'a donné que deux jeux de données sur la zircone liquide, l'un (Hohorst, 1990) donnant une valeur plus élevée ($5990 \pm 100 \text{ kg.m}^{-3}$) que celle du solide au point de fusion, tandis que l'autre (Strizhov et al. , 1995) propose une valeur inférieure (5700 kg.m^{-3}). Il y a donc un besoin patent de mesures de densité à haute température. En attendant, on prendra la valeur la plus plausible, correspondant à une dilatation à la fusion.

Pour les solutions (liquides ou solides), on fait l'hypothèse simplificatrice de l'indépendance des volumes molaires partiels de chaque constituant de la solution et du mélange idéal (sans volume d'excès). Dans ce cas, le volume d'une mole de solution (liquide ou solide) est donné par :

$$V = \sum_i y_i \cdot V_i \quad (6-1)$$

La masse volumique est alors obtenue par :

$$\rho = \frac{\sum_i y_i \cdot M_i}{\sum_i y_i \cdot V_i} \quad (6-2)$$

Nelson & Carmichael (1979) ont vérifié sur des silicates naturels fondus que ces hypothèses n'entraînaient que des erreurs inférieures à 1%. Kamigaito (2000) a aussi validé l'hypothèse de mélange idéal en phase solide pour des oxydes composés. Harmathy (1970) la préconise pour estimer la densité du béton solide. Hull (1969) la recommande pour les alliages métalliques. Même si certains mélanges de métaux liquides ne sont pas idéaux (Crawley, 1974), l'écart maximal à l'idéalité étant généralement observé aux compositions correspondant, à l'état solide, à des composés intermétalliques, Khairulin et al. (2002) ont montré que l'idéalité des mélanges était conservée pour des alliages métalliques, à proximité d'une lacune de miscibilité.

Le corium présente une phase liquide contenant des réfractaires comme l' UO_2 à des températures descendant jusqu'à 1500 K alors que le point de fusion de l' UO_2 pur est de $3120 \pm 30 \text{ K}$ (Fink & Pietri, 1997). Il convient donc d'estimer le volume molaire partiel de ces composés réfractaires bien en deçà de leur point de fusion. Deux approches ont été proposées : soit on suppose que le coefficient de dilatation reste constant en dessous du point de fusion, soit on suppose que la densité reste égale à sa valeur au point de fusion. Ces deux approches entraînent des écarts de 15 % à 1500 K !

Les mesures de masse volumique effectuées sur des oxydes (Glorieux et al. , 1999) et des métaux (Paradis, 1999) liquides en surfusion nous amènent à privilégier la première approche. Nous l'avons validée sur les mesures de la masse volumique d'alliages U-Fe fondus (Gardie, 1992). La Figure 6-2 montre que les masses volumiques calculées à 1300 K et 1900 K, en supposant le mélange idéal, recoupent bien les mesures, bien qu'il y ait plus de 500 K entre la température la plus basse considérée et le point de fusion du fer (1809 K).

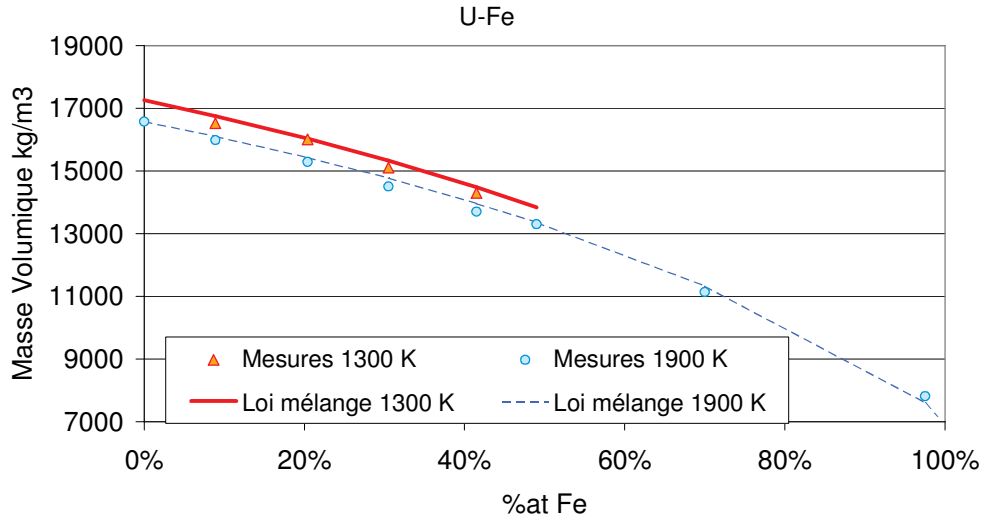


Figure 6-2 : Masse volumique d'alliages liquides U-Fe à 1300 et 1900 K

Pour ce qui est des mélanges de plusieurs phases, nous proposons d'utiliser la même loi de mélange (idéal) que pour les solutions.

En appliquant cette méthodologie, nous avons pu estimer la masse volumique de chacune des phases du corium VE-U1 en fonction de la température ainsi que celle de l'ensemble (Figure 6-3). La composante solide (riche en uranium et zirconium) est plus dense que la phase liquide, surtout au dessus de 1900 K (au delà de la température de solidification du zircon). La densité du mélange semi-solide est intermédiaire entre celle de la phase liquide et celle des phases solides et ses variations sont lissées comparativement à celle du liquide ou des solides. Comme pour la fraction massique de solide (Figure 6-1), le chemin de solidification choisi n'influe que très peu sur la masse volumique et sur la fraction volumique de solide.

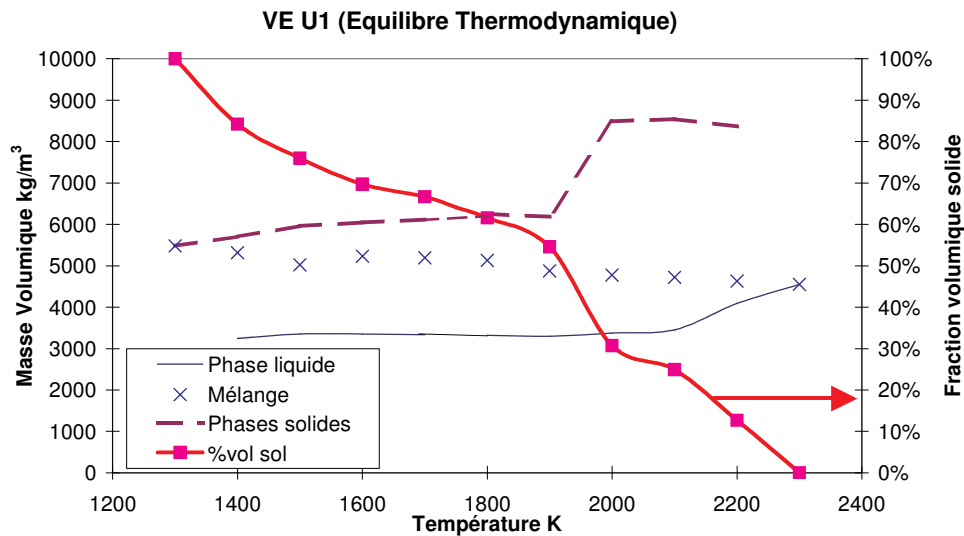


Figure 6-3 : Masse volumique du corium VE-U1 et fraction volumique de solide

6.1.2 Viscosité

Connaissant la fraction volumique de solide et la composition de la phase liquide, nous avons estimé la viscosité du corium en appliquant la méthodologie décrite au paragraphe 5.3. La Figure 6-4 montre la viscosité apparente du corium estimée à l'aide du modèle d'Urban et de la corrélation de Ramacciotti pour laquelle le coefficient C a été fixé à 6,1, valeur optimisant

le calcul de la longueur d'étalement avec THEMA (§2.4.2.2) par rapport aux données expérimentales (Ramacciotti et al. , 1998).

Vu les incertitudes sur l'estimation de la viscosité, nous approcherons ces valeurs à l'aide d'une corrélation simple du type de celle établie par Shaw (1969) pour les basaltes :

$$\eta_{apparente} = \eta_{liquidus} e^{-A(T-T_{liquidus})} \quad (6-3)$$

Pour VE-U1, la viscosité au liquidus est estimée à 37,2 mPa.s et le coefficient A vaut 0,0239 K⁻¹. En d'autres termes, une diminution de température de 1/A = 42 K correspond à une augmentation de la viscosité d'un facteur e.

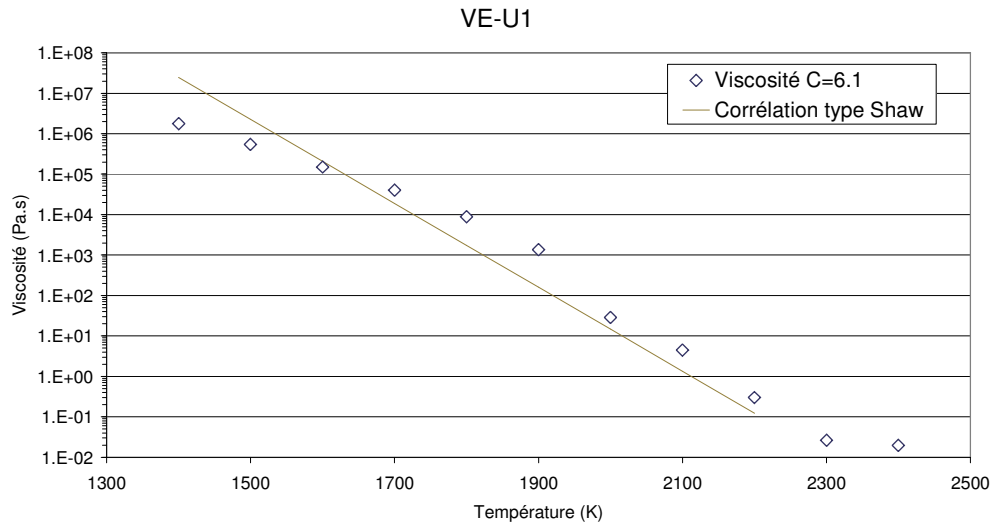


Figure 6-4 : Viscosité apparente du corium – Corrélation de Ramacciotti avec C=6,1

6.1.3 Enthalpie et Chaleur massique

Le code de calcul thermodynamique GEMINI2 calcule, pour la détermination de l'enthalpie libre de Gibbs, l'enthalpie du mélange pour chaque pas de température. La Figure 6-5 présente l'évolution de l'enthalpie, référencée par rapport aux éléments constitutifs du corium à 298 K.

Nous pouvons obtenir, par différentiation de l'enthalpie, une chaleur massique généralisée au sens de Jaeger (1967) :

$$C_p^* = \frac{\partial H}{\partial T} = (1-\xi) \cdot C_{p,liq} + \xi \cdot C_{p,sol} - \frac{\partial \xi}{\partial T} \cdot H_{fusion} \quad (6-4)$$

où ξ est la fraction massique de solide.

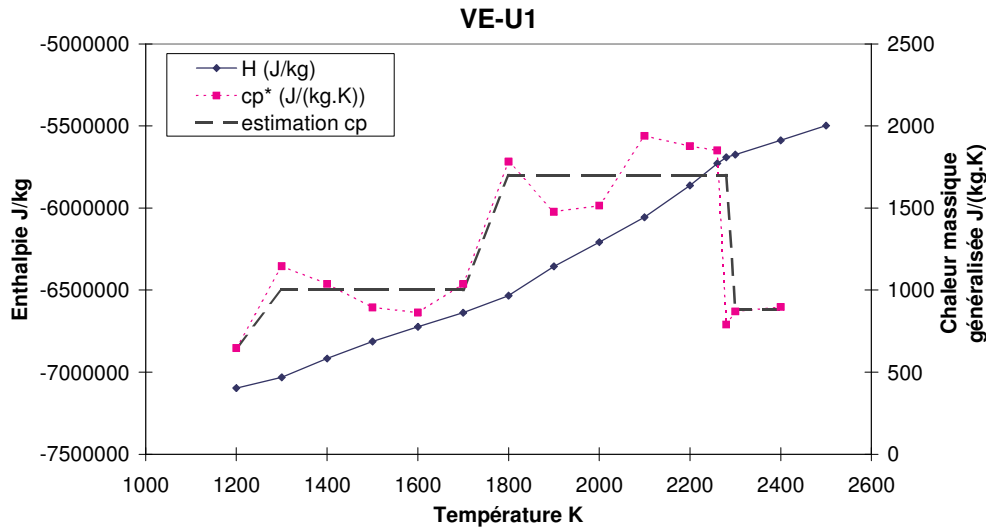


Figure 6-5 : Enthalpie et chaleur massique généralisée (calculé à l'équilibre thermodynamique)

Pour simplifier, nous pourrions considérer que la chaleur massique vaut $650 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$ en phase solide, $1000 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$ entre 1300 et 1800 K, $1700 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$ entre 1800 et 2300 K, et $880 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$ au-dessus du liquidus. Dans l'intervalle de solidification, la chaleur massique généralisée est supérieure à la chaleur massique du liquide et du solide car elle comprend aussi un terme de chaleur latente.

La température d'immobilisation définie par Konovalikhin (2001) comme la température pour laquelle 55% de la chaleur latente a été enlevée correspond ici à environ 1850-1900 K. A cette température, la fraction de solide vaut environ 70 %_{vol} ou 75 %_{masse} et la viscosité est estimée à la température d'immobilisation selon la méthodologie du §5.3 à 1000 Pa.s.

Si nous comparons ce comportement avec celui d'un mélange d' UO_2 et de ZrO_2 , tel que celui de l'essai VE-U8, pour lequel la plage de solidification est inférieure à 50 K, il apparaît qu'il faut enlever beaucoup moins de chaleur à un corium de type « en cuve » qu'à un mélange corium-béton de type « hors cuve » pour atteindre l'immobilisation (autour de 55 % solide), comme cela se voit sur la Figure 6-6. Cela se traduit sur l'aspect de la coulée et sur la progression de l'étalement. Alors qu'un corium (U, Zr) O_2 va facilement se solidifier en surface et former des croûtes solides qui pourront flotter ou se briser, un mélange corium-béton va former un semi-solide pâteux en surface qui aura un comportement viscoplastique. De ce fait l'étalement sera plus saccadé dans le premier cas.

Calculs GEMINI2 à l'équilibre thermodynamique

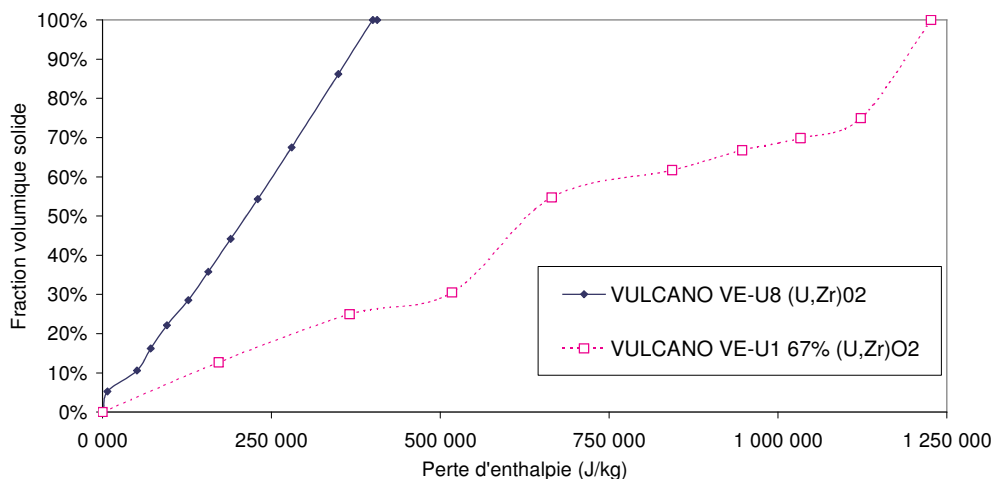


Figure 6-6 : Effet de la présence de béton sur le refroidissement du mélange coulé

6.2 COUCHES LIMITES A LA SURFACE DE L'ETALEMENT

Nous allons maintenant utiliser ces données sur les propriétés thermophysiques du corium pour étudier le refroidissement de la coulée par le rayonnement à sa surface supérieure. Dans cette étude nous allons négliger l'effet du refroidissement vers le substrat, ce qui sera justifié au paragraphe 6.3. L'autre hypothèse de cette analyse est de modéliser la convection (forcée et naturelle) dans la coulée par une conductivité thermique équivalente.

6.2.1 Modèle analytique de refroidissement à la surface

Afin d'obtenir une expression analytique de l'évolution de température, nous considérons une couche épaisse (semi-infinie) de corium à la température initiale T_0 , supposée uniforme. A l'instant $t=0$, la couche de corium se met à perdre de la chaleur par rayonnement vers un ciel à la température T_∞ . Dans ce cas, Griffiths & Fink (1992) ont proposé l'expression asymptotique suivanteⁱ pour la température de surface de lave refroidie par rayonnement :

$$T = T_0 - \frac{T_0^4 - T_\infty^4}{4T_0^3} \cdot \left[1 - e^{t/\tau_R} \cdot \operatorname{erfc} \left(\sqrt{\frac{t}{\tau_R}} \right) \right] \approx T_0 \cdot \left[\frac{3}{4} + \frac{e^{t/\tau_R} \cdot \operatorname{erfc} \left(\sqrt{\frac{t}{\tau_R}} \right)}{4} \right] \quad (6-5)$$

où le temps caractéristique τ_R est défini par :

$$\tau_R = \left[\frac{b}{4 \cdot \varepsilon \cdot \sigma \cdot T_0^3} \right]^2 \quad (6-6)$$

et $b=(\lambda\rho C_p)^{1/2}$ est l'effusivité.

L'analyse de la fonction $e^{t/\tau} \cdot \operatorname{erfc}(\sqrt{t/\tau})$ montre que le temps caractéristique τ_R correspond au temps pour lequel la température de surface a baissé de 14%. Nous avons estimé le temps caractéristique et la température initiale du bain en minimisant au sens des moindres carrés l'écart entre les températures mesurées en surface de la coulée et l'expression (6-5). On trouve une température initiale de 2023 K et un temps caractéristique de 3,3 s, correspondant à une conductivité thermique de $2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, ce qui est dans la gamme de conductivités thermiques attendues pour ce type de mélange (Fayette & Piluso, 2002). Néanmoins, l'accord n'est que moyen. C'est pourquoi nous allons utiliser une modélisation plus réaliste prenant en compte les changements de propriétés physiques du fait des changements de phase.

ⁱ L'expression était erronée dans l'article en référence, ce qui a été confirmé par un e-mail de l'auteur. L'expression (6-5) a été corrigée de cette erreur typographique.

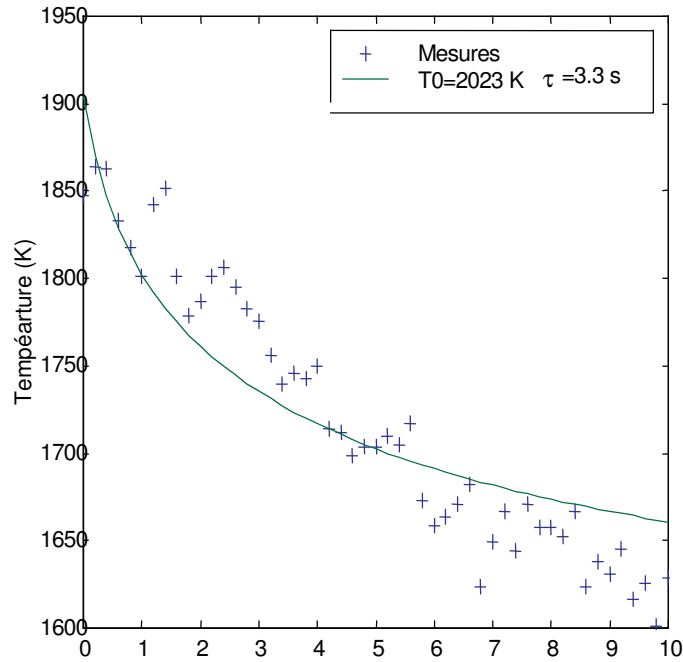


Figure 6-7 : Recalage de la température de surface à l'aide de la loi asymptotique (6-5)

6.2.2 Modèle thermique CRUST

Le logiciel CRUST, développé par le CEA dans le cadre de l'étude des modèles de stabilité mécanique des croûtes de corium (Gatt et al. , 1995) est destiné à l'étude monodimensionnelle du comportement d'un système corium/substrat. Basé sur une approche numérique par différences finies de l'équation de la chaleur sous sa forme enthalpique, ce logiciel permet une étude en transitoire et en conduction, tout en tenant compte des changements de phase, du rayonnement à la surface et d'une éventuelle résistance de contact. Pour chaque maille et chaque pas de temps, on procède à la résolution explicite de l'équation de la chaleur :

$$H_i^{t+\delta t} = H_i^t + \frac{\lambda_i}{\rho} \cdot \frac{\delta t}{(\delta x)^2} \cdot (T_{i-1} - 2T_i + T_{i+1}) \quad (6-7)$$

où H_i^t est l'enthalpie de la maille i à l'instant t , reliée à la température T_i ;
 λ_i est la conductivité thermique de la phase présente dans la maille i ;
 ρ est la masse volumique de la phase présente dans la maille i
 (les effets de changement de volume ne sont pas modélisés) ;
 δt et δx sont les pas de temps et d'espace.

A l'interface supérieure, le rayonnement est pris en compte par un terme en $\epsilon\sigma(T_i^4 - T_\infty^4)$, tandis qu'à l'interface un flux convectif $h(T_i - T_\infty)$ peut être introduit.

Pour les mailles traversées par le front de changement de phase (Figure 6-8), on utilise la méthode de Tacke (1985) : On suppose que les profils de température sont linéaires à proximité du front, ce qui permet de calculer la fraction solide dans la maille et donc la position du front $X_{i0} + \phi \delta x$ avec une résolution meilleure que celle du maillage. L'enthalpie de la maille contenant le front de fusion/solidification, H_{i0} , est donnée par :

$$H_{i0} \delta x = L(1-\phi) \delta x + c_{pl} (T_{i0d} - T_f)(1-\phi) \delta x/2 - c_{ps} (T_f - T_{i0g}) \phi \delta x/2 \quad (6-8)$$

où L est la chaleur latente de fusion, c_{ps} et c_{pl} respectivement les chaleurs massiques des phases solides et liquides, ϕ la fraction volumique de solide dans la maille, T_f la température de fusion, T_{i0d} et T_{i0g} les températures aux bornes de la maille, obtenues par interpolation linéaire. On en déduit une équation du 3^o degré qui permet la détermination de la fraction volumique ϕ .

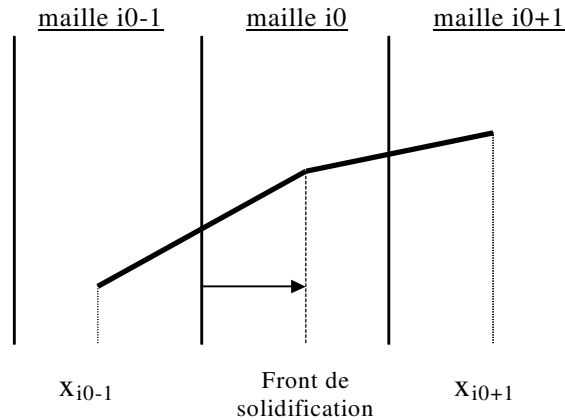


Figure 6-8 : Profils de températures considérés dans le code CRUST à proximité du changement de phase

Ce code considère donc une solidification congruente, ce qui n'est pas le cas des mélanges corium-béton. On utilise en fait une température de fusion équivalente, qui permet de distinguer la plage de températures où le corium est quasi-immobile de celle où il peut s'écouler, ce qui implique des conductivités équivalentes distinctes. Le relâchement de la chaleur latente est distribué sur une plage de températures, du fait de sa prise en compte dans la chaleur massique équivalente (Jaeger, 1967).

6.2.3 Application de CRUST au refroidissement de la coulée VE-U1

Nous allons maintenant chercher un jeu de paramètres (émissivité du corium, conductivités thermiques, température initiale) permettant de minimiser au sens des moindres carrés l'écart entre la mesure de température de surface par pyrométrie bichromatique et le calcul à l'aide du logiciel CRUST. Cette étude présuppose les hypothèses suivantes :

- Le corium est modélisé comme étant une couche épaisse monodimensionnelle ;
- La température initiale du corium est supposée uniforme ;
- Le refroidissement du corium débute à l'instant $t=0$;
- Les flux de chaleur vers le substrat sont ignorés. Cette hypothèse, fondée sur la faible diffusivité du corium sera validé dans le paragraphe 6.3.
- Les effets de convection sont pris en compte à l'aide d'une conductivité thermique équivalente.
- Le corium est supposé homogène. L'hypothèse de Scheil-Gulliver est appliquée à tout le corium en dessous de 1900 K.
- On a remplacé la plage de solidification par deux états fictifs de part et d'autre de 1900 K. Ce seuil correspond à la température d'immobilisation et à une variation de la chaleur massique équivalente ($1000 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$ pour le « solide » et $1700 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$ pour le « liquide¹ ») ainsi que de la conductivité thermique équivalente.

ⁱ Dans ce développement on appelle par convention « solide » le corium en dessous de 1900 K et « liquide » en dessus.

- On néglige les effets éventuels de la surfusion. Cette hypothèse est étayée par le fait que l'évolution de la température de surface ne présente aucun « rebond » caractéristique de la surfusion.

VE U1

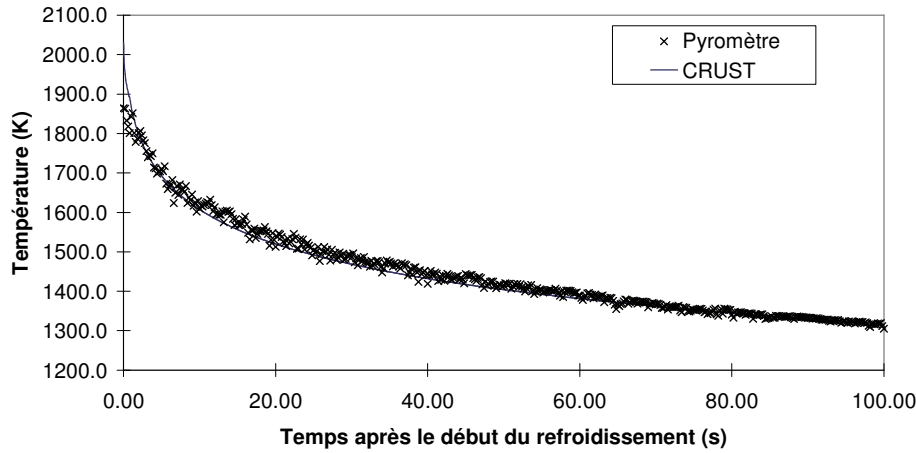


Figure 6-9 : Température de surface de la coulée -Comparaison calcul-expérience

Le jeu de données suivant permet d'obtenir un accord satisfaisant (écart quadratique moyen inférieur à 25 K, cf. Figure 6-9) entre les températures de surfaces calculées et mesurées :

- **Emissivité : 1**
- **Conductivité thermique de la phase « solide » : $2,3 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$**
- **Conductivité thermique de la phase « liquide » : $5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$**
- **Température initiale : 2030 K**

Du fait des incertitudes sur les mesures et des approximations de la modélisation, il n'est pas possible d'obtenir une solution unique de ce problème que nous allons considérer à l'aide du formalisme de l'analyse de sensibilité des problèmes inverses (Beck et al. , 1985 ; Raynaud, 1999).

On peut alors définir le coefficient de sensibilité réduit comme la dérivée première d'une variable, telle que la température, par rapport à un paramètre y à déterminer, la conductivité par exemple, multipliée par la valeur dudit paramètre.

$$\overline{X}_y = y \cdot \frac{\partial T}{\partial y} \quad (6-9)$$

Les coefficients de sensibilité par rapport à 6 paramètres (conductivités thermiques, chaleurs massiques, émissivité, température initiale et température de transition « liquide »-« solide ») a été estimée par différentiation (Figure 6-10). Ces 6 coefficients sont indépendants mais sont tous du même ordre de grandeur (50-250 K). Néanmoins, ce type de problème inverse est par nature « mal posé ». Il est donc impossible en pratique de trouver une solution unique. Pour la solution correspondant au jeu de données proposées ci-dessus, le résidu quadratique moyen (25 K) correspond à des incertitudes de $0,5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ pour la conductivité de la phase « solide », $2,5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ pour la conductivité de la phase « liquide » et de 0,1 pour l'émissivité. Des mesures précises de température dans le bain seraient nécessaires pour améliorer la précision de cette estimation, mais cela pose d'importants problèmes technologiques.

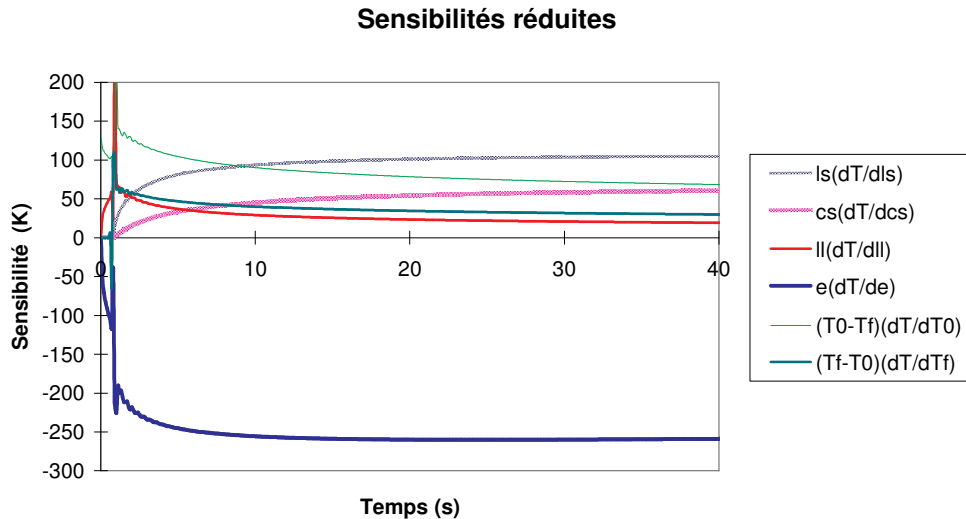


Figure 6-10 : Coefficients de sensibilité réduits pour les conductivités thermiques, la chaleur massique, l'émissivité, la température initiale et la température de transition « liquide » - « solide »

6.2.4 Profil de température en haut de l'étalement

En prenant le jeu de données obtenu ci-dessus, on a pu calculer l'évolution de la température à différentes profondeurs dans le bain (Figure 6-11). Vu les incertitudes sur les paramètres estimés, les calculs présentés ici ne sont qu'une estimation, entachée d'erreur, du comportement thermique à l'intérieur de la coulée. Néanmoins ils fournissent de bonnes indications sur des champs de température internes que les techniques de mesure à notre disposition ne nous permettent pas d'atteindre de façon satisfaisante.

La surface est refroidie très rapidement (163 K la première seconde). Un demi-millimètre plus bas, le corium a perdu 85 K durant la première seconde. Or c'est dans le demi-millimètre supérieur que la trempe de la solution solide correspondant aux hautes températures a été observée (§ 4.1.3). On peut donc fixer le seuil pour la trempe de cette phase de type fluorite à des vitesses de refroidissement de l'ordre de 100 K/s. Un seuil similaire avait été observé en matériau simulant haute température pour la transition entre structures globulaires et dendritiques des phases (Hf, Zr)O₂ lors de l'essai VE-07 (Journeau et al. , 1999).

Les vitesses de refroidissement décroissent au fur et à mesure que l'on pénètre dans la coulée. A 1900 K, on observe une rupture de pente du refroidissement (qui atteint des taux de refroidissement de l'ordre de 10 K/s), due à la valeur plus faible de la chaleur massique et de la conductivité thermique équivalente en deçà de 1900 K. Cette gamme de température correspond à celle pour laquelle on doit considérer l'hypothèse de Scheil-Gulliver (refroidissement trop rapide par rapport à la diffusion chimique dans le solide ne permettant pas d'atteindre l'équilibre thermodynamique global) dans la quasi-totalité de la coulée.

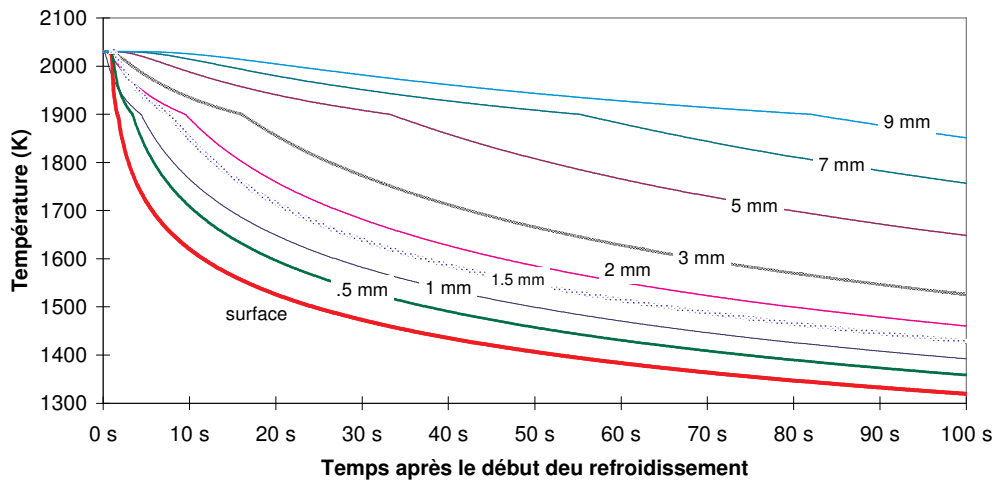


Figure 6-11 : Estimation de la température dans les 10 mm supérieurs de la coulée

A partir de la Figure 6-11, on peut tracer des profils de températures à divers instants (Figure 6-12). Si on définit l'épaisseur de la couche limite thermique comme l'épaisseur où la température s'éloigne de plus de 2,5% (50 K) de la température interne, elle est de 1 mm au bout d'une seconde, 5 mm après 10 s, 10 mm après 40 s, soit bien après les 15 s de la progression de la coulée.

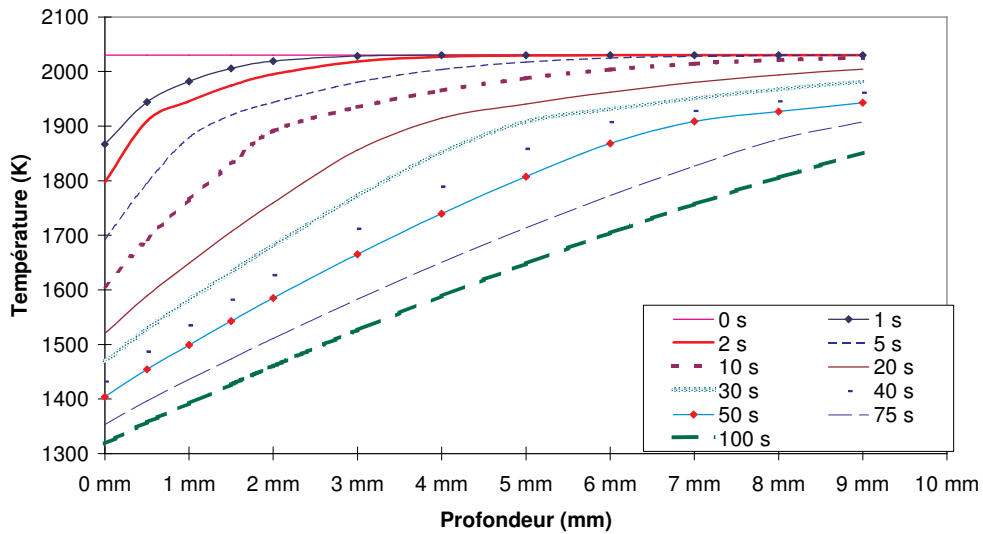


Figure 6-12 : Profils de températures calculés

Ces épaisseurs de couche limite sont comparables à celles que l'on obtiendrait en considérant un modèle de convection. Avec les propriétés physiques du Tableau 6-1, on trouve que le nombre de Reynolds vaut 26 et le nombre de Prandtl vaut 7000. Dans ces conditions l'écoulement est laminaire et les épaisseurs de couches limites sont données par Landau (1989) :

$$\delta_h \approx L \cdot \text{Re}^{-1/2} \approx 4 \text{ cm pour } L = 20 \text{ cm} \tag{6-10}$$

et $\delta_t \approx \delta_h \cdot \text{Pr}^{-1/3} \approx 2 \text{ mm pour } L = 20 \text{ cm et } 10 \text{ mm pour } L = 1,13 \text{ m} \tag{6-11}$

ce qui est comparable avec les résultats de CRUST.

Description	Symbole	Valeur
Vitesse du front	u	0.2 cm/s
Longueur d'étalement	L	1.13 m
Hauteur de la coulée	h	0.03 m
Conductivité thermique	λ	2.3 - 5 W.m ⁻¹ .K ⁻¹
Masse volumique (avec porosité)	ρ	3400 kg.m ⁻³
Chaleur massique	C_p	1000-1700 J.kg ⁻¹ .K ⁻¹
Diffusivité thermique $a = \frac{\lambda}{\rho c}$	a	6 - 9 . 10 ⁻⁷ m ² /s
Viscosité à 2030 K	η	15 Pa.s
Viscosité cinématique ($=\eta/\rho$)	ν	4.10 ⁻³ m/s ²

Tableau 6-1 : Paramètres principaux de l'essai VE-U1

6.2.5 Couche limite physico-chimique

La modélisation thermodynamique (§ 4.2) nous permet d'associer, en négligeant les effets de la surfusion, une fraction solide, et une composition à chaque température.

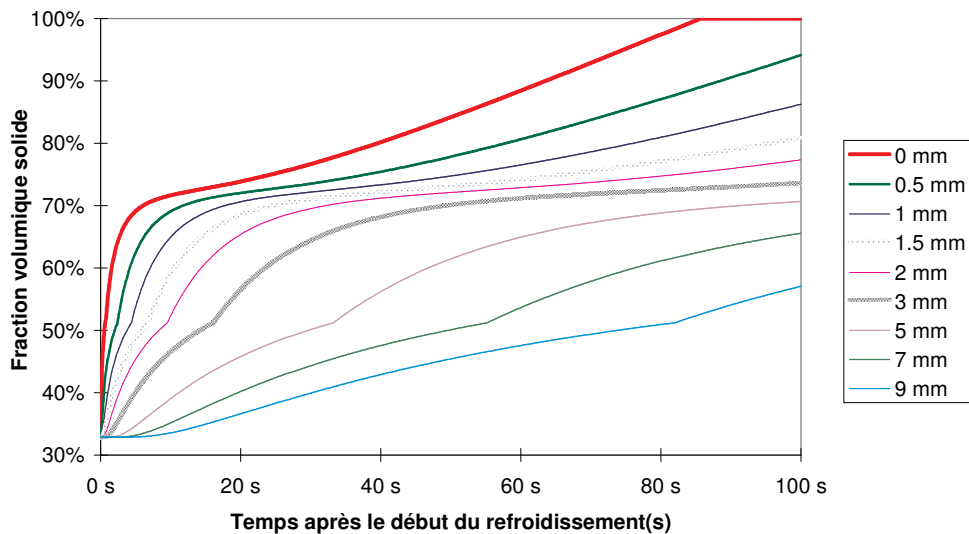


Figure 6-13 : Fractions volumiques solides dans le centimètre supérieur de la coulée VE-U1

La Figure 6-13 montre l'évolution de la fraction volumique de solide à diverses profondeurs. A partir de la valeur initiale estimée à 32 %_{vol} de solide dans le corium, on observe un épisode de solidification très rapide (10-15 %_{vol}/s) suivi d'une solidification plus lente dans le demi-millimètre supérieur où la phase de type fluorite a été trempée dans l'état correspondant aux hautes températures. Dans les couches plus profondes, la vitesse de solidification ne dépasse pas 5%_{vol}/s. On y observe néanmoins la phase tétragonale métastable.

On note un plateau autour de 70 %_{vol}. Ce plateau est dû au fait que la fraction solide évolue peu entre 1500 et 1900 K et reste autour de 70% (Figure 6-1). Sponh et al. (1989) ont rapporté un comportement similaire lors de son étude de la cristallisation de mélanges binaires, pour lesquels la cristallisation s'effectue en plusieurs étapes.

De même que pour les températures, on peut tracer des profils de fraction solide à divers instants (Figure 6-14). On peut alors définir une couche limite physico-chimique dans laquelle la fraction solide est significativement plus élevée qu'au cœur de la coulée. 2 secondes après le début du refroidissement, elle mesure environ 2 mm, tandis qu'elle atteint 10 mm au bout d'une vingtaine de secondes.

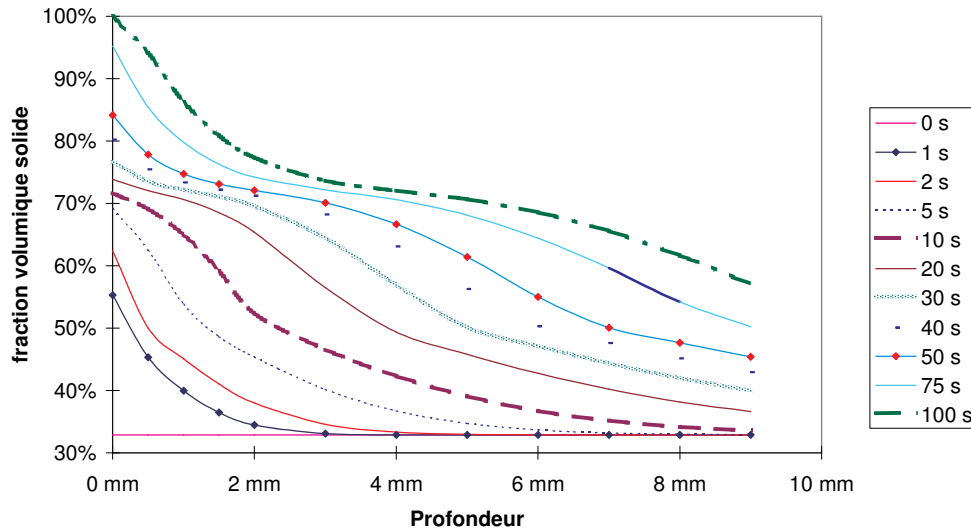


Figure 6-14 : Fronts de solidification dans VE-U1

Les changements graduels de phase qui se produisent durant la solidification, ainsi que la contraction thermique des constituants du corium entraînent des variations notables de la densité avec la température. Ces effets ont été étudiés en détails par Sparks & Huppert (1984) dans le cas des magmas basaltiques. En combinant la Figure 6-3 et la Figure 6-14, on note que la masse volumique du corium croît rapidement durant la première phase de la solidification (jusqu'à 1800 K). Dans les couches supérieures, on atteint $100 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$, ce qui explique la présence d'une porosité de retrait, car le corium ne peut accommoder de telles variations volumiques. Au cœur de la coulée, les changements de densité sont 50 fois plus lents.

Durant les 10 premières secondes, on a une couche lourde en surface, ce qui est favorable à la convection naturelle, avec un nombre de Rayleigh de l'ordre de 10^4 . Ensuite, l'augmentation de la viscosité va diminuer le nombre de Rayleigh et par conséquent, limiter l'importance de la convection naturelle.

6.2.6 Couche limite rhéologique

La viscosité de chaque couche de la coulée peut être estimée en appliquant les résultats du paragraphe 6.1.2. La viscosité varie de plus de 6 décades dans l'intervalle de solidification.

La Figure 6-15 montre l'évolution de la viscosité au cours du refroidissement à plusieurs profondeurs, calculée à l'aide de la formulation simplifiée de Shaw (6-3). La prise en compte de l'oxydation de la wüstite en hématite à la surface entraîne une augmentation encore plus élevée de la viscosité à la surface qui n'a pas été présentée, car on ignore la cinétique d'oxydation.

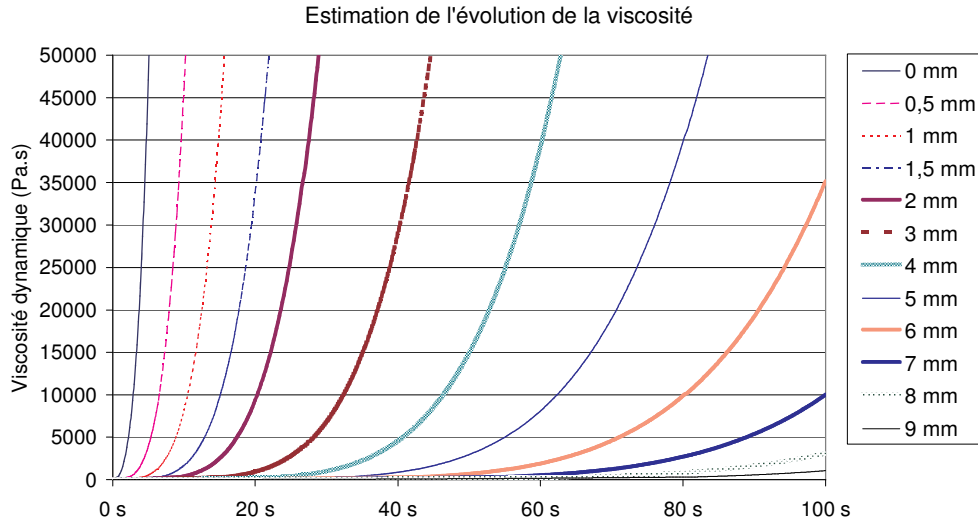


Figure 6-15 : Estimation de la viscosité.

La Figure 6-16 montre les profils de viscosité 1, 5, 10 et 20 s après le début du refroidissement. On observe la présence d'une couche limite rhéologique qui se propage vers l'intérieur de la coulée. Il y a un très fort contraste de viscosité entre l'intérieur de la coulée et sa surface, que la prise en compte du caractère amphotère de l'hématite présente près de la surface va encore accentuer.

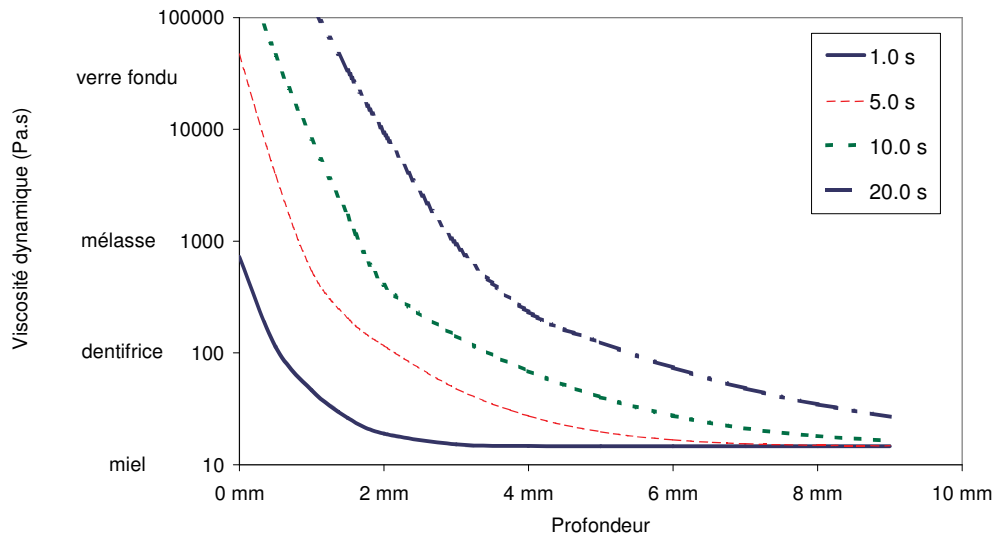


Figure 6-16 : profils de viscosité

On a observé à la surface de la coulée des ondulations ayant une concavité vers l'amont. Cet état de surface est comparable à celui des laves dites *pahoehoes cordés* qui s'étalent à faible vitesse (Figure 6-17).



Figure 6-17 : Pahoehoe cordé sur le volcan Kilauea (Hawaï). Photographie de D.J. Johnson, 1987

Lorsque les plis se forment, la surface plissée est transportée vers l'aval. Les cordes, plus visqueuses que l'intérieur de la coulée sont déformées par l'écoulement et acquièrent une forme parabolique.

La caractéristique principale de la structure cordée est l'espacement assez régulier des plis de surface. Leur longueur d'onde a été mesurée sur la coulée VE-U1 après refroidissement : 8 à 15 mm pour une profondeur de 2 à 4 mm. La longueur caractéristique de ces plis est la longueur d'onde curviligne, comprise ici entre 10 et 15 mm. Pour des pahoehoes basaltiques la longueur d'onde est comprise entre 10 cm et 3 mètres pour des profondeurs centimétriques (Fink & Fletcher, 1978) ; des plissements de 50 m de longueur d'ondes ont même été mis dans cette même catégorie par Fink (1980). Fink & Fletcher (1978) puis Fink (1980) ont attribué ces plis aux variations de viscosité dans l'épaisseur de la couche limite rhéologique, alors que Dragoni et al. (1992) l'attribuent à l'augmentation de la contrainte seuil de Bingham. Nous avons néanmoins choisi d'analyser les plissements à la surface des coulées de corium en considérant les contrastes de viscosité.

Biot (1957) a démontré l'expression suivante pour la longueur d'onde dominante Λ des plis dans le cas d'une couche fine de viscosité η et d'épaisseur H au-dessus d'un fluide de viscosité η' , dans l'hypothèse de glissement à l'interface :

$$\Lambda = \pi h \sqrt[3]{\frac{\eta}{6\eta'}} \quad (6-12)$$

Fletcher (1977) a montré, par une analyse des solutions d'amplitude infinitésimale, que la solution de Biot et celle pour une condition de glissement à l'interface sont pratiquement identiques dès que le rapport des viscosités est supérieur à 10.

Dans le cas des coulées, il n'y a pas à proprement parler deux couches de viscosité constante mais une décroissance continue de la viscosité de la surface vers l'intérieur dans la couche limite rhéologique. Une solution analytique a été proposée par Fink & Fletcher (1978) dans le cas où la viscosité suit une décroissance exponentielle dans la couche limite. On suppose que la viscosité dans la coulée est définie par :

$$\eta(z) = \begin{cases} \eta^0 e^{\gamma \cdot z} & -h \leq z \leq 0 \\ \eta_{\text{coeur}} (= \mu^0 e^{-\gamma \cdot h}) & z < -h \end{cases} \quad (6-13)$$

Le Tableau 6-2 liste les propriétés de la couche limite rhéologique à plusieurs instants du refroidissement. Les valeurs du coefficient de décroissance exponentielle γ (entre 2700 et

3500 m^{-1} , soit une profondeur caractéristique de l'ordre de $300 \text{ }\mu\text{m}$) sont du même ordre de grandeur que les 2300 m^{-1} estimées pour des laves du Kilauea.

Temps (s)	η° (Pa.s)	η_i (Pa.s)	H (mm)	γ (m^{-1})	$\Lambda\gamma$
1	720	15	1.4	2700	33
2	3 800	15	2.0	2800	33
5	47 000	15	2.3	3400	41
10	360 000	15	2.9	3500	42
20	2 900 000	15	4.3	2800	34

Tableau 6-2 : propriétés de la couche limite rhéologique de VE-U1 au cours du temps : viscosité de la surface, de l'intérieur, épaisseur de couche limite, coefficient de décroissance exponentielle et longueur d'onde adimensionnée

Fink & Fletcher (1978) ont montré que le plissement peut se produire sans discontinuité entre le cœur de la coulée et une «croûte plastique ». Cela se produit lorsque des ondulations de la surface se font amplifier d'un grand coefficient. Ceci se produit lorsque la longueur d'onde adimensionnée $\Lambda\gamma$ (produit de la longueur d'onde curviligne par le coefficient de décroissance exponentielle de la viscosité) dépasse 15. La longueur d'onde adimensionnée est comprise entre 30 et 45, soit 2 à 3 fois le seuil de plissement lors de cet essai, ce qui est cohérent avec le modèle de Fink & Fletcher (1978), vu les incertitudes importantes dans le calcul de la viscosité en fonction de l'épaisseur.

6.3 RESISTANCE THERMIQUE DE CONTACT

Les analyses de matériaux (§4.1) et leur interprétation thermodynamique (§4.2) ont permis de déterminer que le refroidissement d'une coulée de corium est le plus lent à proximité de l'interface coulée-substrat. Or, si le contact corium-substrat était parfait, les flux thermiques seraient très importants à cet endroit, entraînant un refroidissement encore plus rapide qu'en surface. Il y a donc une résistance thermique importante à l'interface.

De nombreux auteurs - voir par exemple les synthèses de Bardon (1988) et de Fletcher (1988) – ont étudié la résistance thermique de contact entre deux solides. La résistance thermique de contact au cours de la solidification d'un liquide a été moins étudiée, exceptée dans le cas de la fonderie. Prates & Biloni (1972) ont proposé des corrélations entre la microstructure d'alliages Al-Cu et leur résistance de contact. Isaac et al. (1985) ont montré que cette dernière évoluait au cours de la solidification. Loulou (1995, 1999a, 1999b) a mesuré la résistance thermique de contact de gouttes de métal en cours de solidification et a décrit son évolution temporelle. Rougnon-Glasson (1993) a étudié la solidification de liquides s'écoulant dans des tubes métalliques froids et en particulier la résistance de contact.

Comme il n'est pas possible de réaliser à hautes températures des mesures aussi précises que celles de Loulou (1995), nous devons nous contenter de l'analyse des mesures de températures dans le substrat. Nous comparerons les flux thermiques ainsi estimés avec un modèle de contact parfait, puis avec un calcul à l'aide du code CRUST prenant en compte une résistance thermique variable. La valeur de cette dernière sera enfin comparée au modèle de Rougnon-Glasson (1993).

6.3.1 Analyse des mesures thermiques dans le substrat

Dans le cas de l'essai VE-U1, le substrat était constitué de briques de zircone poreuse ZIRCOA 3004. La conductivité thermique de ces briques a été estimée à une valeur moyenne de $1,1 \pm 0,2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, à l'aide de la méthode inverse de Jurkowski et al. (1997). Ceci

correspond à une diffusivité thermique de 4.10^{-7} m²/s et une effusivité de 1700 SI, soit trois fois moins que celle du corium liquide.

La Figure 6-18 présente, à titre d'exemple pour deux abscisses, l'évolution de la température à 10 mm de la surface et pour des capteurs près de l'interface substrat-corium (l'emploi de thermocouples de 1,5 mm et le maintien de leur positionnement dans les conditions extrêmes de l'essai fait qu'il y a une incertitude de l'ordre du millimètre sur la position des capteurs). La face inférieure des briques est restée à une température constante (24°C).

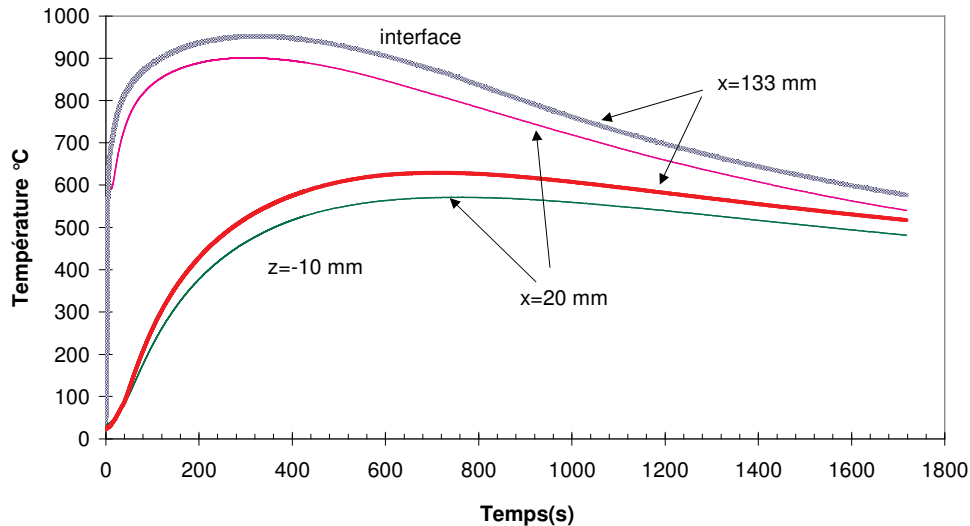


Figure 6-18 : Températures mesurées dans le substrat de VE-U1 et à l'interface supérieure des briques.

Connaissant l'évolution de la température entre deux points du substrat, il est possible de remonter à la température et au flux thermique à la surface supérieure du substrat en utilisant une technique inverse en conduction. Nous avons utilisé la technique de Raynaud (1986, 1999) pour résoudre le problème inverse (modélisation par différences finies et calcul explicite à chaque pas d'espace de la région inverse des températures pour tous les pas de temps).

Raynaud (1997) caractérise les problèmes inverses en conduction par le pas de temps adimensionné $\Delta t_i = a\Delta t/E^2$, où a est la diffusivité thermique et E la distance entre la surface et le capteur le plus proche. En considérant les propriétés thermiques des substrats et les pas de temps d'échantillonnage (entre 0,2 et 2 s), il est compris lors des essais d'étalement VULCANO entre 8.10^{-3} (pour VE-U1) et 4 (pour VE-U5 avec un substrat métallique et une distance de 1 mm). Ces valeurs sont faibles pour les substrats oxydes et rendent difficile la résolution du problème inverse. Heureusement, du fait des températures élevées, le rapport signal sur bruit R - défini (Raynaud, 1997) comme le rapport entre l'élévation de température entre deux pas de temps successifs et le bruit de mesure estimé par l'écart type de la mesure avant l'application de la source de chaleur - est important comme le montre la Figure 6-19. Ceci permet alors des estimations correctes des ordres de grandeur de la température et du flux à l'interface corium-substrat.

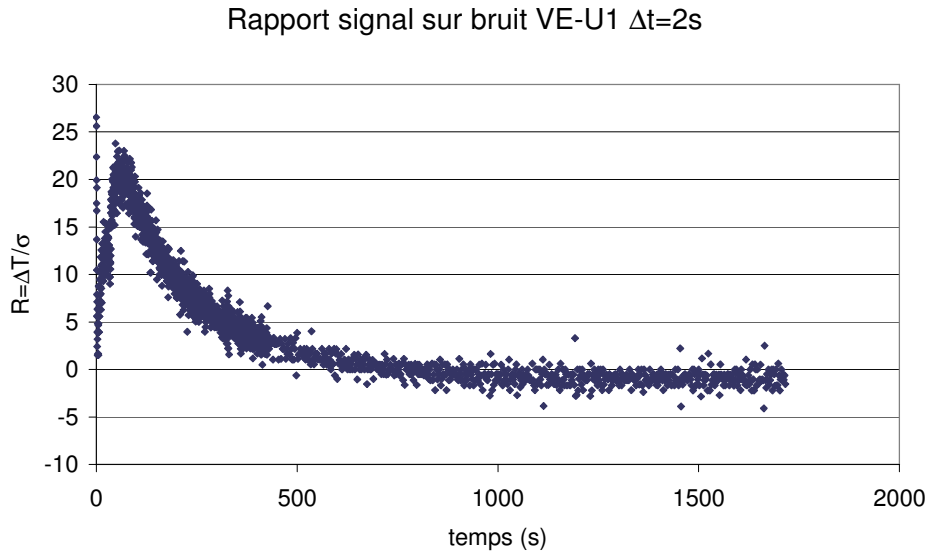


Figure 6-19: Rapport signal à bruit dans le cas de VE-U1(capteur à $x=20$ mm)

Les paramètres suivants (Journeau, 2002) permettent une estimation stable de la température d'interface : échantillonnage temporel de 2 s (10 pas de temps de l'enregistreur numérique), 100 mailles ($\delta x \approx 0,5$ mm) pour le problème direct entre le thermocouple et la surface inférieure de la brique, supposée isotherme, et 20 mailles pour le problème inverse entre le thermocouple et la surface ($\delta x \approx 0,5$ mm), ce qui correspond à un nombre de Fourier de l'ordre de $Fo \sim 4$.

Parmi les autres hypothèses du calcul, on suppose que la surface du substrat est soumise à une perturbation de température uniforme (ce qui représente assez bien le cas considéré ici sauf au moment du passage du front de coulée), et que les propriétés thermophysiques du substrat restent constantes dans l'intervalle de chauffage. Les incertitudes sur le positionnement des capteurs dans le substrat sont une des causes les plus importantes d'erreur de ce type de calcul, car il est plus difficile de positionner précisément des thermocouples dans une brique que dans une structure métallique. Cet effet serait amplifié en cas d'ablation du substrat.

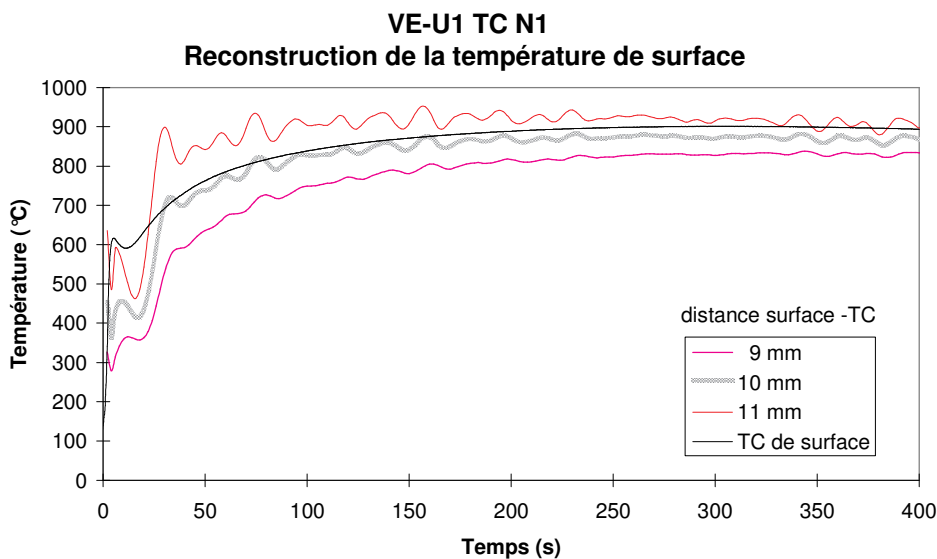


Figure 6-20 : Reconstruction de la température de surface à partir des mesures de la Figure 6-18 (à $x=20$ mm)

La Figure 6-20 présente la température estimée à l'interface supérieure du substrat de VE-U1. On remarque que la température mesurée par le thermocouple de surface est assez bien calculée. Un écart de 1 mm sur la position du thermocouple entraîne une variation de 80°C sur la température. Les oscillations des courbes calculées représentent les effets des incertitudes, attribuées principalement à l'hypothèse de propriétés physiques constantes.

On a aussi estimé les flux de chaleur à l'interface corium-briques de zircon au deux points de mesures (Figure 6-21). Ces flux de chaleur présentent des oscillations numériques dues à la faible valeur du pas de temps adimensionné. Néanmoins on peut noter que son niveau est très voisin pour les deux jeux de données (à $x=20$ et 133 mm) – ce qui est logique car les sollicitations thermiques sont au premier ordre indépendante de la position selon l'axe horizontal x dès que la coulée à recouvert les points de calcul – et est beaucoup plus faible que le flux rayonné vers le haut par le corium (estimé à partir de mesures pyrométriques). Par ailleurs, il convient de noter que le flux moyen lors des 20 s de l'étalement (de l'ordre de 5 kW/m^2) est supérieur à celui qui serait dû à la puissance résiduelle (inférieure à 2 MW/m^3 , ce qui donnerait 100 kW/m^2 pour une épaisseur de 10 cm). Ceci justifie a posteriori le choix de ne pas simuler la puissance résiduelle lors des essais d'étalement. De plus, la non-prise en compte de cette puissance est conservative, car elle va tendre à contrecarrer le refroidissement et l'immobilisation des coulées.

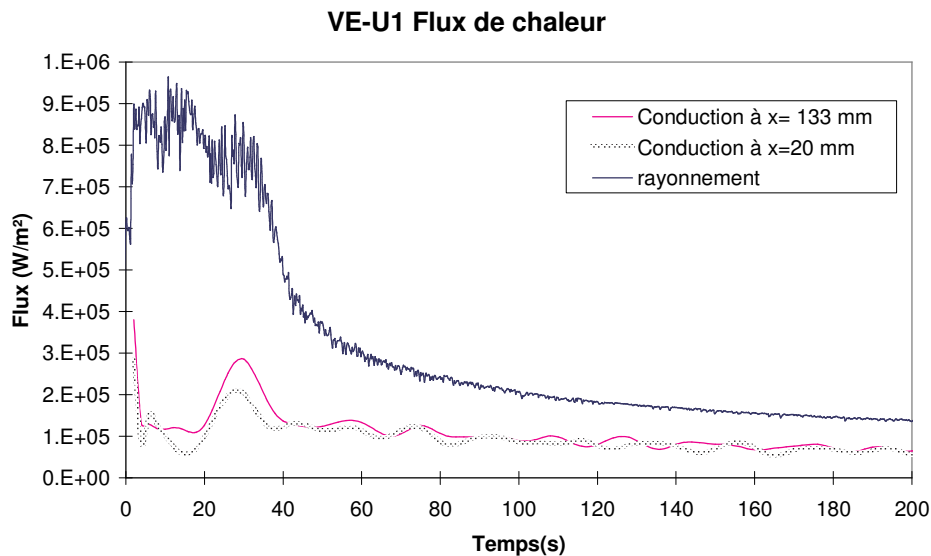


Figure 6-21 : Flux estimés à l'interface supérieure des briques de zircon VE-U1 comparés au flux rayonné par le corium.

Pour l'essai VE-U7, au cours duquel le même corium s'est étalé sur des substrats en béton ($a = 5,6 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$) et en zircon dense ($a = 3,8 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$), la Figure 6-22 montre que les flux de chaleur sont du même ordre de grandeur pour les deux substrats (autour de 400 kW/m^2) et sont nettement inférieurs aux flux rayonnés.

VE-U7 Reconstructed interface fluxes

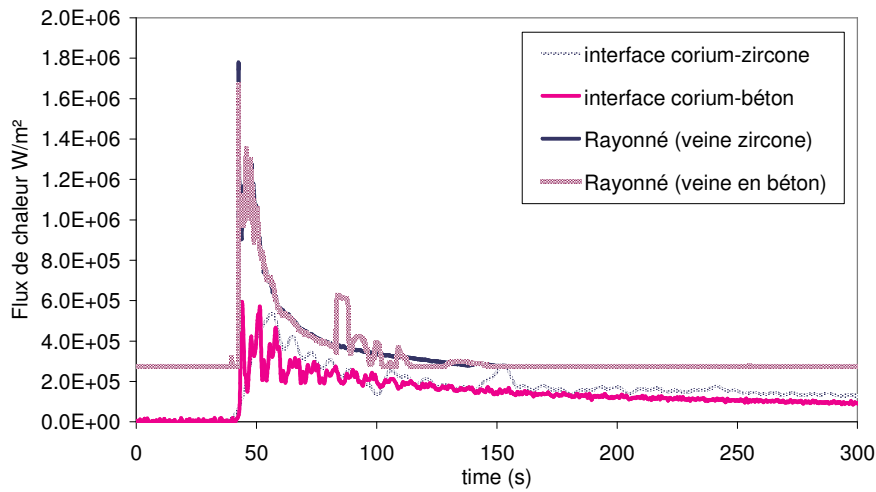


Figure 6-22 : Comparaison des flux transmis aux substrats en béton et en zircone dans VE-U7 et des flux rayonnés par les 2 coulées de corium.

Le Tableau 6-3 récapitule les flux conductifs (vers le bas) et radiatifs (vers le haut) estimés pour ces 3 configurations expérimentales.

	VE-U1	VE-U7 zircone	VE-U7 béton
Profondeur des thermocouples (mm)	10	7-12	2-7-12
Flux conductif maximal (kW/m ²)	300	550	600
Flux radiatif maximal(kW/m ²)	900	1800	1800

Tableau 6-3 : Estimation des flux thermiques pour trois coulées VULCANO

6.3.2 Modèles analytiques

Si le contact corium-substrat était parfait, le flux à l'interface serait donné par l'expression :

$$\varphi_{int} = b_1 \frac{T_1 - T_{int}}{\sqrt{\pi \cdot t}} = \frac{b_1 \cdot b_2}{b_1 + b_2} \cdot \frac{T_1 - T_2}{\sqrt{\pi \cdot t}} \quad (6-14)$$

	VE-U1	VE-U7 zircone	VE-U7 béton
Effusivité du corium	5400 SI	3350 SI	3350 SI
Effusivité du substrat	1600 SI	3800 SI	2100 SI
température d'interface	1635 K	1300 K	1620 K
Flux à l'interface après 1 s	1.2 MW/m ²	2.2 MW/m ²	1.6 MW/m ²

Tableau 6-4 : Calculs analytiques sans résistance thermique de contact

Le Tableau 6-4 présente les valeurs calculées pour les trois expériences analysées ci-dessus. La température d'interface est basse et correspond à des viscosités très élevées (>10⁵ Pa.s). Aux premiers instants du contact, on aura donc la formation d'une peau quasi-solide. Les flux de chaleur calculés sans prendre en compte la résistance thermique de contact sont largement surestimés par rapport aux valeurs calculées par conduction inverse dans le substrat (Tableau 6-3) et supérieurs aux flux rayonnés vers le haut (cf. Figure 6-21 pour VE-U1). En fait, la modélisation avec un contact parfait donne un flux décroissant qui surestime fortement

durant 8 à 60 secondes, selon les essais, les flux de chaleur effectivement transmis au substrat. Il faut donc prendre en compte l'existence d'une résistance thermique de contact.

On peut considérer les échanges de chaleur vers le substrat comme une succession de transferts thermiques : de l'écoulement de corium à l'interface inférieure de la coulée (h_{conv}) et ensuite à travers l'interface corium-substrat (h_{int}). Ces transferts thermiques peuvent être exprimés en terme de coefficients de transfert, en faisant l'hypothèse d'échanges au quasi-équilibre et en négligeant les effets de la solidification. L'hypothèse de continuité de flux à l'interface donne :

$$\varphi = h_{tot} \cdot (T_{corium} - T_{int,sub}) ; \frac{1}{h_{tot}} = \frac{1}{h_{conv}} + \frac{1}{h_{int}} \quad (6-15)$$

L'écoulement étant laminaire pour les essais VULCANO-Etalement, le coefficient de transfert de chaleur est estimé par (Becker, 1986) :

$$Nu = 0.664 \cdot Re^{1/2} \cdot Pr^{1/3} \quad (6-16)$$

Le Tableau 6-5 présente les valeurs calculées avec le modèle simplifié ci-dessus à partir des flux et températures d'interfaces estimés dans les trois configurations expérimentales considérées. Dans tous ces cas, la résistance thermique de contactⁱ estimée selon cette approche est de l'ordre de 10^{-3} K.m².W⁻¹. Pour l'essai VE-U7, on n'a qu'un rapport 2 entre les résistances de contact au-dessus de la zircone et du béton, même si les phénomènes à l'interface sont plus complexes sur le béton (fusion superficielle du mortier, dégagement gazeux) que sur la zircone dense. Pour ce qui est des états de surface, ils sont rugueux dans le cas de la brique de zircone poreuse de VE-U1 et du béton et lisse pour la zircone électrofondue de VE-U7.

	VE-U1	VE-U7 zircone	VE-U7 béton
Nu (corium)	120	38	38
h convection	230 W.K ⁻¹ .m ⁻²	250 W.K ⁻¹ .m ⁻²	320 W.K ⁻¹ .m ⁻²
Flux maximum à l'interface	2.10 ⁵ W/m ²	5.5.10 ⁵ W/m ²	5.5.10 ⁵ W/m ²
a a i	1150 K	1400 K	1350K
Coefficient global de transfert thermique	175 W.K ⁻¹ .m ⁻²	390 W.K ⁻¹ .m ⁻²	410 W.K ⁻¹ .m ⁻²
Conductance de contact	700 W.K ⁻¹ .m ⁻²	700 W.K ⁻¹ .m ⁻²	1500 W.K ⁻¹ .m ⁻²
Résistance de contact	1,4.mK.m ² .W ⁻¹	1,4 mK.m ² .W ⁻¹	0,7. mK.m ² .W ⁻¹

Tableau 6-5 : Modèle analytique de « convection sans solidification »

6.3.3 Modèle de résistance thermique de contact de Rougnon-Glasson

Rougnon-Glasson (1993) et Berthoud (2001) ont proposé la formulation semi-empirique suivante pour la conductance de contact lors du gel en masse d'un fluide s'écoulant à la vitesse u dans un tuyau :

$$h_{int} = 1,6 \cdot 10^3 \lambda_h \cdot u \cdot g \quad (6-17)$$

où $\lambda_h = \frac{2 \cdot \lambda_{corium} \cdot \lambda_{sub}}{\lambda_{corium} + \lambda_{sub}}$ est la moyenne harmonique des conductivités du corium et du

substrat, et g est un coefficient proche de 0,25 S.I. prenant en compte l'état de surface du substrat et le mouillage à l'interface.

ⁱ Inverse du coefficient de transfert à l'interface (ou conductance de contact).

Le Tableau 6-6 montre les valeurs calculées pour les 3 configurations expérimentales. On a estimé les résistances thermiques de contact entre 8 et $15 \cdot 10^{-3} \text{ K.m}^2.\text{W}^{-1}$. On observe une légère surestimation par rapport aux valeurs du Tableau 6-5, mais le coefficient g a été défini pour des substrats métalliques et on pourrait considérer une valeur légèrement plus faible pour les substrats en oxydes. Il faudrait vraisemblablement une valeur encore plus faible de g pour les substrats en béton. Néanmoins, cette corrélation donne les bons ordres de grandeurs.

	VE-U1	VE-U7 zircone	VE-U7 béton
Conductance de contact	$120 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-2}$	$146 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-2}$	$64 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-2}$
Résistance de contact	$8 \text{ mK.m}^2.\text{W}^{-1}$	$7 \text{ mK.m}^2.\text{W}^{-1}$	$15 \text{ mK.m}^2.\text{W}^{-1}$

Tableau 6-6: Résistances thermiques de contact estimées avec la corrélation de Rougnon-Glasson (1993)

Dans tous les cas considérés, les conductances de contact sont inférieures à $2000 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, seuil indiqué par Prates & Biloni (1972) pour les faibles échanges thermiques. Dans ce type de configurations, il avait observé une microstructure fine à l'interface excepté au front de coulée et l'avait attribué à un mécanisme de multiplication. On a aussi observé une microstructure fine à l'interface de VE-U1 (§ 4.1.3), ce qui peut laisser à penser que les mécanismes étaient semblables.

6.3.4 Profil de température en bas de l'étalement

Un calcul à l'aide de CRUST du comportement thermique proche de l'interface corium-brique donne, dans l'hypothèse d'une résistance de contact nulle et avec les mêmes propriétés physiques que pour l'étude de la partie supérieure de la coulée (§ 6.2.3), une surestimation de 150 K de la température à 10 mm de profondeur après 120 s . (Figure 6-23) et une surestimation d'un facteur 5 des flux thermiques dans le substrat. Par contre, une résistance de contact de $6 \cdot 10^{-3} \text{ K.m}^2/\text{W}$ permet une estimation relativement bonne de l'évolution de la température dans le substrat zircone, hormis les premiers instants. Ceci correspond à un coefficient de transfert thermique de $170 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$. Une incertitude de $\pm 1 \text{ mm}$ sur la position du thermocouple correspond à une incertitude entre $3,5$ et $9 \cdot 10^{-3} \text{ K.m}^2/\text{W}$ pour la résistance thermique de contact. Notre analyse devra donc se limiter à des ordres de grandeur.

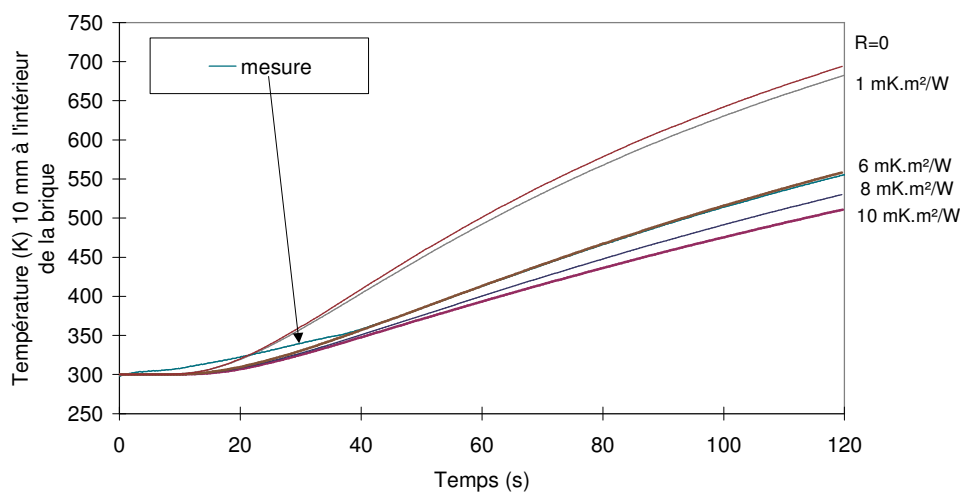


Figure 6-23 : Calcul CRUST de la température à 10 mm sous la surface des briques de zircone, pour diverses valeurs de la résistance de contact

La présence d'une résistance thermique de contact modifie fortement l'évolution de la température à la surface inférieure de la coulée (Figure 6-24). Elle reste au-delà de 1850 K durant les 12 secondes de progression de la coulée et au-dessus de 1700 K pendant 100 s alors que sans résistance de contact, la température d'interface s'établirait autour de 1500 K.

Loulou (1995, 1999b) a montré (Figure 6-25) que la résistance thermique de contact entre une goutte en cours de solidification et un substrat évoluait en 4 étapes : La première étape, d'environ 0,1 s, est caractérisée par une diminution importante de la résistance de contact, due à l'augmentation de la surface de contact lors du versement sur le substrat. Durant l'étape B, la résistance se stabilise, pendant environ 0,2 s, ce qui a été attribué au début de la solidification à l'interface, à partir de sites de nucléation sur certaines rugosités du substrat. Puis, pendant une durée de l'ordre de 0,5 s, la résistance thermique de contact croît régulièrement (étape C), vraisemblablement à cause du retraits qui diminue la surface d'échange, pour atteindre la valeur finale (étape D).

Qin et al. (2004) ont confirmé cette approche par des visualisations de la solidification d'une couche mince d'eau. Il apparaît que la glace se forme en quelques points discrets et forme, dans un premier temps, des îlots de glace isolés. La vitesse de solidification étant beaucoup plus rapide dans les directions parallèles à la paroi froide que selon la normale, une pellicule solide va se former et créer la résistance thermique de contact. La vitesse de croissance de cette pellicule solide est d'autant plus rapide que le substrat est conducteur, car sinon, la chaleur latente n'est pas évacuée et réduit l'efficacité du refroidissement.

Nous avons utilisé une version simplifiée (Figure 6-25) du modèle de Loulou et al. (1999b) pour les calculs à l'aide de CRUST en négligeant les étapes A et C et en supposant que le contact était parfait lors de l'étape B. Ce modèle nous a permis, malgré ses approximations, d'obtenir une compréhension physique des phénomènes se produisant dans le corium lors de son refroidissement.

La Figure 6-24 présente l'effet de ce délai sur la température à la surface inférieure de la coulée. Avec ce délai, la température initiale du corium est de l'ordre de 1550-1650 K, ce qui va entraîner un retrait et donc créer la résistance thermique de contact.

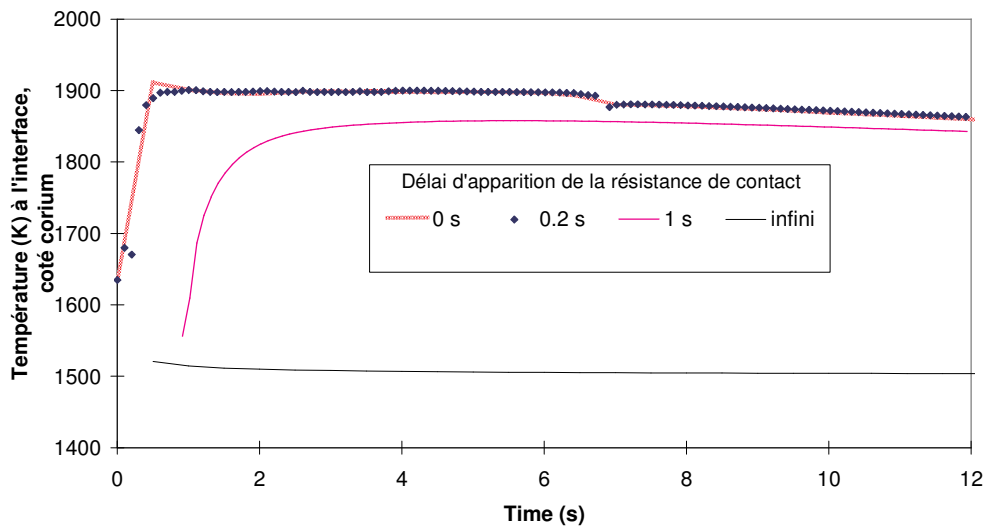


Figure 6-24 : Température à l'interface inférieure de la coulée VE-U1 estimée à l'aide de CRUST en faisant varier le temps à partir duquel on prend en compte une résistance de contact. (un délai infini correspond au calcul sans résistance de contact)

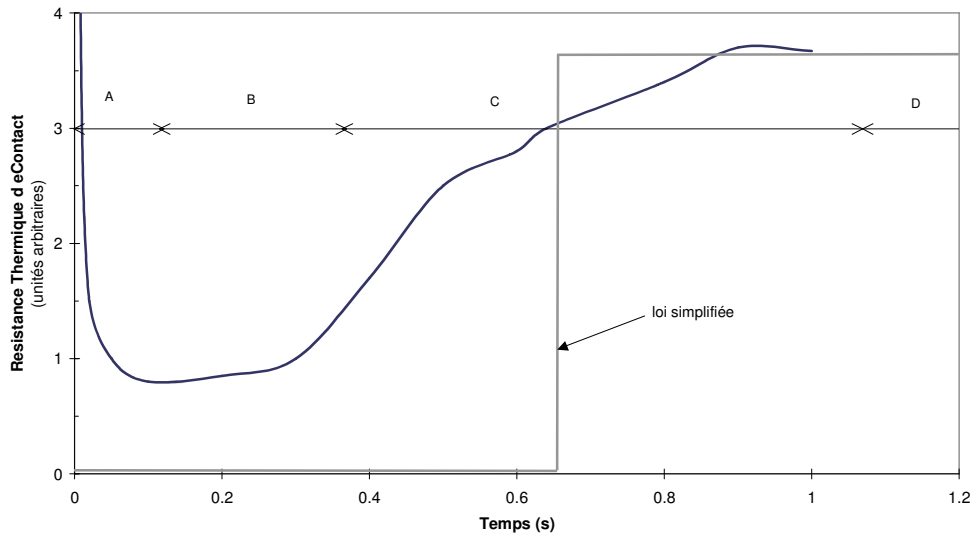


Figure 6-25 : Evolution schématique de la résistance thermique de contact entre un bain en cours de solidification et un substrat.

bleu : d'après les mesures de Loulou (1995) – gris : loi simplifiée pour CRUST

Un demi-millimètre au-dessus de l'interface, l'effet de ce délai est négligeable, dès lors qu'il est suffisamment bref. Avec un délai de 200 ms, compatible avec les résultats de Loulou (1995), on retrouve (Figure 6-26) d'une part la solidification rapide de la surface inférieure et d'autre part un refroidissement très lent juste au dessus (inférieur à 5 K/s en dessous de 1900 K, à comparer aux 10 K/s calculés pour l'intérieur de la coulée). Ces résultats sont cohérents avec l'interprétation thermodynamique des analyses matériaux (§4.2.2.1) indiquant que l'on n'avait approché l'équilibre thermodynamique (indiqué par la présence de tchernobylite) que dans une fine couche proche de l'interface inférieure de la coulée. Comme pour la partie haute de la coulée, nous pouvons mettre en évidence des couches limites thermiques, physico-chimiques et rhéologiques près de cette interface.

**Températures calculées dans le bas de la coulée
Rc = 6mK.m²/W après 0.2 s**

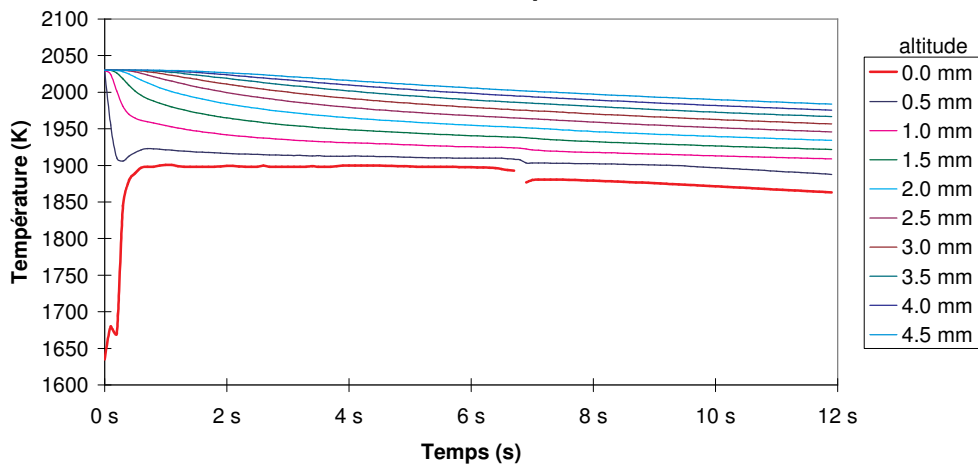


Figure 6-26 : Calcul de la température du corium près du substrat

6.3.5 Synthèse

Il n'est pas possible de mesurer directement la résistance thermique de contact dans le cas de coulées de corium, vu les hautes températures. Néanmoins, l'utilisation de méthodes inverses a montré que le flux de chaleur était significativement plus faible que ce que l'on aurait eu en cas de contact parfait. Ce comportement a aussi été mesuré lors des essais COMAS (§2.6.2) avec du corium oxyde-métal, alors que lors des essais SPREAD (§2.5.3) avec de l'acier fondu, les flux de chaleurs les plus élevés étaient dirigés de la coulée d'acier vers le béton.

Diverses approches convergentes ont permis d'estimer la valeur de cette résistance de contact lors des essais VULCANO. Le coefficient de transfert thermique à l'interface corium-substrat est de l'ordre de 100 à 700 W.m⁻².K⁻¹, selon les approches retenues. Ces valeurs sont plus faibles que les valeurs rapportées dans la littérature : Loulou et al. (1999b) a mesuré des conductances de contact pour des gouttes d'étain solidifiant sur un substrat de nickel entre 10³ et 4.10⁴ W.m⁻².K⁻¹. Prates & Biloni (1972) a indiqué des conductances de contact entre 800 et 10⁴ W.m⁻².K⁻¹ pour du cuivre solidifiant sur divers substrats. Isaac et al. (1985) ont estimé que la conductance thermique à l'interface aluminium en cours de solidification diminue de 4000 à 400 W.m⁻².K⁻¹ en une minute. Parihar & Wright (1997) indiquent une conductance de l'ordre de 3000 W.m⁻².K⁻¹ pour les contacts élastomères-métal. Wang & Matthys (2002) ont mesuré des conductances de contact entre 400 W.m⁻².K⁻¹ (contact cuivre fondu-plaque en aluminium dépoli) et 60 000 W.m⁻².K⁻¹ (nickel sur plaque meulée en aluminium) après une phase initiale avec un contact plus intense.

Les modélisations avec le code CRUST ont permis de retrouver les conditions de refroidissement lent expliquant que les conditions d'équilibre thermodynamique n'ont été mise en évidence (par la présence de tchernobylite) que dans une fine couche proche de l'interface corium-substrat. De plus, les résistances thermiques de contact à l'interface corium-substrat sont de l'ordre de grandeur calculé par la corrélation de Rougnon-Glasson (1993).

6.4 TEMPERATURE D'ARRET DE LA COULEE

Pinkerton & Wilson (1994) ont proposé d'utiliser le nombre de Grätz comme indicateur de l'arrêt des coulées de lave. Ce nombre est le rapport entre l'advection et la conduction dans la hauteur de la coulée

$$Gz = \frac{ud_h^2}{aL} \quad (6-19)$$

où d_h est le diamètre hydraulique de la coulée (4 fois la section divisée par le périmètre).

Essai	Vitesse	Diffusivité thermique	Longueur d'étalement	Hauteur	Gz
VE-07	0.15	8E-07	0.5	0.02	700
VE-U1	0.2	4E-07	1.13	0.03	630
VE-U3	0.04	8E-07	0.37	0.05	1750
VE-U5	0.06	5E-07	0.8	0.035	350
VE-U7 béton	0.04	5E-07	0.35	0.06	1 550
VE-U7 céramique	0.04	3E-07	0.45	0.06	1 200
Entre VE-U8	0.04	6E-07	0.15	0.045	4 600

Tableau 6-7 : Evaluation du nombre de Grätz à l'arrêt de la coulée

Le Tableau 6-7 présente une évaluation du nombre de Grätz pour 7 coulées. Il varie entre 600 et 4600. Ces valeurs sont très éloignées de la gamme 280-375 trouvé par Pinkerton & Wilson

(1994) comme critère d'arrêt pour des laves d'Hawaï et de l'Etna. Il apparaît clairement que ce critère n'est pas transposable et que le nombre de Grätz à l'immobilisation doit vraisemblablement dépendre des propriétés du matériaux.

Nous avons par contre trouvé un critère d'arrêt qui a été validé sur les différents essais d'étalement avec des mélanges corium-béton: la température du front de coulée à l'instant de l'arrêt de la progression correspond à des fractions volumiques de solide autour de $70 \pm 10 \%_{\text{vol}}$. Le Tableau 6-8 (Journeau et al., 2003) présente les températures mesurées expérimentalement et les fractions solides correspondantes. Pour tous les essais avec des mélanges corium-béton, où l'intervalle liquidus –solidus est très grand, la fraction à l'immobilisation est toujours du même ordre de grandeur. Par contre, ce critère ne s'applique pas à du corium sortant de la cuve et ayant un intervalle de solidification inférieur à 100°C , tel que celui de l'essai VE-U8, pour laquelle la température à l'arrêt est inférieure au solidus.

Essai	VE-04	VE-07	VE-U1*	VE-U3	VE-U7	VE-U8
Température d'immobilisation	1700-1850°C	1450-1600°C	<1400-1550°C	1400-1550°C	1500-1650°C	2300-2400°C
Fraction volumique de solide	60-75% _{vol}	60-70% _{vol}	> 60-70% _{vol}	70- 80% _{vol}	65-75% _{vol}	100% _{vol}
Fraction de l'enthalpie entre liquidus et solidus	45-55%	55-65%	55-75%	70-80%	60-70%	>100%

Tableau 6-8 : Température du front de coulée pour les essais VULCANO où cette donnée a été enregistrée

* Pour VE-U1, température lors de la destruction du miroir permettant de viser le front de coulée.

Cette mesure ne peut être transposée directement au critère d'immobilisation du modèle de Dinh et al. (2000) décrit au § 2.4.1. En effet, ils considèrent un volume caractéristique de corium au front de la coulée dont la température sera évidemment supérieure à celle de la surface qui a été mesurée par pyrométrie optique. Néanmoins, ceci fournit une borne supérieure pour la température d'immobilisation.

Si on considère maintenant la fraction de l'enthalpie entre le liquidus et le solidus à enlever pour atteindre l'immobilisation, on trouve des valeurs entre 45 et 80 % pour les mélanges corium-béton. Un critère sur la fraction volumique de solide semble plus fondé qu'un critère sur l'enthalpie, tant d'un point de vue théorique (c'est l'augmentation de la fraction solide qui conditionne l'élévation de la viscosité de la coulée) qu'expérimentale (un seuil autour de 70%_{vol} de solide semble validé par les essais VULCANO).

Finalement, Griffiths & Fink (1992) ont proposé d'utiliser le rapport Ψ des temps caractéristiques de solidification et d'advection comme indicateur de la morphologie des coulées de lave. Ce nombre adimensionné a été estimé pour les essais d'étalement réalisés sur VULCANO.

Essai	Vitesse	Hauteur	t_a	t_s	Ψ
VE-07	0.15	0.02	0.1	240	1800
VE-U1	0.2	0.03	0.2	85	567
VE-U3	0.04	0.05	1.3	150	120
VE-U7 béton	0.04	0.06	1.5	75	50
VE-U7 céramique	0.04	0.06	1.5	105	70
VE-U8	0.04	0.045	1.1	2	2

Tableau 6-9 : Evaluation du paramètre Ψ de morphologie des coulées.

Les relations entre Ψ et la morphologie des coulées ne correspondent pas quantitativement à ce qui a été trouvé pour les laves (Griffiths & Fink, 1992 ; § 2.2), mais les mêmes tendances sont observées :

- Pour les faibles valeurs de Ψ , on observe la formation de croûtes à la surface de la coulée de corium.
- Pour des valeurs de Ψ entre 50 et 2000, on a une morphologie avec la formation d'une peau viscoélastique plissée.
- Pour les essais KATS d'étalement de métal, Cognet (2003) a estimé le nombre Ψ autour de 400 000 avec une phénoménologie différente (gel en masse).

Les écarts par rapport aux valeurs proposées par Griffiths & Fink (1992) viennent sans doute de l'effet sur l'évaluation du temps de solidification de l'intervalle liquidus-solidus qui atteint 1000°C pour les mélanges corium-béton. En pratique, il conviendrait de se limiter à une température « d'immobilisation effective » pour se rapprocher des résultats obtenus sur les laves.

6.5 CONCLUSIONS

La modélisation thermodynamique permet de déterminer, à partir de la composition totale, de la température et du chemin de solidification, la répartition des phases dans la coulée et leur composition. On peut alors en estimer les propriétés physiques. Les mesures de températures lors des essais d'étalement nous permettent d'optimiser ce jeu de propriétés physiques pour le modèle CRUST de transferts par conduction. Dans le cas de VE-U1, une émissivité de 1 et des conductivités thermiques apparentes de 5 et 2,3 W.m⁻¹.K⁻¹ selon la température donnent des résultats satisfaisants. La première valeur de la conductivité rend compte de l'augmentation des échanges de chaleur dus à la convection et au rayonnement dans les porosités.

Avec ce jeu de données, on a alors estimé l'évolution de la température en tout point de la coulée. On observe la présence de couches limites thermiques, physico-chimiques et rhéologiques. Les gradients de viscosité près de la surface sont très importants et peuvent être approchés par une décroissance exponentielle de coefficient de l'ordre de 3000 m⁻¹. Un des effets visibles de cette couche limite rhéologique est la formation de plis à la surface de la coulée, qui sont comparables à ce que l'on observe pour les laves cordées. L'ordre de grandeur de la longueur d'onde adimensionnelle de ces plis est conforme à l'analyse de Fink (1978).

Dans la partie inférieure de la coulée, les échanges de chaleurs sont contrôlés par l'apparition d'une résistance thermique de contact quelques dixièmes de secondes après le contact corium-substrat. Cette résistance réduit fortement les flux thermiques vers le bas et permet un refroidissement de la couche inférieure du corium où les analyses de matériaux ont révélé des conditions de refroidissement suffisamment lentes pour approcher l'équilibre thermodynamique. Plusieurs approches ont été employées pour estimer la résistance thermique de contact, car les conditions de température ne permettent pas une détermination in situ. Toutes convergent pour des valeurs élevées de la résistance thermique de contact entre 0,7 et 9.10⁻³ K.m²/W.

Finalement l'analyse des données expérimentales a permis de proposer un critère d'arrêt pour les coulées de corium. Il n'est pas basé sur le nombre de Grätz comme celui proposé par Pinkerton (1994) pour les coulées de laves, qui sont généralement vitreuses, mais sur la fraction volumique de solide à la surface du front de coulée : les mélanges corium-béton s'arrêtent lorsque la surface du front atteint une température correspondant à environ 70 %_{vol} de solide. Ce critère n'est pas transposable aux coulées de corium non mélangé à du béton, qui s'immobilisent avec une croûte solide au front, qui a donc une température inférieure au solidus.

REFERENCES DU CHAPITRE 6 :

- Bardon, J.P., 1988, Heat transfer at solid-liquid interface, basic phenomenon, recent works, *Proc. 4th Eurotherm Conf.*, vol.1, Nancy, Sept. 1988.
- Beck, J.V., Blackwell, B., St Clair Jr., C.R., 1985, *Inverse Heat Conduction*, Wiley-Interscience, New York .
- Becker, M., 1986, *Heat Transfer, a modern approach*, Plenum Press, New York.
- Berthoud, G., 2001, Freezing of Pure Melt Flowing into Tubes, dans :Ehrhard, P., Riley, D.S., Steen, P.H., éditeurs, *Interactive Dynamics of Convection and Solidification*, Kluwer Acad. Publ., Dordrecht, NL, pp. 249-268.
- Biot, M.A., 1957, Folding instability of a layered viscoelastic medium under compression, *Proc R. Soc. London, Ser. A*, 242 , 444-454.
- Cleveland, J., 1997, *Thermophysical properties of materials for water-cooled reactors*, Rapport Technique AIEA TECDOC-949, Vienne, Autriche.
- Cognet, G., 2003, Corium Spreading and Coolability (CSC) Final Summary Report, *EU co-sponsored research on reactor safety/severe accidents: Final summary reports - 'EXV' cluster projects*, Office Official Publication European Communities, Luxembourg, EUR 19962 EN.
- Crawley, A. F., Densities of liquid Metals and Alloys, *Int. Metal. Rev.*, 19, 32-48, 1974.
- Dinh, T.N., Konovalikhin, M.J., Sehgal, B.R., 2000, Core Melt Spreading on a reactor Containment Floor, *Progr. Nucl. Energ.*, 36, 4, 405-468.
- Dragoni, M., Pondrelli, S., Tallarico, A., 1992, Longitudinal deformation of a lava flow : the influence of Bingham rheology, *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, 52, 247-254.
- Fayette, S., Piluso, P., 2002, Etude des propriétés thermiques du corium – Base de données CORPRO, *Conf. Matériaux 2002*, Tours, France.
- Fink, J.H., Fletcher, R.C., 1978, Ropy pahoehoe: surface folding of a viscous fluid, *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 4, 151-170.
- Fink, J., 1980, Surface folding and viscosity of rhyolithe flows, *Geology*, 8, 250-254.
- Fink, J. K., Pietri, M. C., 1997, *Thermophysical properties of uranium dioxide*, Argonne National Lab. Report ANL/RE-97/2.
- Fletcher, R.C., 1977, Folding of a single viscous layer: exact infinitesimal-amplitude solution, *Tectonophys.* 39, 593-606.
- Fletcher, L.S., 1988, Recent developments in Contact Conductance Heat Transfer, *ASME J. Heat Transfer*, 110, 10059-1070.

- Gardie, P., 1992, *Contribution à l'étude thermodynamique des alliages U-Fe et U-Ga par spectrométrie de masse à haute température, et de la mouillabilité de l'oxyde d'yttrium par l'uranium*, Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique, Grenoble.
- Gatt, J.-M., Buffe, L., Marchand, O., 1995, Numerical modelling of the corium-substratum system, *13th Int Conf Structural Mech. Reactor Technol. (SMIRT 13)*, Porto Allegre, Brazil.
- Glorieux B., Millot F, Rifflet JC, Coutures, J.P. 1999, Density of superheated and undercooled liquid alumina by a contactless method, *Int J Thermophys* 20, 1085-1094.
- Griffiths, R.W., Fink, J.H., 1992, The morphology of lava flows in planetary environments: predictions from analog experiments, *J. Geophys. Res.* B97, 19739-19748.
- Harmathy, T.Z., 1970, Thermal properties of concrete at elevated temperatures, *J. Mater.* 5, 47-74.
- Hohorst, J. K., 1990, *SCDAP/RELAP5/MOD3 code Manual Volume 4: MATPRO – A Library of Materials Properties for Light Water Reactor Accident Analysis*, Rapport EG&G Idaho NUREG/CR 5273.
- Hull, F. C., Estimating alloy densities, *Metal Progress*, Nov. 1969, 139-140.
- Isaac, J., Reddy, G.P., Sharma, G.K., 1985, Variations of heat transfer coefficients during solidification of castings in metallic moulds, *Br. Foundryman*, 11/1985, 465-468.
- Jaeger, J.C., 1967, Cooling and Solidification of Igneous Rocks, in Basalts, *The Poldervaart Treatise on Rocks of Basaltic Composition*, vol 2, H.H. Hess & A. Poldervaart, éd., 503-536, Interscience, New York.
- Journeau, C., Sudreau, F., Gatt, J.-M., Cognet, G., 1999, Thermal, physico-chemical and rheological boundary layers in multi-component oxidic melt spreads, *Int. J. Therm. Sci.* 38, 879-891.
- Journeau, C., 2002, Transferts thermiques à l'interface corium-substrat, *Congrès Français de Thermique, SFT-2002*, Vittel, 3-6/6/2002.
- Journeau, C., Boccaccio, E., Brayer, C., Cognet G., Haquet, J.-F., Jégou, C., Piluso, P., Monerris, J., 2003, Ex-vessel corium spreading : results from the VULCANO spreading tests, *Nucl. Eng. Des.* 223, 75-102.
- Journeau, C., Piluso, P., Frolov, K. N., 2004, Corium physical properties for Severe Accident R&D, *Proceedings of Int. Conf. Advanced Nucl. Power Plant ICAPP '04*, Pittsburgh, Pennsylvanie.
- Jurkowski, T., Jarny, Y., Delaunay, D., 1997, Estimation of thermal conductivity of thermoplastics under moulding conditions: an apparatus and inverse algorithm, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 40, 4169-4181.
- Kamigaito, O. , 2000, Density of compound oxides, *J. Ceram. Soc. Jap.* 108, 944-947.

- Khairulin, R.A., Stankus, S.V., Sorokin, A.L., 2002, Determination of the two-melt phase boundary and study of the binary diffusion in liquid Bi-Ga system with a miscibility gap, *J. Non-Crystalline Solids*, 297, 120-130.
- Konovalikhin, M. J., 2001, *Investigation on Melt Spreading and Coolability in a LWR Severe Accident*, Thèse de Doctorat, Ecole Royale Polytechnique, Stockholm, Suède.
- Landau, L.D., Lifschitz, E.M., 1989, *Course of Theoretical Physics, vol. 6: Fluid Mechanics*, Pergamon Press, Oxford.
- Loulou, T., 1995, *Etude expérimentale de l'évolution des conditions thermiques de contact lors de la solidification d'un métal tombant sur une paroi métallique refroidie*, Thèse de Doctorat de l'Université de Nantes.
- Loulou, T., Artyukhin, E.A., Bardon, J.P., 1999a, Estimation of thermal contact resistance during the first stages of metal solidification processes: I Experiment principle and modelisation, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 42, 2119-2127.
- Loulou, T., Artyukhin, E.A., Bardon, J.P., 1999b, Estimation of thermal contact resistance during the first stages of metal solidification processes: II Experimental set-up and results, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 42, 2129-2142.
- Nelson, S. A. , Carmichael, I. S. E., 1979, Partial volumes of Oxide Components in Silicate Liquids, *Contrib. Mineral. Petrol.*, 71, 117-124.
- Paradis, J.F., Rhim, W.K, 1999, Thermophysical properties of zirconium at high temperature, *J. Mater. Res.*, 14, 3713-3719.
- Parihar, S.K. , Wright, N.T.R., 1997, Thermal Contact Resistance at Elastomer to Metal Interface, *Int. Comm. Heat Mass Transfer* 24, 1083-1092.
- Peterson, G.P., 1987, Thermal Contact Resistance in Waste Heat Recovery Systems, *Proc. 8th ASME, ETCE Hydrocarbon Processing Symp.*, Dallas, TX, pp. 45-51.
- Pinkerton, H., Wilson, L., 1994, Factors controlling the length of channel fed lava flows, *Bull. Volcanol.*, 56, 108-120.
- Prates, M., Biloni, H., 1972, Variables affecting the nature of the chill zone, *Metall. Trans.*, 3, 1501-1507.
- Qin, F.G.F., Chen, X.D., Farid, M.M., 2004, Growth kinetics of ice films spreading on a subcooled solid surface, *Separ. Purif. Technol.*, 39, 109-121.
- Ramacciotti, M., Journeau, C., Abbas, G., Werozub, F., Cognet, G., 1998, Propriétés Rhéologiques de mélanges en cours de solidification, *Cahiers Rhéol.*, XVI, 303-308.
- Raynaud, M., Bransier, A., 1986, A new finite difference method for the nonlinear inverse heat conduction problem, *Num. Heat transfer*, 9, 27-42.
- Raynaud, M., 1997, Le problème inverse de conduction de chaleur, *Techniques de l'Ingénieur, traité Génie Energétique*, Paris, France, BE 8 265, pp 1-17.

- Raynaud, M., 1999, Conception optimale des expériences, *Métrologie Thermique et Techniques inverses*, S. Benet, J.-J. Serra, éd., Presses Univ . Perpignan, pp. 137-156.
- Rougnon-Glasson, N., 1993, *Gel d'un fluide chaud s'écoulant sur une paroi froide. Modélisation de la résistance d'interface*, Thèse de Doctorat de l'Institut National Polytechnique de Grenoble.
- Shaw, H.R., 1969, Rheology of Basalt in the Melting Range, *J. Petrol.*, 10, 510-535.
- Sparks, R.S.J., Huppert, H.E., 1984, Density changes during the fractional crystallization of basaltic magmas: fluid dynamic implications, *Contrib. Mineral. Petr.*, 85, 300-309.
- Sponh, T., Hort, M., Fischer, H., 1989, Numerical simulation of the crystallization of multicomponent melts in thin dikes or sills, I: the liquidus phase, *J. Geophys. Res.*, B93, 4880-4894.
- Strizhov, V., Voltchek, A., Ozrin, V., Yamshchikov, D., Likhansky, V., Khoruzhii, O. , Moskovchenko, A. 1995, *Property data base that used in calculation*, Rapport OCDE/RASPLAV.
- Tacke, K.-H., 1985, Discretization of the explicit enthalpy method for planar phase change, *Int J. Numer. Methods Eng.* 21, 543-554.
- Wang, G.-X., Matthys, E.F., 2002, Experimental determination of the interfacial heat transfer during cooling and solidification of molten droplets impacting on a metallic substrate: effect of roughness and superheat, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 45, 4967-4981.

Chapitre 7 : Validation des modèles et codes d'étalement

Comme il est hors de question de réaliser des expériences en matériaux réels à l'échelle 1 mettant en jeu près de 100 t de corium, les essais à échelle plus réduite ont pour objectif de valider des modèles de calcul qui pourront permettre d'analyser le cas réacteur. Les modèles et codes développés par les différents acteurs de ce programme international de R&D ont été validés sur une série d'essais en matériaux simulants et en corium (voir par exemple Spindler, 2004, pour le code THEMA du CEA). Dans le cadre du projet européen ECOSTAR, deux benchmarks de codes d'étalement ont été réalisés en comparaison avec des résultats expérimentaux. Le premier essai, ECOKATS 1, mettait en œuvre 1550 kg (170 litres) de simulants hautes températures (Spengler, 2004). L'essai VE-U7 (§3.3.4) a donné lieu au deuxième exercice de comparaison de ce projet (Journeau et al., 2006) et sera décrit dans ce chapitre. Il a pour avantage de considérer une coulée entièrement dans le régime visqueux proche de l'arrêt et de permettre l'étude de l'effet du substrat ainsi que de celui d'une bifurcation dans la section d'étalement (Macedonio & Longo, 1999). Cet essai est caractérisé par une viscosité assez importante dès le début de la coulée (de l'ordre de 20 Pa.s). De ce fait, les calculs se concentrent sur le régime gravité-inertie qui est celui qui précède l'arrêt de l'étalement. Avec un nombre de Reynolds maximum,

$$Re_{\max} = \frac{\rho \cdot u_{\max} \cdot d_h}{\eta_{\min}} \approx \frac{5100 \times 0,1 \times 0,2}{20} \approx 5$$

l'écoulement reste laminaire pendant toute la durée de sa progression.

Les propriétés physiques du corium et des substrats ont été listées par Journeau et al. (2006). Dans une première partie, nous présenterons la validation des modèles semi-analytiques puis nous décrirons la validation des codes de calcul européens sur l'essai VE-U7. Nous concluons par quelques applications de ces modèles et codes au cas de l'EPR.

7.1 VALIDATION DES MODELES SEMI-ANALYTIQUES

Foit (2004) a formalisé une technique d'estimation de la viscosité cinématique ν à partir de la progression du front de coulée dans un secteur angulaire en utilisant la formule :

$$\nu = \frac{1}{3n} (\alpha / 2\pi)^{-3} \theta_f^8 g G^3 \sum_{i=1}^n \left[(r_{\text{exp}}(t_i) + r_0)^4 - r_0^4 \right]^{-4} t_i^4, \quad t_i \leq t_{\text{vers}} \quad (7-1)$$

où α ($\approx 0,17$ rad, soit $9,5^\circ$) est l'ouverture du secteur angulaire,

\dot{V} ($\approx 3 \cdot 10^{-4}$ m³/s) est le débit volumique,

$r_{\text{exp}}(t_i)$ est la position, en coordonnées cylindrique, du front de coulée à l'instant t_i ,

r_0 la position de l'entrée de l'aire d'étalement,

t_{vers} la durée du versement,

θ_f ($\approx 0,7214$) est une constante d'intégration.

Pour $t \in [4,8, 7,16]$ s, l'équation (7-1) donne une viscosité de 25 Pa.s si on considère une masse volumique moyenne de 5100 kg/m³. Cette valeur est consistante avec les viscosités estimées par la méthodologie décrite au chapitre 4 pour la température initiale du corium (2450 ± 80 K), en prenant un paramètre $C=6,3$ dans la corrélation de Ramacciotti et al.(2001). En supposant constante la viscosité, la position radiale du front est donnée par (Foit, 2004) :

$$r(t) = (\alpha / 2\pi)^{-3/8} \theta_f \left(\frac{g G^3}{3\nu} \right)^{1/8} (t + t_0)^{1/2} \quad (7-2)$$

$$\text{où } t_0 = \left[(\alpha / 2\pi)^3 \left(\frac{r_0}{\theta_f} \right)^8 \frac{3\nu}{gG^3} \right]^{\frac{1}{4}} \quad (7-3)$$

Bien que la température initiale du corium soit largement en dessous du liquidus, le calcul effectué à partir de la formule (7-2) permet de bien modéliser les 7-10 premières secondes de l'étalement (Figure 7-1). Ceci confirme la valeur de la viscosité issue de la formule (7-1). L'effet du refroidissement va être de freiner l'étalement du corium. Il est plus prononcé dans la seconde phase de la coulée et nécessite des calculs couplant la thermique à l'hydrodynamique. On notera que cette deuxième phase avec une viscosité croissante est presque inexistante sur le substrat en béton où le corium s'est arrêté lors de cet essai après un étalement « à viscosité constante ». Alors qu'on avait observé une augmentation d'un rapport 4 de la viscosité, attribuée à l'effet des gaz de décomposition du béton, lors de l'étalement de simulants hautes températures sur du béton dans les essais KATS-13 (Foit, 2002) et ECOKATS-1 (Spengler et al., 2004), la viscosité du corium s'étalant sur le substrat en béton n'a pas changé lors de cet essai.

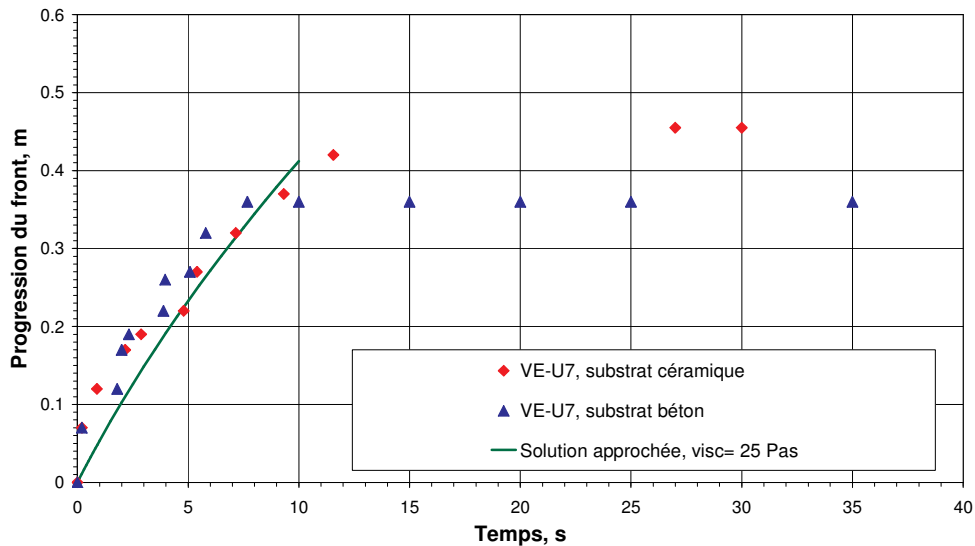


Figure 7-1 : Estimation de la progression des coulées à l'aide du modèle analytique à viscosité constante

Considérons maintenant le modèle semi-analytique de Dinh et al. (2000) et Konovalikhin (2001) : La viscosité dynamique de 25 Pa.s estimée précédemment correspond à une température initiale de 2403 K (2130°C) si on considère que la viscosité suit la loi d'Arrhénius modifiée avec C=6. Dans ce cas, la vitesse dans le régime gravité-viscosité à la fin de la décharge est, selon (2-32) égale à $u_{\text{visc}} = 0,04$ m/s. L'épaisseur finale de la coulée (63 mm) est égale à environ 10 fois l'épaisseur capillaire.

Plusieurs possibilités existent pour définir la température de solidification : on peut considérer que la fraction solide à l'immobilisation χ , définie par Konovalikhin (2001) comme étant la fraction de chaleur latente à évacuer avant que la coulée ne soit immobilisée, correspond à une fraction de l'enthalpie entre l'enthalpie à la température de liquidus et celle à la température de solidus. On peut aussi considérer les fractions massiques et volumiques de solide. Dans le cas du corium ces fractions peuvent être très différentes (Figure 7-2), du fait de l'importance de la chaleur sensible dans l'enthalpie et des écarts de densité entre phases.

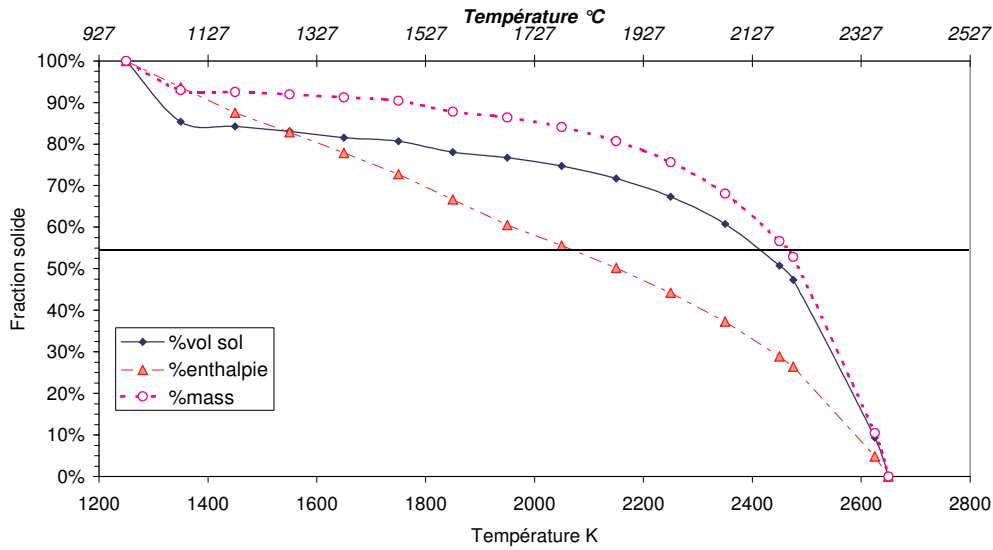


Figure 7-2 : Différentes fractions solides estimées pour le corium de VE-U7

Le flux enlevé à la coulée est estimé à l'aide de (2-35) à $1,5 \text{ MW/m}^2$ (il s'agit à 99% du flux rayonné).

La longueur moyenne d'étalement (0,4 m) correspond à une durée d'étalement de 10 s au cours desquelles 48 kJ/kg ont été ôtés au front de coulée avant son immobilisation. On peut alors estimer la température d'immobilisation à prendre en compte dans l'équation (2-35). Il s'agit ici de 2360 K. A cette température, il y a 60%_{vol} de solide et $\chi=36\%$ de l'enthalpie entre liquidus et solidus a été évacuée. La prise en compte d'une solidification à $\chi=55\%$ de l'enthalpie donne une surestimation de la longueur d'étalement (estimée à 0,6 m), mais l'ordre de grandeur est néanmoins correct. La prise en compte d'une immobilisation à une fraction volumique de solide de $\chi=55\%$ _{vol} donne une bonne approximation (0,3 à 0,9 m selon la valeur de la température d'entrée) de la valeur expérimentale (0,35 à 0,45 m selon le substrat). Il faut noter que ce critère, basé sur une fraction volumique de solide est consistant avec le critère d'arrêt à $70 \pm 10 \%$ _{vol} en surface (§6.4). En effet, ce critère expérimental est basé sur la température de surface du front de coulée, alors que le critère de solidification effective concerne un élément de volume au front de coulée, dont la fraction solide est, par construction, inférieure à celle de la surface.

Par contre, si nous prenons comme critère d'arrêt 55% de l'enthalpie, nous trouvons, pour une valeur initiale de 25 Pa.s ($T_{\text{ini}} = 2403 \text{ K}$), une longueur d'étalement de l'ordre de 0,6 m, ce qui surestime les longueurs d'étalement obtenues expérimentalement, mais donne néanmoins un ordre de grandeur correct.

Nous avons appliqué cette méthode sur 4 autres essais VULCANO (VE-07, VE-U1, VE-U3, VE-U8), l'essai FARO L-26S (Tromm et al., 2000), deux essais S3E (Konovalikhin et al., 2000), 4 essais KATS (Fieg et al., 1996) et 3 essais CORINE (Spindler & Veteau, 1999). Le calcul simplifié permet de retrouver le résultat expérimental dans la grande majorité des cas (Tableau 7-1). Dans les cas où l'écart est significatif, l'ordre de grandeur est néanmoins trouvé. Ceci permet de valider ce modèle simplifié tout en sachant que du fait des nombreuses approximations, le résultat peut être entaché de 50 % d'erreur.

Il a de plus été étendu par Konovalikhin et al. (2000) aux étalements bidimensionnels. Néanmoins, des codes de calcul mécanistes sont nécessaires pour obtenir des résultats plus précis.

Le Tableau 7-1 donne aussi les résultats des calculs (Spindler & Veteau, 2004) menés à l'aide du code THEMA en utilisant les mêmes modèles de viscosité de Ramacciotti et al. (2001). On

voit que, dans la limite des incertitudes sur les conditions initiales et aux limites, le code de calcul permet de retrouver les longueurs expérimentales avec une plus grande précision. Mais, on remarque aussi que l'incertitude sur les conditions initiales et aux limites a une influence plus grande que les incertitudes liées au modèle dans la plupart des essais à hautes températures.

Expérience	T initiale	T 55% _{vol}	Longueur expérimentale	L calculée Semi-analytique	Erreur relative calcul THEMA
VULCANO VE-07	2250 ± 85 K	1410 K ⁱ	55 cm	1-1,3 m	+30 – +150 %
VULCANO VE-U1	2100 ± 85 K	1900 K	111 cm	90 – 140 cm	-60 – +70%
VULCANO VE-U3	2400 ± 60 K	2060 K	33 cm	75-125 cm	+40 – +70 %
VULCANO VE-U7	2450 ± 75 K	2400 K ⁱⁱ	35-45 cm	20-95 cm	+5 – + 150%
VULCANO VE-U8	2930 K	2826 K	40 cm	45-80 cm	—
FARO L-26S	2923 ± 50 K	2875 K ⁱⁱ	92 cm	80-175 cm	125 – 615 %
RIT 3MDC Ox1	1475 ± 20 K	1275 K ⁱⁱⁱ	3 m	2,8-4,7 m	—
RIT 3 MDC Ox2	1375 ± 20 K	1275 K	2,2 m	2 – 2,5 m	—
KATS-5 (oxyde)	2473 ± 50 K	2060 K	7,5 m	6,1 – 6,7 m	—
KATS 6 (métal)	1973 ± 50 K	1810 K	8,5 m	8,5-9 m ^{iv}	—
KATS 7 métal	2588 ± 50 K	1810 K	7,6 m	~6 m	—
KATS 7 oxyde	2468 ± 50 K	2060 K	5,9 m	~4 m	—
CORINE Cu ₂ N1	471 K	412 K ^v	3,8-4 m	~4m	12%
CORINE Cu ₂ N10	471 K	412 K	3,4-3,7 m	3,9-4,1 m	-6%
CORINE Cu ₂ NE1	473 K	465 K	3,2 – 3,6 m	3,3-3,5 m	-12 %

Tableau 7-1 : Validation du modèle simplifié de l'Ecole Polytechnique Royale et du code THEMA (avec les lois de viscosité de Ramacciotti)

7.2 BENCHMARK DES CODES D'ETALEMENT SUR VE-U7

7.2.1 LAVA

Pour calculer l'étalement VE-U7 avec le code LAVA (§2.4.2.3), GRS a utilisé des mailles de 1 cm x 1 cm, soit environ 1900 nœuds. Les calculs sont effectués séparément pour les deux secteurs angulaires en supposant une répartition identique du flux de matière entre les deux secteurs jusqu'à l'arrêt de la coulée sur le béton, puis un déversement complet sur le substrat en céramique.

En dessous de la température de liquidus, on considère le corium comme un fluide de Bingham dont la contrainte seuil (Figure 7-3) est calculée par la loi puissance proposée par Thomas (1961), combinée avec l'extrapolation aux fractions solides élevées d'Ancey & Jorrot (2001) .

ⁱ Valeur obtenue en substituant le hafnium par de l'uranium lors du calcul GEMINI2, ce qui peut entraîner une sous-estimation significative.

ⁱⁱ Du fait de la faible surchauffe et des incertitudes de mesures, l'intervalle d'incertitude de la température initiale comprend la température d'immobilisation, d'où une très grande incertitude sur le résultat pour ces configurations d'essai.

ⁱⁱⁱ Dans ce cas, comme la composition est proche d'un eutectique et que les densités des deux composants ne sont pas trop éloignées, il y a peu de différence entre un critère sur l'enthalpie ou sur la fraction volumique.

^{iv} Epaisseur finale proche de la limite capillaire.

^v Température de fusion de l'eutectique utilisé lors de cet essai. La solidification est considérée lorsque 55% de la chaleur latente est ôtée.

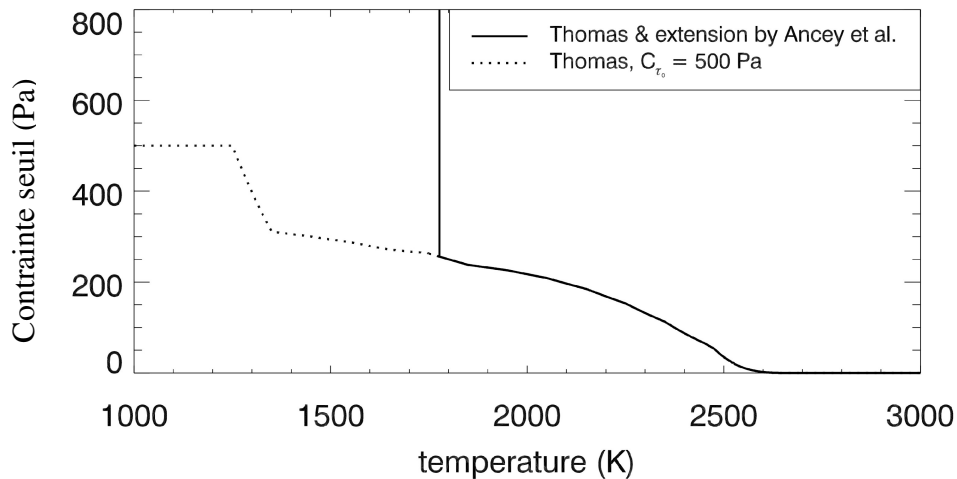


Figure 7-3 : Contrainte seuil pour le corium de VE-U7

Le transitoire de propagation de la coulée sur la section en céramique a été calculé par LAVA (Figure 7-4). La colonne de gauche représente l'évolution du champ de température. La formation d'une croûte supérieure est calculée, à des températures plus basses que celles qui ont été observées expérimentalement au front (Tableau 6-8). Lors de l'arrêt de l'apport de corium ($t=14$ s), le corium s'est déjà étalé jusqu'à sa longueur finale (46 cm). Ceci est en excellent accord avec la longueur effectivement coulée (46 cm). Seul un petit volume près du front contribue à l'immobilisation de la coulée. Il est beaucoup plus froid que le reste de la coulée.

Pour le calcul d'étalement sur le substrat en céramique, un terme de perte thermique supplémentaire (de l'ordre de 500 kW/m^2) est pris en compte pour représenter l'augmentation des échanges de chaleur du fait du fort bullage. La valeur de 500 kW/m^2 a été optimisée lors des calculs paramétriques des essais KATS sur béton. La Figure 7-5 présente deux calculs de l'étalement sur le béton : le premier (tirets) fait juste l'hypothèse d'une perte thermique supplémentaire de 500 kW/m^2 du fait du bullage, le second (traits mixtes) prend en plus en compte l'effet de la porosité sur la viscosité, qui est multipliée par 4 dans le cas d'une porosité de 40%. Le deuxième calcul conduit à une réduction de la longueur d'étalement ($L=38 \text{ cm}$) en bon accord avec l'expérience ($L=36 \text{ cm}$), mais sous estime légèrement la première phase de l'étalement. Cela peut vouloir dire que la porosité a mis quelques secondes avant de s'établir, ce qui peut correspondre au temps nécessaire à échauffer le béton jusqu'aux températures de dissociation des carbonates et hydroxydes.

La progression du front de coulée calculée par LAVA correspond bien aux données expérimentales par les deux substrats (Figure 7-11).

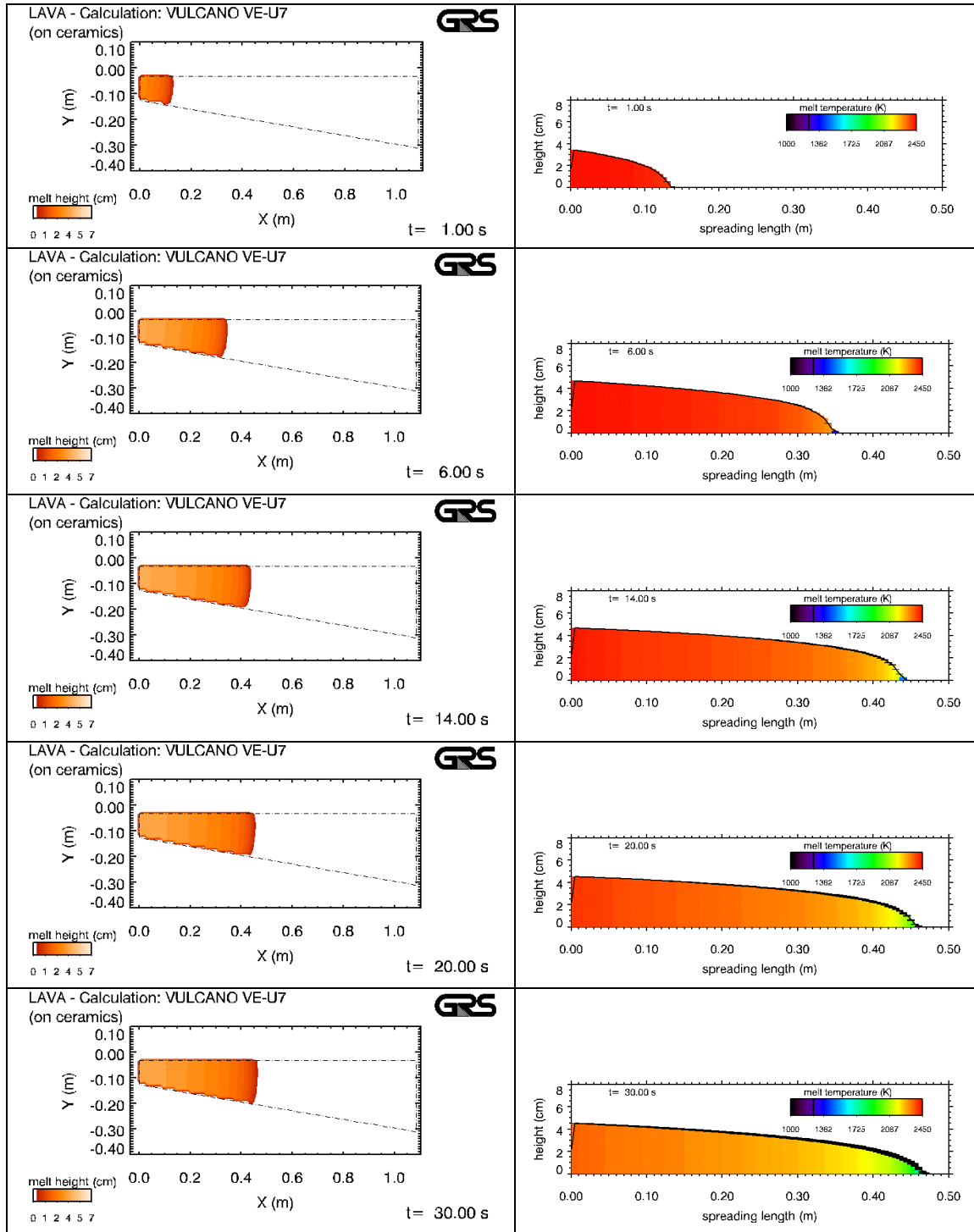


Figure 7-4 : LAVA : Propagation et refroidissement de la coulée sur la céramique (Journeau et al. , 2006)

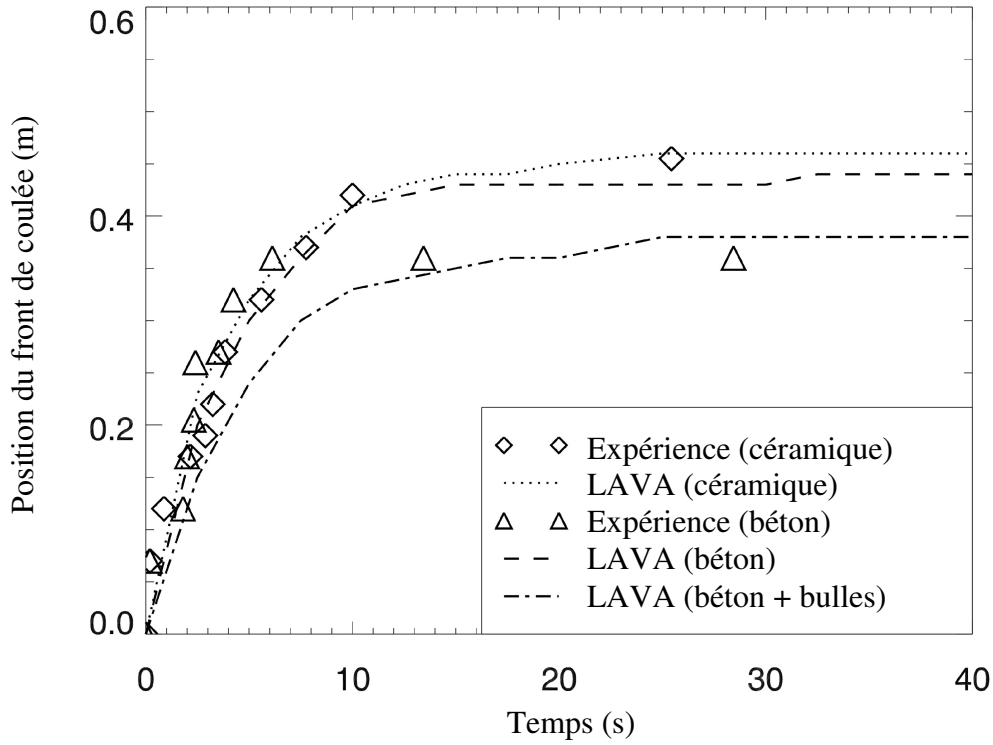


Figure 7-5 : Evolution de longueur d'étalement calculée en 2D par LAVA

Les températures dans les deux substrats (Figure 7-6 et Figure 7-7) sont recalculées de façon satisfaisantes, au vu des incertitudes provenant principalement de l'incertitude sur les positions des thermocouples et sur la résistance de contact.

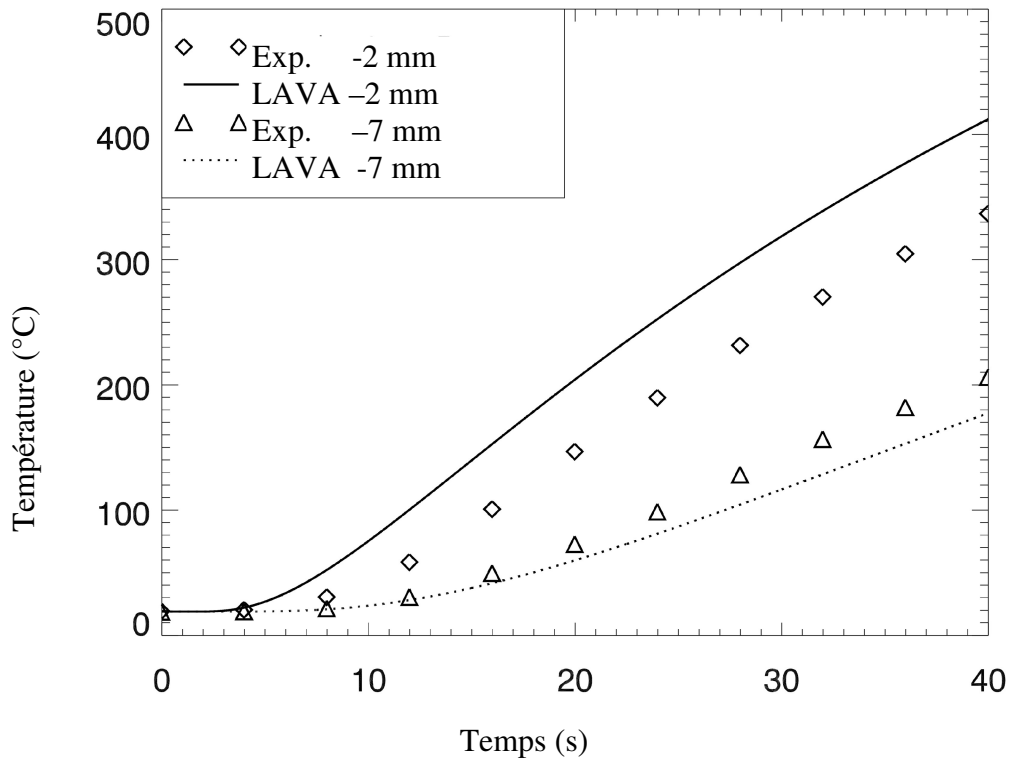


Figure 7-6 : Températures dans le substrat en céramique mesurées et calculées par LAVA.

Pour l'étalement sur le substrat en béton, le code LAVA prend en compte un terme supplémentaire de pertes thermiques représentant les pertes liées à l'interaction corium-béton et à l'effet des gaz de décomposition du béton sur la convection dans le corium. Ce terme supplémentaire est estimé à 500 kW/m^2 , d'après les analyses des essais KATS avec substrat en béton. Dans la Figure 7-5, on a représenté deux calculs pour l'étalement sur le substrat en béton : le premier (tirets) ne prends en compte que les pertes thermiques liées à l'interaction entre le corium et le béton et retrouve une longueur d'étalement proche de celle sur le substrat en céramique ; le second (traits mixtes) prend en compte l'effet du bullage par les gaz de décomposition du béton sur la viscosité (qui est augmentée d'un facteur 4 dans cette modélisation correspondant à une porosité de 40%). Le deuxième calcul amène à une réduction de la longueur de coulée (38 cm) qui se rapproche de la valeur expérimentale (36 cm).

Pour ce qui est de la température dans le substrat en béton, les prédictions de LAVA sont proches des mesures. Les écarts calcul-expériences peuvent être expliqués par l'incertitude sur la position des capteurs et par la non prise en compte des nombreuses transitions de phase dans le béton.

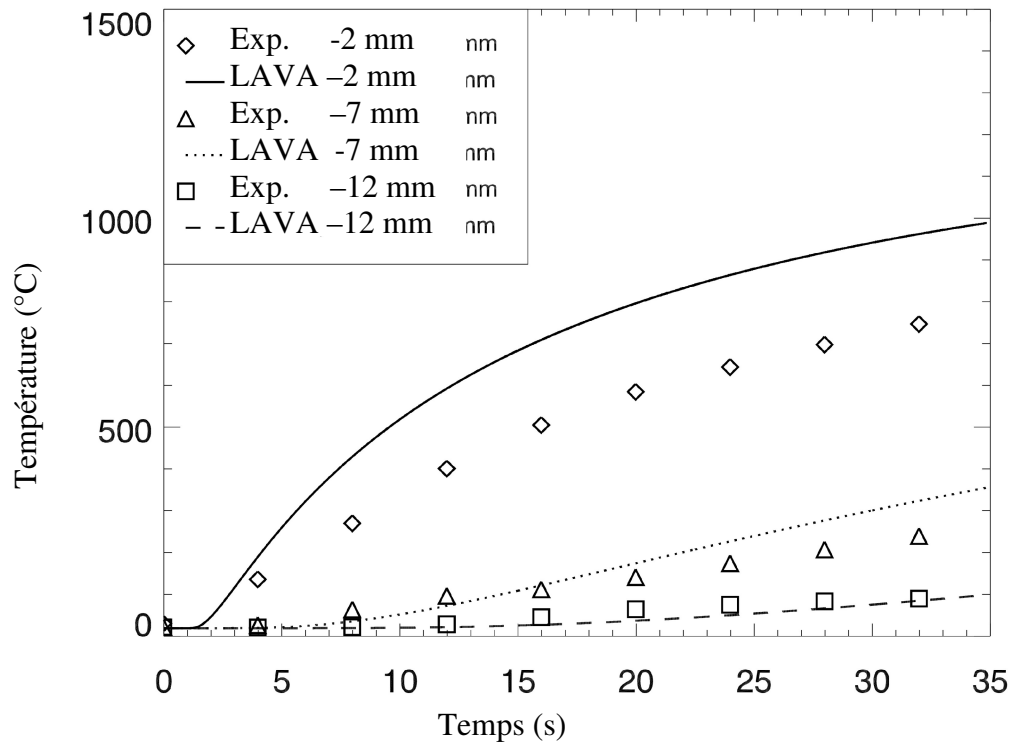


Figure 7-7 : Températures dans le substrat en béton mesurées et calculées par LAVA.

7.2.2 THEMA

Le code THEMA est un code de calcul mono ou bidimensionnel décrit au §2.4.2.1. Après des calculs préliminaires avec un seul canal d'étalement, nous avons modélisé la section d'essais avec ses deux canaux d'étalement, l'un ayant un substrat en zircone, l'autre en béton. La répartition entre les deux canaux est déterminée par le calcul et non fixée a priori par l'utilisateur.

Les comparaisons antérieures des calculs THEMA avec des données expérimentales (Spindler, 2000 ; Journeau, 2005) indiquent que les principaux paramètres déterminant les caractéristiques de l'étalement (longueur, durée) et l'évolution de la température dans le

substrat sont, par ordre d'importance décroissante, la température d'arrivée du corium, la loi viscosité-température et la résistance thermique de contact. Afin d'optimiser la corrélation entre calcul et expérience pour l'essai VE-U7, on a adopté la méthodologie suivante en deux étapes :

1. Calcul pour un triplet (température du corium dans le bac de rétention, loi de viscosité dynamique du corium, résistance thermique au contact corium-substrat) pour lequel chaque paramètre se situe dans l'intervalle d'incertitude, afin d'obtenir les bonnes longueurs de coulée ;
2. Optimisation de la valeur de la résistance thermique de contact afin d'obtenir un calcul satisfaisant de l'évolution de la température dans le substrat.

Cette optimisation n'a pas une solution unique, les paramètres constituant un ensemble lié. L'ensemble suivant est une de ces solutions :

- Température d'entrée : 2500 K
- Loi de viscosité : $\eta = 0.0260.e^{-0,0300(T-T_{liquidus})}$ (Pa.s)
- Résistance thermique sur le substrat en béton: $R_{th} = 1.2.10^{-3} \text{ K.m}^2.W^{-1}$
- Résistance thermique sur le substrat en céramique: $R_{th} = 5.4.10^{-3} \text{ K.m}^2.W^{-1}$

La loi de viscosité ci-dessus correspond à la corrélation de Ramacciotti (§ 5.2.2) avec un coefficient C de 6,3. Cette valeur est voisine de la valeur C=6,1 qui a été optimisée pour l'essai VE-U1 (Ramacciotti et al., 1998). On note aussi que la valeur de la résistance thermique est significativement plus faible sur le béton que sur la céramique, ce qui est cohérent avec la résultats du § 6.3.

La Figure 7-8 montre qu'avec ce jeu de données, le calcul THEMA reproduit de façon satisfaisante les données expérimentales.

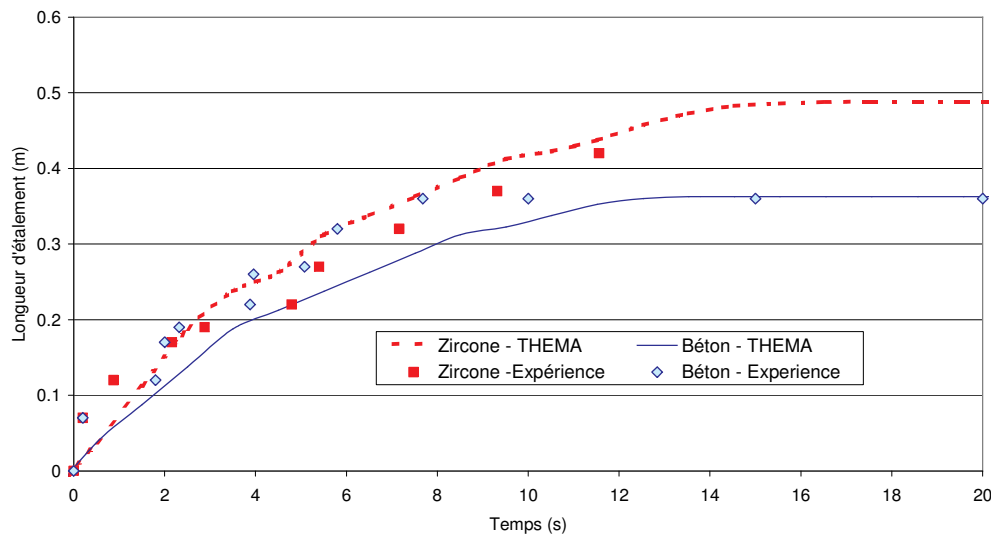


Figure 7-8 : Estimations par THEMA de la progression du front de coulée

Pour les thermocouples placés à 7 et 12 mm de profondeur dans les substrats en céramique et en béton (Figure 7-9), quelle que soit leur abscisse, l'écart entre les températures mesurées et calculées est toujours inférieur à 30 K, pendant toute la phase d'étalementⁱ, ce qui est parfaitement acceptable au vu des incertitudes sur les données d'entrées et les propriétés physiques. Pour ce qui est des capteurs à 2 ± 1 mm de profondeur, l'écart est plus grand du fait de l'influence de l'incertitude relative de position du capteur et de la rugosité du béton partiellement ablaté.

ⁱ Les modèles de THEMA ne sont plus valides lorsque la coulée est à l'arrêt. Il faut alors utiliser un modèle de conduction transitoire dans le substrat (tel que CRUST).

Enfin, le calcul THEMA n'indique aucune ablation du béton pendant la phase d'étalement. Expérimentalement, nous n'avons trouvé qu'une ablation de quelques millimètres de mortier, les agrégats de silice étant restés en place.

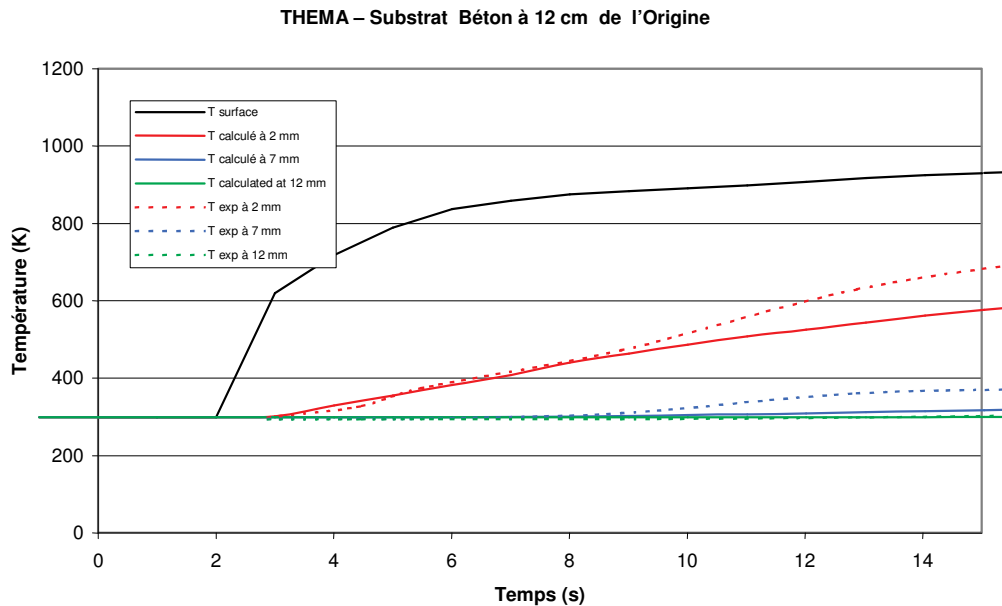


Figure 7-9 : Comparaison calcul THEMA - Expérience pour la température dans le béton

Un autre calcul a été effectué avec THEMA en utilisant uniquement des données a priori issues des essais antérieurs (par exemple, on a considéré la loi de viscosité de Ramacciotti avec $C=6$ et une résistance de contact nulle) et utilisés pour la validation du code par Spindler & Veteau (2004). Ce calcul a mis en œuvre un nouveau modèle (Veteau et al., 2003) prenant en compte l'effet des gaz de décomposition du béton sur la viscosité de la coulée. Les calculs ont pris en compte les incertitudes de ± 75 K sur la température d'entrée et de $\pm 15\%$ sur le calcul des fractions volumiques.

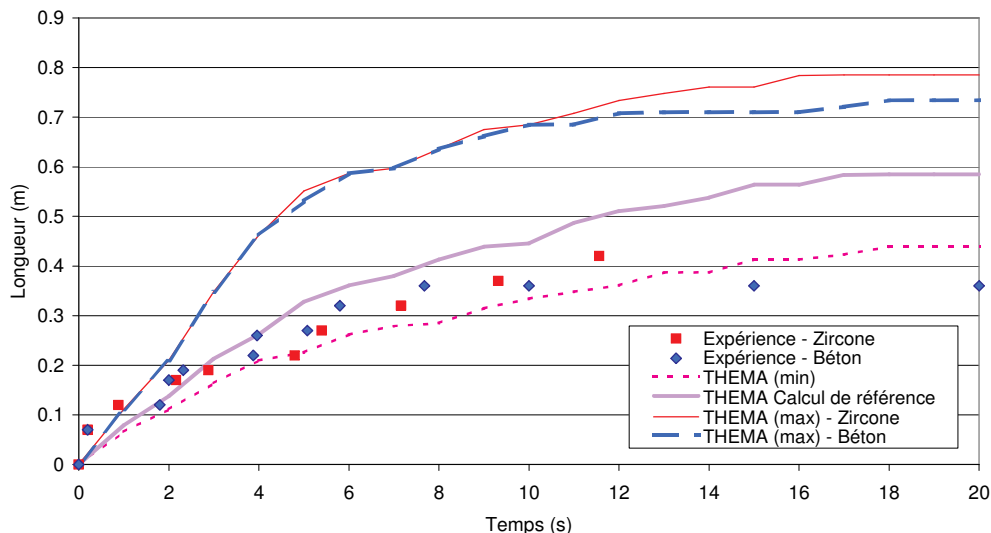


Figure 7-10 : Calculs THEMA de la longueur d'étalement.

Les résultats de ces calculs sont tracés sur la Figure 7-10. Le calcul de référence correspond à la loi de fraction solide de référence et à une température d'entrée de 2450 K. THEMA (min) correspond au cas pour lequel la température d'entrée a été réduite de 75 K et les fractions solides augmentées de 15% ; THEMA (max) correspond au cas pour lequel la température

d'entrée a été augmentée de 75 K et les fractions solides réduites de 15%. Pour le cas de référence et le minimum, les longueurs d'étalement sur les deux substrats sont indiscernables. Par contre, dans le cas du maximum, on observe une différence dans les longueurs d'étalement, comme lors de l'essai.

7.2.3 CORFLOW

Le code CORFLOW est un modèle tridimensionnel qui a été décrit au §2.4.2.4. Il a été appliqué uniquement à l'écoulement sur le substrat céramique en considérant une température initiale de 2438 K, une viscosité cinématique initiale de $5 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{s}$ et une température d'immobilisation de 1750 K – correspondant à une fraction solide de $90\%_{\text{vol}}$, comme le recommandent Ramacciotti et al. (2001) pour les suspensions polydisperses, à partir de considérations géométriques sur l'empilement et sur la répartition de taille des particules.

Le calcul CORFLOW (Figure 7-11) suit la solution semi-analytique pendant 8 s, puis la progression du corium ralentit. On a trouvé un bon accord entre le calcul CORFLOW et la longueur finale d'étalement (15% de surestimation) ainsi que pour l'évolution temporelle du front de coulée, en utilisant la loi de viscosité issue de la méthodologie du chapitre 4, légèrement modifiée afin d'avoir une asymptote verticale à 1750 K.

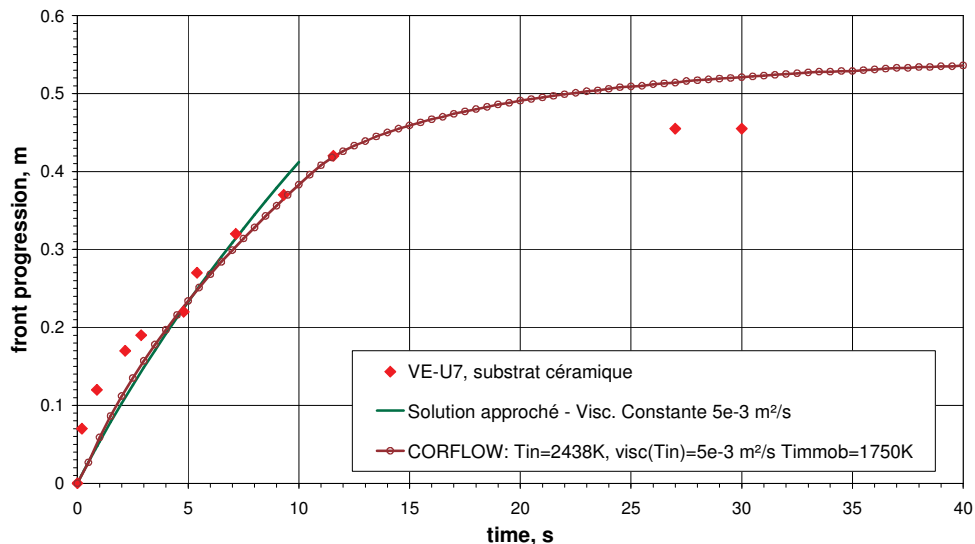


Figure 7-11 : Calcul par CORFLOW de l'étalement sur le substrat céramique.

7.2.4 CROCO

Le code CROCO V2 (décrit au § 2.4.2.4) permet une modélisation en géométrie bidimensionnelle (axes horizontaux et verticaux) d'un étalement axisymétrique. Le calcul de l'étalement sur chaque canal de l'essai VE-U7 (Cranga, 2004) a été réalisé sur un maillage de 9720 mailles (pas vertical de 0,8 mm, pas horizontal de 5 mm). Le pas de temps est défini de telle sorte que le paramètre de Courant,

$$CFL_x \approx \frac{q/h_0 \times \Delta t}{\Delta x}$$

reste inférieur à 2/3.

La présence de gaz issu de la décomposition du béton est prise en compte à travers une viscosité équivalente :

$$\eta^* = 0,6 \left(1 - \frac{\phi_{\text{solide}}}{0,7} \right) \rho \phi_{\text{gaz}} d_{\text{bulle}} u_{\text{gl}}$$

De même, une conductivité thermique équivalente prend en compte la turbulence induite par le bullage :

$$\lambda^* = \frac{C_{p,l}}{50} \cdot \eta^*$$

Une résistance thermique de contact de 3.mK.m²/W a été prise en compte dans cette modélisation.

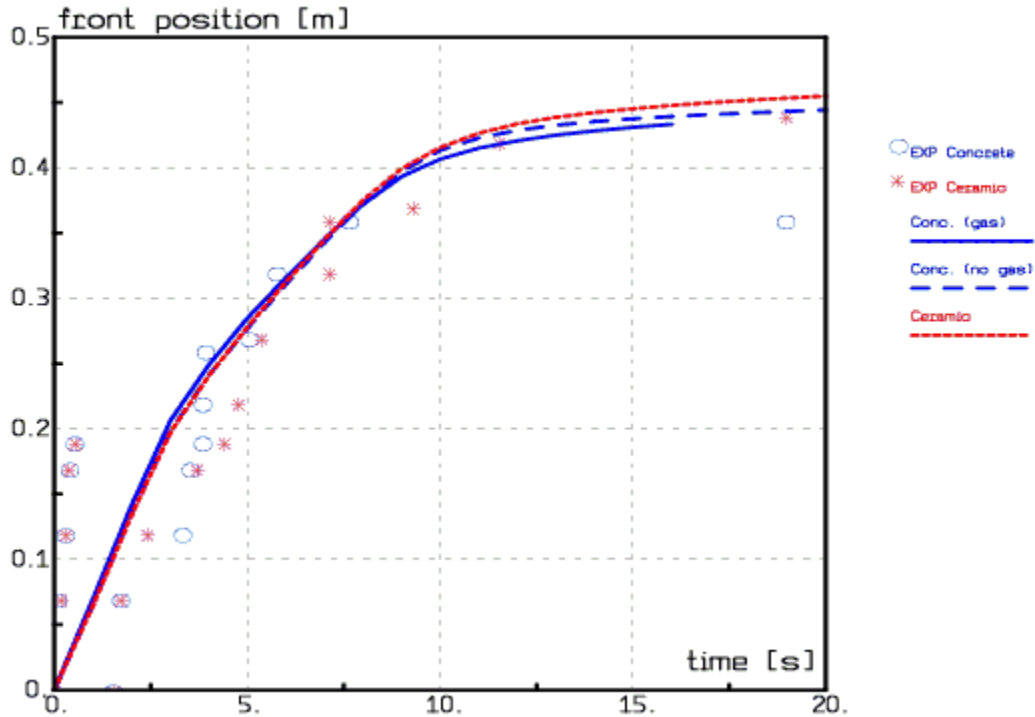


Figure 7-12 : Calcul avec CROCO de la progression des fronts de coulée.

Le calcul de la progression des fronts de coulée sur les deux substrats (Figure 7-12) est en assez bon accord avec les résultats expérimentaux. Pour l'étalement sur le substrat en béton, on a tracé le calcul avec et sans prise en compte de l'effet du gaz. Cet effet est assez faible pour cet étalement (1 cm d'écart sur les longueurs finales).

Le calcul donne un taux de vide maximal de 8%, ce qui est notablement inférieur aux 30% de porosité observée expérimentalement à froid sur les deux coulées. Ceci confirme l'importance de la génération intrinsèque de gaz pour expliquer la porosité observée et expliquerait le fait que l'effet du gaz sur la progression de la coulée soit sous-estimé.

La relation entre la viscosité du corium et la température est le paramètre principal contrôlant la progression de la coulée. Du fait des incertitudes existant sur cette loi des calculs ont été effectuées avec deux autres modèles (Figure 7-13), celui de Mooney (1951) – avec une fraction maximale d'empilement de 70% - et de Thomas (1961). Il apparaît que le modèle de Ramacciotti avec C=6 (courbe continue bleue) permet d'avoir le meilleur accord entre le calcul et l'expérience.

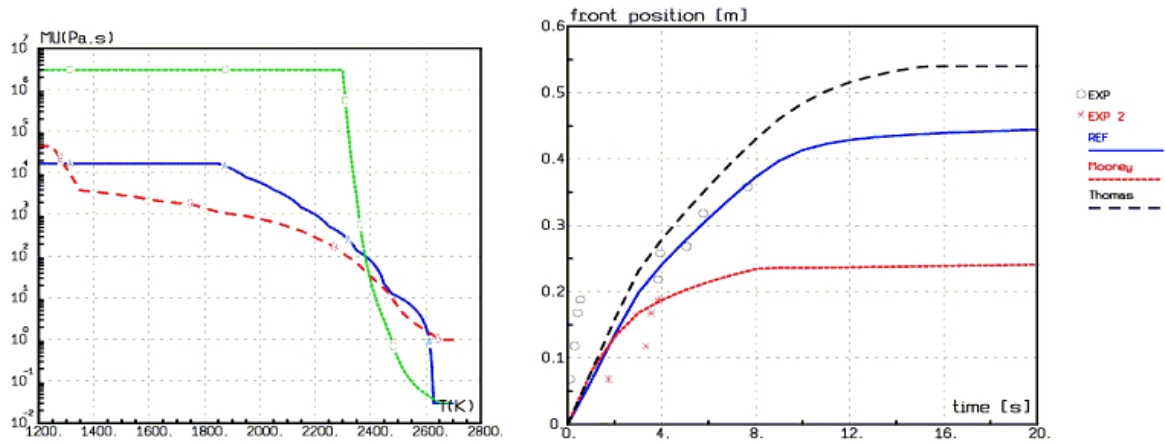


Figure 7-13 : Effet des lois de viscosités (à gauche) sur le calcul par CROCO de la progression de la coulée (à droite)

La température de surface (mesurée par pyrométrie à l'abscisse $x=14$ cm) est estimée de façon satisfaisante pour la coulée sur la céramique (Figure 7-14). Pour la coulée sur le béton, le calcul sans prise en compte de l'effet du bullage donne une bonne estimation de la température de surface, tandis que le calcul prenant en compte l'augmentation de la diffusion due au bullage donne une surestimation d'environ 100 K, sauf durant les premières secondes. Vraisemblablement, le fait que le bullage ait été canalisé vers deux sites éruptifs, fait que l'effet du bullage à la surface est faible en dehors de ces sites.

La Figure 7-15 présente une carte des températures calculées à $t=10$ s, soit à proximité de l'arrêt de la progression de la coulée. On note la présence aux surfaces inférieures et supérieures d'une peau à une température de l'ordre de 2000 K, correspondant à une fraction solide de l'ordre de 70% et une viscosité de 5 kPa.s, selon le modèle de Ramacciotti et al. (2001).

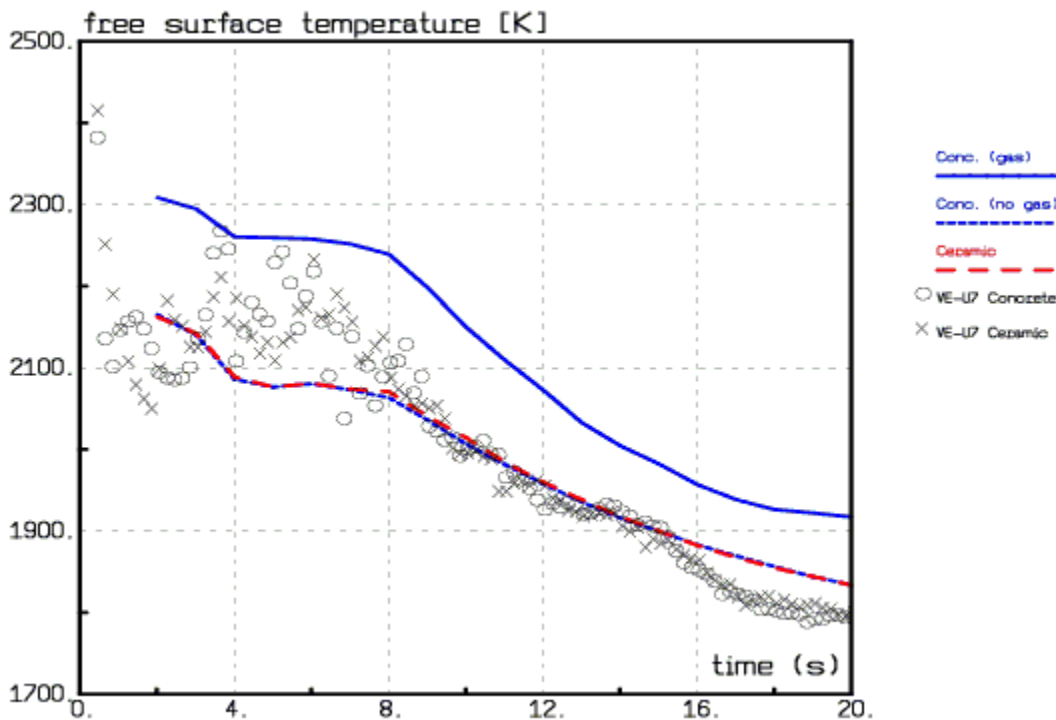


Figure 7-14 : Evolution de la température de surface de la coulée à 14 cm de l'entrée

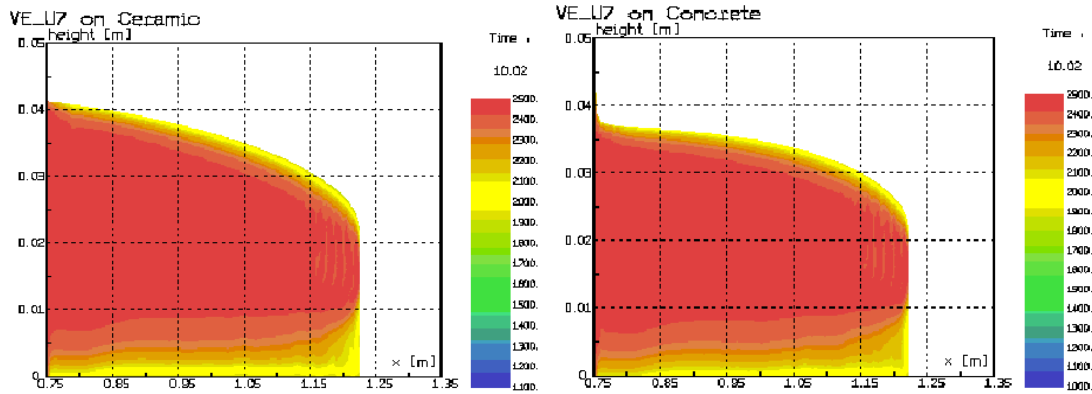


Figure 7-15 : Cartes de températures calculées par CROCO à t=10s pour les coulées sur la céramique (à gauche) et le béton, avec effet du gaz (à droite)

Les calculs de la température dans le substrat (Figure 7-16) sont en bon accord avec l'expérience pour une résistance thermique de contact valant 3 mK.m²/W. Il convient de noter que l'influence de la résistance thermique de contact sur la progression de la coulée et sur la température de la surface libre est négligeable.

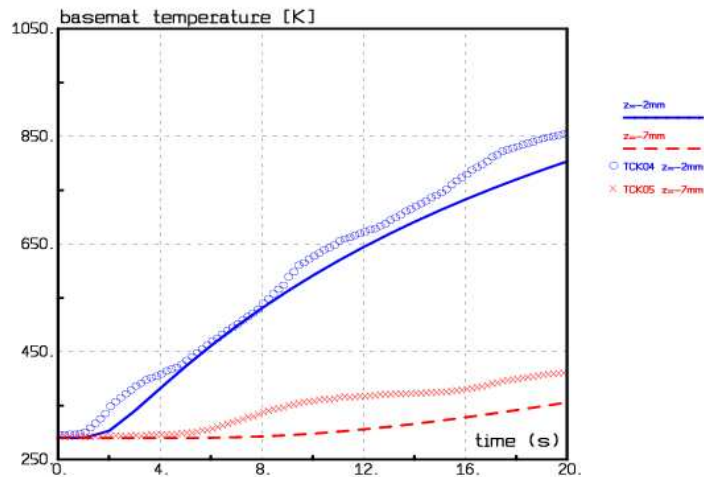


Figure 7-16 : Comparaison calcul CROCO – expérience pour les températures dans le substrat béton à x=12 cm.

7.2.5 Analyse comparative

La Figure 7-17 présente les longueurs d'étalements mesurées et calculées par ces 3 codes et le modèle semi-analytique sur le substrat en céramique. Pour le calcul semi-analytique, on a tracé à la fois la calcul pour la viscosité donnant le meilleur résultat ($5 \cdot 10^{-3}$ m²/s) et pour la viscosité correspondant à 2450 K avec la loi de viscosité recommandée. Les calculs à l'aide de THEMA, de CROCO et de LAVA surestiment légèrement les 8 premières secondes de l'essai, alors que le calcul semi-analytique les reproduit bien. Les trois codes calculent une longueur finale d'étalement avec un écart inférieur à 10%. Il faut noter que les variations d'un code à l'autre sont plus faibles que celles dues aux incertitudes sur les données d'entrée (cf. Figure 7-10 pour laquelle on a une dispersion de la longueur d'étalement entre 45 et 80 cm).

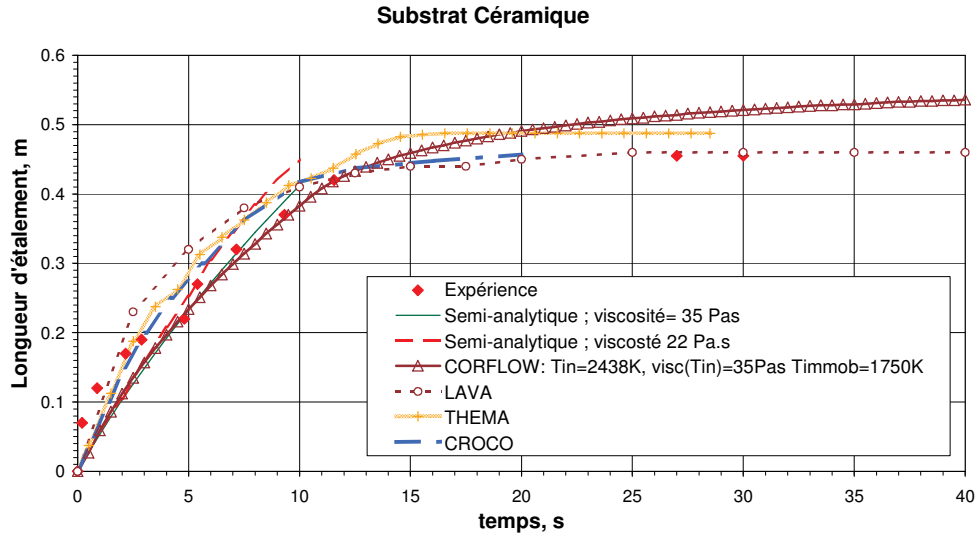


Figure 7-17 : Comparaison des calculs de longueur d'étalement effectués sur le substrat en céramique

Quant aux calculs de la longueur d'étalement sur béton (Figure 7-18), le calcul THEMA présente un meilleur accord avec l'expérience que pour le substrat en céramique. Le calcul LAVA donne, lui aussi, des résultats satisfaisants. Le calcul avec CROCO donne une légère surestimation (10 cm) de la longueur d'étalement. On notera que le ralentissement de la progression de la coulée est beaucoup moins brusque dans les divers calculs que dans l'expérience. En effet, les codes ne modélisent que le comportement moyen de la coulée, sans prendre en compte les à-coups dans la progression dont l'influence sur la sûreté est négligeable.

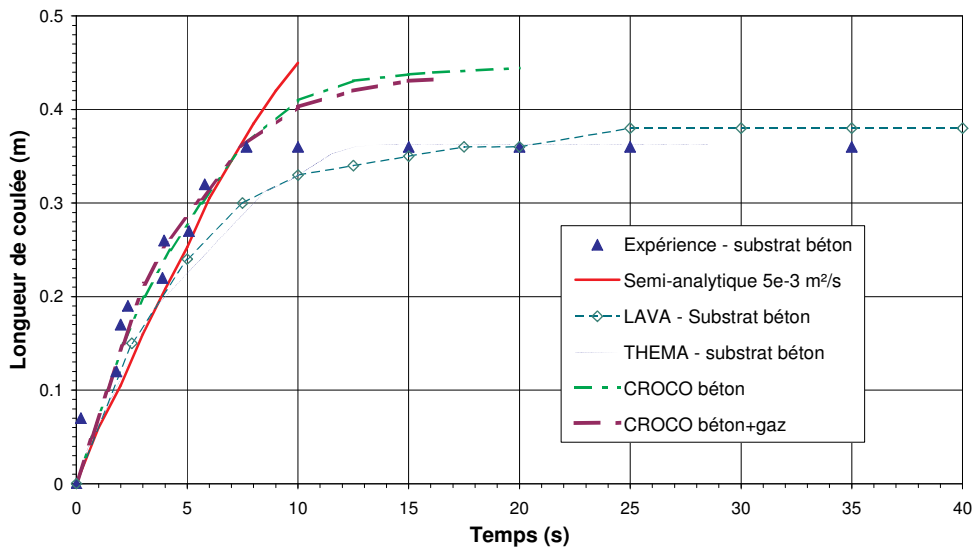


Figure 7-18 : Comparaison des calculs de longueur d'étalement effectués sur le substrat en béton

La Figure 7-19 présente une comparaison des températures calculées dans le substrat en béton avec les valeurs mesurées. Plusieurs sources d'erreur doivent être prises en compte : l'incertitude sur le positionnement des thermocouples, l'évolution temporelle de la résistance thermique de contact (§6.3.4) ainsi que la non-uniformité de l'ablation du béton et la non-homogénéité de ce matériau (Figure 3-18). Néanmoins, ces codes donnent de bons ordres de grandeur de l'échauffement du béton, condition initiale pour l'interaction entre le corium et le béton.

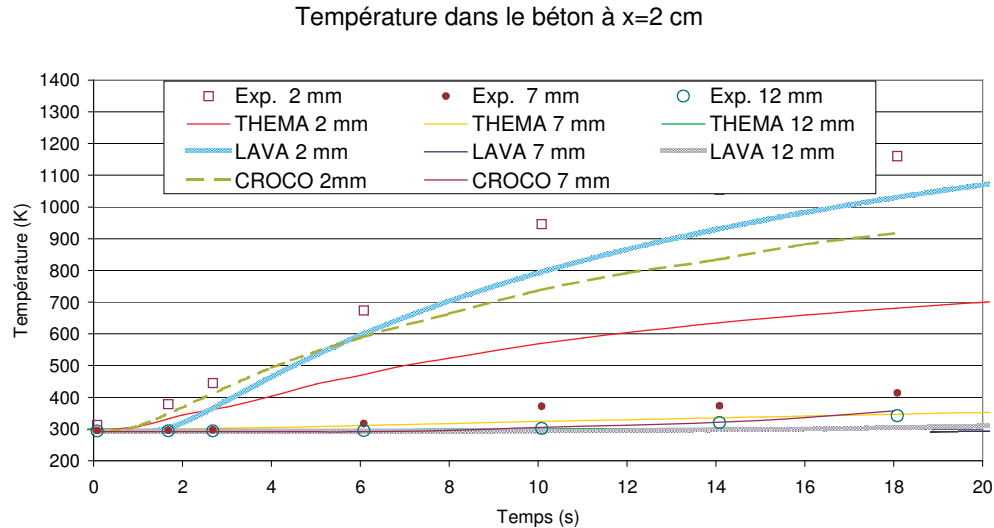


Figure 7-19 : Comparaison des calculs de température dans le béton

En conclusion, cet essai a permis de montrer que les 4 codes d'étalement LAVA, THEMA, CROCO et CORFLOW permettent de calculer de manière satisfaisante l'étalement de corium prototypique, même dans la configuration, a priori difficile, correspondant à la fin de la coulée (viscosité initiale du corium très élevée). Cet exercice de comparaison, ainsi que ceux menés sur d'autres essais d'étalement (décrits au § 2.5, 2.6, 3.2 et 3.3) ont permis la validation des codes de calcul et des modèles semi-analytiques qui peuvent donc être utilisés pour le calcul des applications, à plus grande échelle, au cas réacteur.

7.3 APPLICATIONS REACTEUR

Wittmaack (1997) a simulé l'étalement dans le récupérateur de l'EPR à l'aide du code CORFLOW. Il considère 370 t (59 m^3) de corium constitué de 250 t d'un mélange corium oxyde – béton sacrificiel et de 120 t de métal dans un récupérateur de 178 m^2 (10 m de long) modélisé par $27 \times 13 \times 14$ nœuds. Le corium est relâché en 8 s à travers une porte de $2,4 \text{ m}^2$, soit un débit moyen de $7,4 \text{ m}^3/\text{s}$. L'analyse de l'interaction corium-béton dans le puits de cuve (Nie, 2005) indique que la température initiale du bain qui se déversera dans la section d'étalement sera proche de la température de liquidus, ce qui implique une faible fraction solide et donc une faible viscosité, ce qui favorisera l'étalement.

Alors que la température de liquidus de l'oxyde est de 2573 K, les calculs CORFLOW indiquent que pour une température initiale supérieure à 2100 K, l'étalement se propage rapidement, atteint le mur extérieur du récupérateur en moins de 7 s et recouvre toute la surface en moins de 12 s. Après quelques minutes, la surface libre devient quasi plate. Des vitesses radiales atteignant 4,7 m/s ont été calculées alors que dans les deux autres directions la vitesse est restée en dessous de 1,3 et 0,5 m/s.

Des calculs ont aussi été réalisés par Eddi & Bandini (2002) avec le code THEMA et montrent aussi un remplissage complet de la section d'étalement en une dizaine de secondes. La Figure 7-20 montre le bon accord entre les calculs avec CORFLOW de Wittmaack (1997) et ceux avec THEMA d'Eddi & Bandini (2002) réalisés pour diverses conditions initiales.

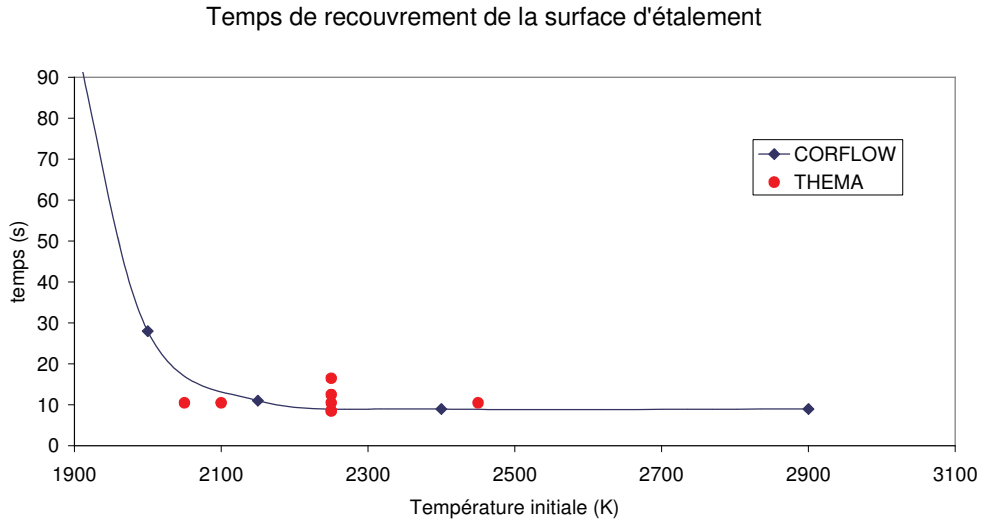


Figure 7-20 : Temps nécessaire pour recouvrir la section d'étalement estimé dans des cas représentatifs du fonctionnement d'EPR par Witmaack (1997) et Eddi & Bandini (2002).

Nous avons aussi appliqué la méthodologie de l'Ecole Polytechnique Royale de Stockholm (§2.4.1, 7.1) pour cette même composition de corium. Pour une masse coulée de 370 t, on trouve, pour une géométrie légèrement différente de celle prise en compte par le calcul de Wittmaack (1997) un étalement de 7,5 m. L'effet de la température d'entrée est faible, même pour une température correspondant à une augmentation d'un facteur 10 de la viscosité par rapport au cas de référence (Figure 7-21). La hauteur finale de corium est estimée à 70 cm, ce qui est plus élevé que le calcul CORFLOW, mais reste dans le même ordre de grandeur. Konovalikhin (2001) a confirmé à l'aide du modèle 1D, pour des conditions voisines, ces conclusions. Par contre, en prenant en compte les effets bidimensionnels, l'étalement est plus efficace, et Konovalikhin (2001) a trouvé une hauteur finale de corium de l'ordre de 30-40 cm, voisine des résultats de CORFLOW (Wittmaack, 2000) et THEMA (Eddi & Bandini, 2002).

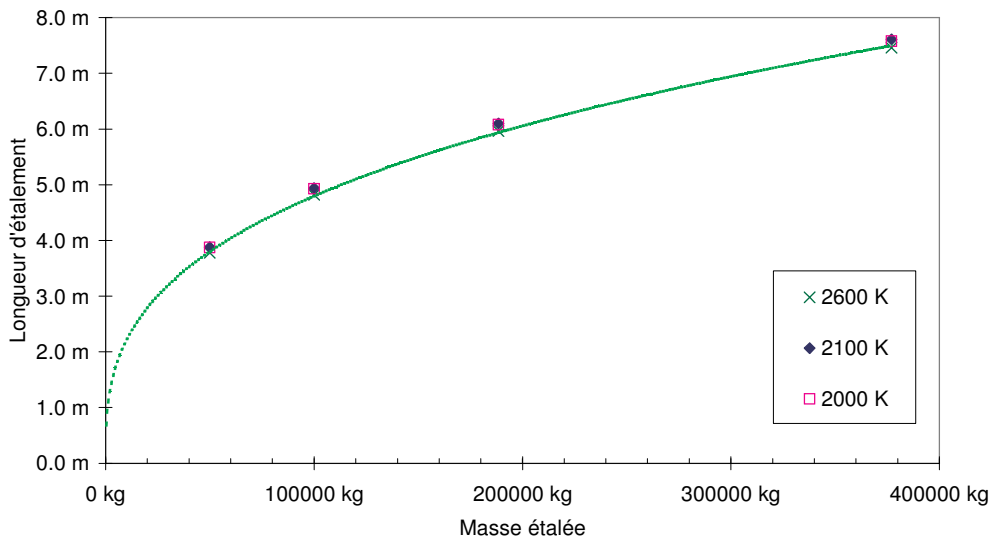


Figure 7-21 : Estimation de la longueur d'étalement en fonction de la masse et de la température initiale de la coulée, pour un débit de 7,4 m³/s.

Tous ces modèles de calcul concourent à valider le bon étalement du corium dans les conditions nominales de fonctionnement du récupérateur. De plus, si l'épaisseur de corium

était très élevée, on aurait dans un deuxième temps, un ré-épanchement du corium sous l'effet de la puissance résiduelle (Konovalikhin et al. , 2000).

Les calculs d'ordres de grandeur de la Figure 7-21 montrent que l'effet de la température sur l'étalement est assez faible, même si la température d'entrée est inférieure de plusieurs centaines de degré au liquidus. Ceci va dans le sens d'un bon étalement du corium, même si le corium arrivait dans la chambre d'étalement à une température très inférieure au liquidus, alors que l'on s'attend à avoir une température d'entrée du corium proche du liquidus du mélange (Seiler & Froment, 2000 ; Nie, 2005). Wittmaack (2000) a obtenu des résultats similaires avec un calcul CORFLOW.

En fait la principale incertitude réside dans la taille de la brèche et donc dans le débit d'entrée du corium. Si on avait un débit de corium extrêmement faible, l'étalement serait moins efficace. Eddi & Bandini (2002) ont montré qu'une diminution d'un rapport 8 sur le débit d'entrée va multiplier par deux le temps nécessaire pour recouvrir toute la surface d'étalement. Wittmaack (2000) a obtenu des résultats similaires avec le code CORFLOW. Dans la modélisation en ordres de grandeur, le débit intervient directement dans la longueur d'étalement à la puissance 7/16 au numérateur et indirectement au dénominateur via le flux convectif. Il apparaît que pour doubler la hauteur de corium à l'état final, il faudrait diviser d'un facteur 170 le débit qui serait ramené à 45 L/s (300 kg/s), ce qui correspondrait à un orifice de l'ordre de 0,03 m² (Fischer, 2003). Les études relatives au percement de la porte (Azarian et al. , 2004) considèrent comme borne inférieure du débit par la porte la valeur de 1 t/s (150 L/s), ce qui n'entraînerait qu'un épaississement de la coulée de 40 % par rapport au cas de référence. Comme les codes de calcul donnent tous une marge importante sur l'étalement, on peut considérer que, dans toutes les configurations réalistes, un étalement satisfaisant pourra être atteint, sous réserve d'une validation du débit de corium traversant la porte.

REFERENCES DU CHAPITRE 7 :

- Ancey C., Jorrot H., 2001, Yield stress for particle suspension within clay dispersion, *J. Rheology*, 45, 297-319.
- Azarian, G. Kursawe, H.M., Nie, M., Fischer, M., Eying, J., Stoudt, R.H., 2004, EPR Accident threats and Mitigation, *Proc. Int. Congress Advances nucl. Power Plants (ICAPP'04)*, Pittsburgh, PA.
- Cranga, M., 2004, Communication personnelle.
- Dinh, T.N., Konovalikhin, M.J., Sehgal, B.R., 2000, Core Melt Spreading on a reactor Containment Floor, *Progr. Nucl. Energ.*, 36, 4, 405-468.
- Eddi, M., Bandini, G., 2002, *Preliminary Analysis on corium spreading in core-catcher with THEMA code*, Rapport SAM-ECOSTAR-P07-17/01.
- Fischer, M., 2003, Severe Accident mitigation and core melt retention in the European Pressurized Reactor, *Proc. Int. Conf. Nucl. Eng. (ICONE 11)*, Tokyo, Japon, 20-23/4/2003, communication ICONE11-36196.
- Fieg G., Huber F., Werle H., Wittmaack R., 1996, Simulation Experiments on the spreading behavior of molten core melts, *Proc. Nat. Heat Transfer Conf.*, Houston, Tx.
- Foit, J.J., 2002, Spreading on ceramic and concrete substrate in KATS experiments, Proc. Annu. Meeting Nucl. Technol.
- Foit, J.J., 2004, Spreading under variable viscosity and time-dependent boundary conditions: estimate of viscosity from spreading experiments, *Nucl. Eng. Des.*, 227, 239-253.
- Journeau, C., Brayer, C., Piluso, P., 2005, Uncertainties on Thermodynamic and Physical Properties Data Bases for Severe Accidents and their Consequences on Safety Calculations, *OECD-CSNI Workshop on Evaluation of Uncertainties In Relation To Severe Accidents and Level 2 Probabilistic Safety Analysis*, Aix en Provence, 7-9/11/05.
- Journeau, C., Haquet, J.-F., Spindler, B., Spengler, C., Foit, J., 2006, The Vulcano VE-U7 corium spreading benchmark, *Progr. Nucl. Energ.*, 48, 215-234.
- Konovalikhin, M.J., Theertan, S.A., Sehgal, B.R., 2000, Experimental Investigation on Re-Spreading Phenomena, *Proc. 8th Int. Conf. Nucl. Eng.*, Baltimore, USA, Avril 2000.
- Konovalikhin, M. J., 2001, *Investigation on Melt Spreading and Coolability in a LWR Severe Accident*, Thèse de Doctorat, Ecole Royale Polytechnique, Stockholm, Suède.
- Macedonio, G., Longo, A., 1999, Lava flow in a channel with a bifurcation, *Phys. Chem. Earth (A)*, 24, 953-956.
- Mooney, M., 1951, The viscosity of a concentrated suspension of spherical particles. *J. Colloid. Sci.*, 6, 162-170.

- Nie, M., 2005, *Temporary Melt Retention in the Reactor Pit of the European Pressurized Water Reactor (EPR)*, Thèse de Docteur-Ingénieur, Université de Stuttgart (Institut für Kernenergetik und Energiesystem), Allemagne
- Ramacciotti, M., Journeau, C., Abbas, G., Werozub, F., Cognet, G., 1998, Propriétés Rhéologiques de mélanges en cours de solidification, *Cahiers de Rhéologie*, XVI, 303-308.
- Ramacciotti, M., Journeau, C., Sudreau, F., Cognet, G., 2001, Viscosity models for corium melts, *Nucl. Eng. Des.* 204, 377-389.
- Seiler, J.M., Froment, K. , 2000, Material effects on multiphase phenomena in late phases of severe accidents of nuclear reactors, *Multiphase Sci. Technol.* 12, 117-257.
- Spengler C., Allelein H.-J., Spindler B., Veteau J.M., Foit J. J., Alsmeyer H., Artnik J., 2004, Blind Benchmark Calculations for Melt Spreading in the ECOSTAR Project, *Proc. Int. Congress Advances nucl. Power Plants (ICAPP'04)*, Pittsburgh, PA.
- Spindler B., Veteau J.M, 1999, Status of the assessment of the spreading code THEMA against the CORINE experiments, *SARJ Mtg. (Mtg. Severe Accident Research held in Japan)* Tokyo, Japan.
- Spindler B., Veteau J.M., Brayer C., Cranga M., de Cecco L., Montanelli P., Pineau D., 2000, Assessment of THEMA code against spreading experiments, *Wiss. Ber. FZKA*, 6475, 221-234.
- Spindler, B., Veteau, J.M., 2004, *Simulation of spreading with solidification : assessment synthesis of THEMA code*, Rapport CEA-R6053.
- Thomas D. G., 1961, Laminar Flow Properties of Flocculated Suspensions, *AIChE J.*, 7, 431-437.
- Tromm, W., Foit, J. J., Magallon, D., 2000, Dry and wet spreading experiments with prototypic materials at the FARO facility and theoretical analysis, *Wiss. Ber. FZKA*, 6475,178-188.
- Veteau J.M., Spindler B., Daum G., 2003, Modelling of two-phase friction from isothermal spreading experiments with gas fed from the bottom and application to spreading accompanied by solidification, *10th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-10)*, Seoul, Corée.
- Wittmaack, R., 1997, CORFLOW: A code for the numerical simulation of free-surface flow, *Nucl. Technol.*, 119, 158-180.
- Wittmaack, R., 2000, Numerical simulation of corium spreading in the EPR with CORFLOW, *Wiss. Ber. FZKA*, 6475, 201-211.

Chapitre 8 : Conclusions

Le programme expérimental VULCANO-Étalement a donné lieu à la réalisation de douze essais en matériaux simulants et en matériaux prototypes à des températures atteignant jusqu'à 3000 K. Ces essais sont représentatifs de l'étalement soit du corium qui s'écoulerait lors du percement de la cuve du réacteur, soit d'un mélange corium-béton résultant d'une interaction corium-béton, comme ce qui est prévu après la rétention temporaire dans le puits de cuve du réacteur EPR.

Ces essais, en parallèle avec les essais complémentaires menés dans d'autres installations européennes, ont grandement contribué à la compréhension du comportement du corium lors de l'étalement en apportant les informations suivantes :

- La progression de l'étalement est généralement discontinuée avec la formation de langues de corium. L'étalement de mélanges corium-béton est caractérisé par la formation d'une peau visco-plastique en surface, alors que les mélanges ne contenant que des oxydes d'uranium et de zirconium donnent lieu à la formation de croûtes solides en surface. Ceci est dû à l'importance de l'intervalle de solidification des mélanges corium-béton (autour de 1000 K) et a pour conséquence qu'un tel mélange s'étalera bien même avec une température initiale inférieure à la température de liquidus, ce qui donne des marges importantes au concept de récupérateur EPR.
- Nous n'avons pas observé, pour les débits considérés, de stratification d'une phase métallique en proportion faible ($< 5\%$ dans les essais VE-06 et VE-U7). Dans ces cas, le fer est présent sous forme de gouttelettes en émulsion dans la phase oxyde, généralement à proximité de porosités, ce qui suggère un effet de la convection de bulles de gaz dans cette mise en émulsion.
- La structure des coulées en corium prototype présente généralement une porosité importante due à un relâchement de gaz. Ceci a même été observé sur un substrat inerte et étanche (acier, zircone dense) et est attribué à des réactions d'oxydoréduction relâchant des espèces volatiles, voisines de la cause des phénomènes d'*airlift* (Petrov et al., 1999).
- La composition chimique du corium étalé ne varie pas quelque soit la position des prélèvements, mais les coulées présentent des caractéristiques cristallographiques et morphologiques variant de façon sensible selon l'axe vertical, alors qu'elles ne varient pas selon les directions horizontales.
- Le refroidissement et la solidification du corium étalé se produisent globalement hors de l'équilibre thermodynamique (solidification de type Scheil-Gulliver, présence de phases métastables) mais peuvent néanmoins être approchés à l'aide de calculs thermodynamiques à l'équilibre.
- Une méthodologie d'analyse des échantillons de corium et de comparaison avec les codes de calculs thermodynamiques a été mise au point et permet de contribuer à la validation des bases de données thermodynamiques dédiées au corium.
- Le refroidissement de la coulée entraîne des variations importantes de la rhéologie du corium qui dépend d'une part de la fraction volumique de solides cristallisés sous cisaillement et d'autre part de l'augmentation de la proportion de silice, composé formateur de réseaux, dans le liquide résiduel. Des modèles de viscosité des bains silicatés ou non et de rhéologie des mélanges semi-solides ont été globalement validés pour le corium.
- Le refroidissement par rayonnement des coulées de corium entraîne la présence de couches limites thermiques, physico-chimiques et rhéologiques à la surface. Une des

manifestations visibles de la forte augmentation de la viscosité en se rapprochant de la surface est la formation de plis, similaire à ce qui est observé sur les laves cordées.

- La morphologie de la surface de la coulée est déterminée par le rapport Ψ des temps caractéristiques de solidification et d'advection, proposé par Griffiths & Fink (1992) peut être adapté aux coulées de corium : Pour les faibles valeurs de Ψ , on observe la formation de croûtes solides, entre 50 et 2000, on observe la présence d'une peau viscoélastique plissée, tandis que pour les valeurs élevées de Ψ , on a un gel en masse de la coulée.
- Les échanges de chaleur entre la coulée et le substrat sont caractérisés par la présence d'une forte résistance thermique de contact (de l'ordre du $\text{mK}\cdot\text{m}^2/\text{W}$), excepté lors des premiers dixièmes de seconde du contact. De ce fait, le refroidissement du corium est le plus lent près de la surface inférieure de la coulée. Le modèle de Rougnon-Glasson (1993) donne de bonnes prédictions de cette résistance de contact sur des substrats inertes.
- L'influence sur la coulée de l'ablation d'un substrat en béton et du relâchement de gaz issus de sa décomposition est faible. En effet, elle semble pilotée par le comportement du front de coulée, lequel progresse avant que ces phénomènes ne deviennent importants. Par ailleurs, la progression de l'ablation serait faible lors de la coulée de mélanges issus d'une rétention temporaire en puits de cuve, tel que dans l'essai VE-U7.
- Les critères d'arrêt de la coulée, développés à partir du nombre de Grätz pour les laves volcaniques (Pinkerton & Wilson, 1994) ne sont pas transposables aux coulées de corium. Par contre, on a mis en évidence le fait que, pour des mélanges corium-béton, l'arrêt de la progression de la coulée a lieu lorsque la surface est à la température correspondant à $70 \pm 10 \%$ de volume solide.
- Ces essais ont permis de valider sur des étalements de mélanges corium-béton le modèle simplifié d'étalement de l'Ecole Polytechnique Royale suédoise (Dinh et al., 2000), ainsi que les codes de calcul mécanistes tels que THEMA, LAVA ou CORFLOW. On en a déduit que :
 - La cinétique d'étalement et les dimensions finales de la coulée sont gouvernées principalement par la surchauffe du corium à l'entrée, estimée par rapport à une température d'immobilisation effective, à la loi de débit d'entrée et à la relation reliant la viscosité à la température;
 - L'arrêt de la coulée résulte principalement de l'augmentation de la viscosité avec la fraction volumique de solide et dans une moindre mesure à l'épaississement des croûtes (surtout supérieure). La corrélation de Ramacciotti et al. (2001) avec un exposant C compris entre 6 et 6,5 donne les meilleurs résultats pour des coulées en corium prototypique.
- Dans le cas de mélanges $(\text{U,Zr})\text{O}_2$, représentatifs de la phase oxyde du corium qui sortirait de la cuve et n'aurait pas interagi avec du béton, la phénoménologie est différente du cas des mélanges corium-béton (faible intervalle de solidification, formation de croûtes solides) et il n'a pas été possible de valider précisément les modèles et les codes d'étalement car les incertitudes sur la mesure de la température du corium et sur la connaissance des diagrammes de phases sont plus élevées que la surchauffe. Des pistes existent pour l'amélioration de la précision des mesures des hautes températures entre 2000 et 3000 K, suite aux travaux récents effectués en vue de définir des points fixes de températures à l'aides d'eutectiques à haute température (Yamada et al. , 1999 ; Hernandez et al. , 2003).
- La démarche de validation de ces codes de calcul est clairement la suivante : les codes sont validés sur des configurations ayant une solution analytique et des expériences

analytiques en matériaux simulants, puis le logiciel intervient comme aide à l'interprétation des essais et les essais dans l'évaluation des modèles. Il y a donc un aller-retour entre logiciel et expériences globales telles que VULCANO. D'un point de vue scientifique, il serait certainement souhaitable de pouvoir compléter la base de données expérimentales par des essais pour lesquels les incertitudes sur les propriétés physiques et les conditions initiales seraient moindres. Néanmoins, l'état actuel de validation est suffisant pour les applications industrielles, vu les autres incertitudes sur les scénarios d'accident grave.

- Les logiciels, ainsi validés ont permis de calculer des scénarios d'étalement du corium dans le récupérateur d'EPR. Il apparaît que des marges importantes existent dès lors que l'on peut garantir par conception un débit d'écoulement suffisant lors du percement de la porte.
- Ces logiciels pourraient aussi être adaptés à l'étude de la progression de laves sur les flancs d'un volcan.

Au terme de ce travail de recherche et développement, la problématique industrielle de l'étalement de corium à sec est globalement résolue. De nombreuses idées préconçues, telles que l'arrêt de la progression des coulées par formation de croûte au front, la contribution importante de l'ablation d'un substrat en béton sur la progression de la coulée, la solidification à l'équilibre thermodynamique, le contact thermique (quasi)parfait entre la coulée et le substrat, l'absence de gaz excepté au-dessus de substrats en béton.

D'autres problématiques liées aux accidents graves des réacteurs à eau sous pression restent ouvertes telles que, entre autres:

- l'interaction à plus long terme entre le corium et le béton dans un puits de cuve, pour lequel la répartition des vitesses d'ablation entre les directions horizontales et verticales est encore mal comprise (Farmer et al. , 2004, Malaval et al. , 2005) ;
- l'interaction corium-eau et le risque d'explosion vapeur (Huhtiniemi et al. , 1999, Berthoud, 2000) ;
- le relâchement des aérosols contenant des radioéléments (Clément et al. , 2003, Auvinen et al. , 2005) et leur transport dans le circuit primaire, dans l'enceinte et vers l'environnement (Piluso et al. , 2005, Fischer & Kanzleiter, 1999, Oriolo et al., 1995, Pöllänen et al. , 1997) ;
- la validation des concepts de rétention en cuve ;
- l'amélioration des bases de données thermodynamiques et de propriétés physiques afin de disposer des données nécessaires aux calculs des configurations d'accidents graves. En particulier, la thermodynamique du quaternaire (U,Zr,Si,O) mériterait d'être mieux décrite et des données sur la viscosité de la zircone, tant seule que dans des bains silicatés manquent pour conclure sur la validité des modèles de viscosité proposés.

Finalement, la problématique des accidents graves n'est pas l'apanage des générations actuelles de réacteurs nucléaires. Même si les concepts proposés dans le cadre de l'initiative pour les réacteurs de 4^o génération (Lake, 2002.) visent, entre autres, à améliorer notablement la sûreté, il n'est néanmoins pas possible d'éliminer tout risque hypothétique de rejet à l'extérieur de matières radioactives. Par exemple, les réacteurs à caloporteur gaz disposent d'un cœur qui a une probabilité significativement moindre de fondre que les cœurs des réacteurs à eau actuels, mais pourraient entraîner des relâchements de produits radioactifs dans des situations hypothétiques d'entrée d'air ou d'eau (Kim & No, 2006, Tauveron et al. , 2005).

En conclusion, l'amélioration de la sûreté est une action continue dont le but est de réduire constamment les risques résiduels d'accidents majeurs. Du fait de la nature du risque et des

enseignements tirés des accidents de Tchernobyl et de Three Mile Island, les accidents graves font l'objet de programmes de recherche et développement significatifs qui portent leurs premiers fruits avec la construction de réacteurs comportant des récupérateurs de corium tels que l'EPR à Olkiluoto (Finlande) ou le VVER 1000 à Tian Wan (Chine). Les essais d'étalement sur VULCANO et leur analyse dans un cadre européen ont été un des éléments ayant contribué à ces avancées.

REFERENCES DE LA CONCLUSION

- Auvinen, A., Davidovich, N., Ducros, G., Dutheillet, Y., Kissane, M.P., Matus, L., Rizoïu, A., 2005, On-going investigation of Ruthenium Release and Transport, *1st European Review Mtg on Severe Accident research*, Aix en Provence, France.
- Berthoud, G., 2000, Vapor explosions, *Ann. Rev. Fluid Mech.*, 32,573-611.
- Clément, B., Hanniet-Girault, N., Repetto, D., Jacquemain, G., Jones, A. V., Kissane M. P. , van der Hardt, P., 2003, LWR severe accident simulation: synthesis of the results and interpretation of the first Phebus FP experiment FPT0, *Nucl. Eng. Des.*, 226, 5-82.
- Dinh, T.N., Konovalikhin, M.J., Sehgal, B.R., 2000, Core Melt Spreading on a reactor Containment Floor, *Progr. Nucl. Energ.*, 36, 4, 405-468.
- Farmer, M.T., Lomperski, S., Basu, S., 2004, Results of Reactor Materials Experiments Investigating 2-D Core-Concrete Interaction and Debris Coolability, *ICAPP04 Int. Cong. Advances nucl. Power Plants* (Pittsburgh, Pa., 13-17 Juin 2004).
- Fischer, K., Kanzleiter, T., 1999, Experiments and computational models for aerosol behaviour in the containment, *Nucl. Eng. Design*, 191, 53-57.
- Griffiths, R.W., Fink, J.H., 1992, The morphology of lava flows in planetary environments: predictions from analog experiments, *J. Geophys. Res.* B97, 19739-19748.
- Hernandez, D., Olalde, G., Bonnier, G., Le Frious, Sadlis, F. M., 2003, Evaluation of the application of a solar furnace to study the suitability of metal oxides to be used as secondary reference points in the range 2000-3000°C, *Measurement*, 34, 101-109.
- Huhtiniemi, I., Magallon, D., Hohmann, H., 1999, Results of recent KROTOS FCI tests : alumina versus corium melts, *Nucl. Eng. Design*, 189,379-389.
- Kim, E.S., No, H.C., 2006, Experimental study during the oxidation of nuclear graphite and development of an oxidation model, *J. Nucl. Mater.*, 349, 182-194.
- Lake, J.A., 2002, The fourth generation of nuclear power, *Progr. Nucl. Energy*, 40, 301-307.
- Malaval, S., Journeau, C., Smith, A., Bonnet, J.P., 2005, Thermal Study of a typical concrete from a nuclear power plant, *13th Int Conf Nucl. Eng.*, Beijing, Chine, 16-20 Mai 2005.
- Oriolo, F., Ambrosini, W., Fruttoso, G., Parozzi, F., Fontana, R., 1995, Thermal-hydraulic modeling and severe accident radionuclide transport, *Nucl. Technol.*, 112, 238-249.

- Petrov, J., Süßmilch, J., r ž k, ., , ir-lift effect in the induction melting of corium alloys, *Nucleon*, 2, 39.
- P. Piluso, E. Boccaccio, J.-M. Bonnet, C. Journeau, P. Fouquart, D. Magallon, I. Ivanov, I. Mladenov, S. Kalchev, P. Grudev, H. Alsmeyer, B. Fluhrer, M. Leskovar, Severe Accident Experiments on PLINIUS Platform Results of First Experiments on COLIMA Facility Related to VVER-440 - Presentation of Planned VULCANO and KROTOS Tests, International Conference Nuclear Energy for New Europe 2005, Bled, Slovenia, September 5-8, 2005
- Pinkerton, H., Wilson, L., 1994, Factors controlling the length of channel fed lava flows, *Bull. Volcanol.*, 56, 108-120.
- Pöllänen, R., Valkama, I., Toivonen, H., 1997, Transport of radioactive particles from Chernobyl accident, *Atmosph. Environ.*, 31, 3575-3590.
- Ramacciotti, M., Journeau, C., Sudreau, F., Cognet, G., 2001, Viscosity models for corium melts, *Nucl. Eng. Des.* 204, 377-389.
- Rougnon-Glasson, N., 1993, *Gel d'un fluide chaud s'écoulant sur une paroi froide. Modélisation de la résistance d'interface*, Thèse de Doctorat de l'Institut National Polytechnique de Grenoble.
- Tauveron, N., Saez, M., Marchand, M., Chataing, T., Geffraye, G., Bassi, C., 2005, Transient thermal-hydraulic simulations of direct-cycle gas cooled reactors, *Nucl. Eng. Des.*, 235, 2527-2545.
- Yamada, Y., Sakate, H., Sakuma, F., Ono, A., 1999, A possibility of practical high-temperature fixed-points above the copper point, *Proceedings of Tempmeko-99*, 535-540.

<p>TITRE en français : L'ÉTALEMENT DU CORIUM : HYDRODYNAMIQUE, RHEOLOGIE ET SOLIDIFICATION D'UN BAIN D'OXYDES A HAUTE TEMPERATURE</p>
<p>RESUME en français : <p>Dans le cas hypothétique d'un accident grave de réacteur nucléaire, le cœur pourrait fondre et former un mélange à haute température (2000-3000 K) appelé <i>corium</i>. Dans le cas du percement de la cuve, ce corium s'étalerait dans le puits de cuve, dans les pièces adjacentes – comme cela s'est produit à Tchernobyl– ou dans un récupérateur dédié à cet effet – comme pour le nouveau réacteur européen EPR.</p> <p>Cette thèse est consacrée à l'étude expérimentale de l'étalement du corium, en particulier à l'aide des expériences en matériaux prototypiques (contenant de l'oxyde d'uranium appauvri) réalisées sur l'installation VULCANO au CEA Cadarache.</p> <p>La première étape de l'analyse de ces essais consiste en l'interprétation des analyses matériaux à l'aide de modèles thermodynamiques de la solidification du corium. Connaissant pour chaque température, la répartition et les composition des phases présentes dans la coulée, on peut alors en estimer les propriétés physiques. L'arrêt de l'écoulement est contrôlé par les propriétés rhéologiques du corium, en particulier dans l'intervalle de solidification, ce qui nécessite de les étudier en détail. Les aspects hydrodynamiques, rhéologiques et thermodynamiques de l'écoulement de corium en cours de solidification ont pris en compte dans les modèles et codes de calcul qui sont validés à l'aide de ces essais et permettent de conforter le concept de récupérateur par étalement de l'EPR.</p> </p>
<p>MOTS-CLES : Sûreté nucléaire, accidents graves, hydrodynamique, rhéologie, solidification, oxydes, hautes températures</p>

<p>TITRE en anglais CORIUM SPREADING: HYDRODYNAMICS, RHEOLOGY AND SOLIDIFICATION OF A HIGH-TEMPERATURE OXIDE MELT</p>
<p>RESUME en anglais <p>In the hypothesis of a nuclear reactor severe accident, the core could melt and form a high-temperature (2000-3000 K) mixture called <i>corium</i>. In the hypothesis of vessel rupture, this corium would spread in the reactor pit and adjacent rooms – as occurred in Chernobyl – or in a dedicated core-catcher – as in the new European Pressurized reactor, EPR.</p> <p>This thesis is dedicated to the experimental study of corium spreading, especially with the prototypic corium material experiments performed in the VULCANO facility at CEA Cadarache.</p> <p>The first step in analyzing these tests consists in interpreting the material analyses, with the help of thermodynamic modelling of corium solidification. Knowing for each temperature the phase repartition and composition, physical properties can be estimated.</p> <p>Spreading termination is controlled by corium rheological properties in the solidification range, which leads to studying them in detail. The hydrodynamical, rheological and solidification aspects of corium spreading are taken into account in models and computer codes which have been validated against these tests and enable the assessment of the EPR spreading core-catcher concept.</p> </p>
<p>MOTS-CLES : Nuclear safety, severe accidents, hydrodynamics, rheology, solidification, oxides, high temperatures.</p>

<p>DISCIPLINE - SPECIALITE DOCTORALE : Mécanique- énergétique</p>
<p>INTITULE ET ADRESSE DE L'U.F.R. OU DU LABORATOIRE : Laboratoire d'essais pour la Maîtrise des Accidents graves, CEA Cadarache, Bat 708, 13108 St Paul lez Durance</p>