
Les accidents graves de réacteurs nucléaires à eau légère

1.1.1 Fonctionnement et sûreté des réacteurs nucléaires

Le développement de l'industrie électronucléaire s'est effectuée en plusieurs étapes : on parle de génération de réacteurs. Le parc français est constitué de 58 réacteurs à eau pressurisée de seconde génération et produisant 76.3% de l'électricité française (chiffres RTE¹ 2015). Parmi ces réacteurs, on distingue trois paliers correspondant à la puissance électrique fournie [1] :

- 34 réacteurs produisant une puissance électrique de 900 MWe ;
- 20 réacteurs de 1300 MWe ;
- 4 réacteurs d'une puissance de 1450 MWe.

Un réacteur EPR (European Pressurized Reactor) de 3^{ème} génération et produisant une puissance de 1650 MWe est actuellement en construction sur le site nucléaire de Flamanville.

L'énergie nucléaire provient des réactions de fission entre un neutron thermique et un noyau d'uranium 235 qui conduisent à la production de noyaux fils et de neutrons pouvant à leur tour engendrer de nouvelles fissions : on parle de réactions en chaîne.

Le combustible nucléaire, sous forme de pastilles de dioxyde d'uranium UO₂ enrichi, est placé au sein d'une gaine en alliage de zirconium : l'ensemble pastilles-gaine constitue le crayon combustible. Ces crayons combustibles sont rassemblés sous forme d'assemblages combustibles (un assemblage est constitué de 264 crayons combustibles) au sein du cœur du réacteur (voir Figure 1.1).

¹Réseau de Transport d'Électricité

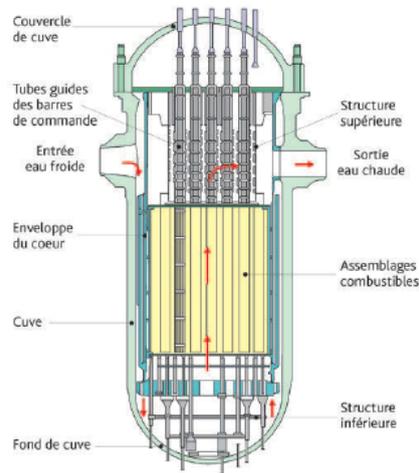


FIGURE 1.1 : Cuve d'un réacteur à eau pressurisée (extrait de [1])

Le bore dissout dans l'eau du circuit primaire joue le rôle d'absorbant neutronique, tout comme les barres de commande en B_4C ou en alliage Ag-In-Cd, afin de maîtriser les réactions de fission et ainsi la réactivité du réacteur.

L'énergie libérée par les réactions de fission est transportée par le fluide caloporteur, l'eau à la pression de 155 bars et à la température de $350^\circ C$, jusqu'au générateur de vapeur.

Au niveau du générateur de vapeur, l'eau du circuit secondaire est chauffée sous forme de vapeur pour actionner un groupe turbo-alternateur et produire de l'électricité. La Figure 1.2 présente de manière schématique le fonctionnement général d'un réacteur à eau pressurisée².

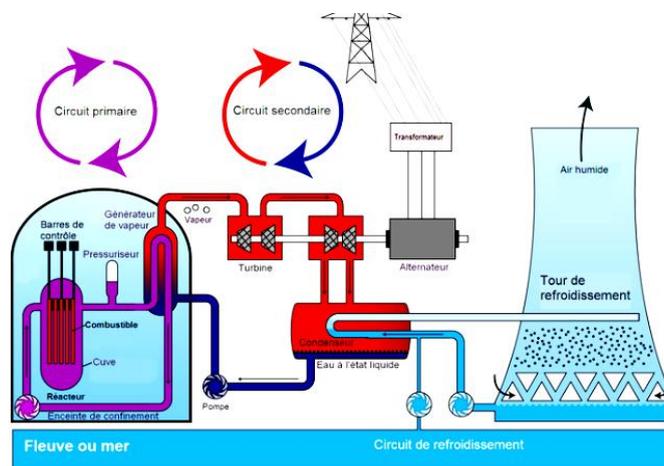


FIGURE 1.2 : Principe de fonctionnement d'un réacteur à eau pressurisée

²schéma extrait de <http://robert.jobard.free.fr/savoir/centrale-nucleaire>

L'exploitation des réacteurs nucléaires de production d'électricité doit satisfaire à des exigences de sûreté. Cela passe par le contrôle de la réactivité, le refroidissement du combustible nucléaire irradié et le confinement des matières radioactives.

Le concept de défense en profondeur, introduit en France dans les années 1970, se traduit par la mise en place de différents niveaux de défense reposant à la fois sur les caractéristiques de l'installation et sur les moyens (dispositifs matériels, procédures) mis en place dans le but de prévenir une situation accidentelle, et lorsque cette dernière se produit malgré tout, à en limiter les conséquences radiologiques sur l'environnement.

Au sein d'un réacteur à eau pressurisée, le concept de défense en profondeur est matérialisé par l'existence de trois barrières du confinement de la radioactivité :

1. la gaine des crayons combustibles ;
2. le circuit primaire fermé ;
3. l'enceinte de confinement en béton du bâtiment réacteur.

Tout événement ayant pour conséquence la sortie du fonctionnement normal du réacteur est classé, selon son incidence sur l'installation et ses conséquences sur l'environnement, sur l'échelle INES (International Nuclear Scale Event). Cette dernière comprend 8 niveaux, allant du niveau 0 relatant à un simple écart au fonctionnement normal sans conséquences sur l'installation jusqu'au niveau 7 pour les accidents majeurs ayant des conséquences radiologiques importantes sur l'environnement.

Les événements nucléaires de Tchernobyl (Ukraine, 1986) et de Fukushima (Japon, 2011) ont été classés au niveau 7 et celui de Three Mile Island (Etats-Unis, 1979) a été classé au niveau 5 [1, 2].

1.1.2 Propagation d'un accident grave

1.1.2.1 Phénoménologie relative à la formation d'un bain fondu

On qualifie d'accident grave une situation au cours de laquelle le combustible nucléaire est significativement dégradé par une fusion partielle ou complète du cœur du réacteur.

Parmi les accidents de réacteurs nucléaires, on distingue deux grandes familles [2] :

- les accidents de réactivité ;
- les accidents de refroidissement.

La première famille d'accidents résulte d'une insertion de réactivité au sein du cœur du réacteur à la suite, par exemple, d'une éjection intempestive des barres de commande.

Les accidents de refroidissement sont susceptibles d'intervenir à la suite d'une fuite sur le circuit primaire : on parle d'accident de perte de réfrigérant primaire (APRP), de la perte des sources électriques des systèmes de refroidissement ou de la perte de la source froide du circuit secondaire.

Dans la suite, nous nous limiterons aux accidents de perte de réfrigérant primaire.

Un tel accident est susceptible de conduire à la perte prolongée du refroidissement du cœur du réacteur [1, 3].

Même en cas d'arrêt des réactions de fission nucléaires par la chute des barres de contrôle, la puissance résiduelle associée aux décroissances radioactives des noyaux instables doit être évacuée, ce qui n'est plus assuré de par la perte du refroidissement du cœur. La puissance résiduelle n'étant plus évacuée, l'élévation de température qui en résulte peut mener à la dégradation du cœur.

Différents phénomènes physico-chimiques interviennent à court et à plus long terme dans le processus de dégradation du cœur :

- A partir de 700°C, dégradation des propriétés mécaniques des gaines en alliage de zirconium et déformation de ces dernières ;
- A 800°C, fusion des barres de commande en Ag-In-Cd ;
- Début de l'oxydation exothermique des gaines en alliage de zirconium par la vapeur d'eau vers 1030°C. Cette réaction exothermique libère localement une puissance supérieure à la puissance résiduelle, si cette puissance n'est pas évacuée il s'ensuit une augmentation de la température et un emballement de la réaction d'oxydation à partir de 1580°C ;
- Vers 1150°C, réaction de dissolution entre le B_4C et l'acier inoxydable ;
- Entre 1200 et 1400°C, formation d'eutectiques acier inoxydable-Zr et Ag-In-Cd-Zr ;
- A 1460°C, fusion de l'acier inoxydable ;
- A partir de 1760°C, fusion du zirconium métallique et début des réactions de dissolution entre le zirconium et le dioxyde d'uranium UO_2 ;

- A partir de 2530°C, réaction de dissolution entre le dioxyde d'uranium UO_2 et la zircône ZrO_2 , et formation d'un bain fondu ;
- Fusion de la zircône ZrO_2 et du dioxyde d'uranium UO_2 aux températures respectives de 2700°C et 2850°C.

Le bain fondu formé en cœur et résultant de la fusion du combustible nucléaire UO_2 et des gaines partiellement oxydées ($\text{Zr}+\text{ZrO}_2$) est appelé corium. Au cours de sa progression, le bain de corium est susceptible d'interagir avec les structures métalliques environnantes pour finalement se relocaliser vers le fond de cuve.

1.1.2.2 Relocalisation du corium en fond de cuve

Au cours de la relocalisation du corium vers le fond de la cuve du réacteur, plusieurs phénomènes peuvent intervenir.

Si de l'eau résiduelle est présente dans le fond de cuve, le jet de corium peut se fragmenter au cours de son interaction avec cette eau résiduelle. Les gouttes de corium ainsi fragmentées et solidifiées forment un lit de débris en fond de cuve. Ce lit de débris n'étant plus refroidi, ce dernier peut fondre pour former un bain de corium en fond de cuve ce qui peut mener à une perte de l'intégrité de la cuve du fait des flux de chaleur délivrés par ce bain de corium [4].

La formation d'un bain de corium en fond de cuve a été observée au cours de l'accident sur le réacteur n°2 de la centrale de Three Mile Island qui s'est produit aux Etats-Unis le 28 mars 1979 suite à la perte du refroidissement du cœur. L'état final du cœur du réacteur est présenté à la Figure 1.3 (extraite de <http://www.irsnn.fr>).

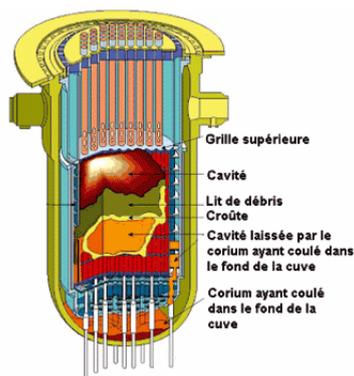


FIGURE 1.3 : Etat final du cœur de TMI-2

L'analyse post-accidentelle a mis en évidence qu'environ 20 tonnes de corium se sont retrouvées dans le fond de la cuve du réacteur.

L'intégrité de la cuve a toutefois été préservée, et il semble que la relocalisation du bain de corium au fond de la cuve noyée et en pression (de l'ordre de 100 bars) ait permis la circulation d'eau entre le bain de corium et la paroi de la cuve par l'intermédiaire d'un gap, favorisant ainsi la tenue de la cuve du réacteur [5].

En cas d'éventuelle rupture de la cuve du réacteur, le bain de corium se déverserait alors dans le puits de cuve et deux phénomènes sont alors susceptibles de mener à une défaillance de l'enceinte de confinement.

D'une part, en cas de présence d'eau dans le puits de cuve, une interaction corium-réfrigérant également appelée explosion de vapeur pourrait se produire.

D'autre part, une interaction entre le corium et le radier en béton de l'enceinte de confinement, connue sous le nom d'interaction corium-béton, pourrait également intervenir [1].

Ces deux phénomènes sont susceptibles de conduire à une défaillance de la troisième barrière de confinement et donc à des rejets radioactifs dans l'environnement.

Le maintien du corium au sein de la cuve du réacteur constitue une étape déterminante dans la gestion de l'accident grave. Plus particulièrement, la compréhension des phénomènes physico-chimiques relatifs à la problématique de rétention du corium en cuve s'avère de première importance.

1.2 La rétention du corium en cuve de réacteur

1.2.1 Stratégie de rétention du corium en cuve

Dans le cadre de l'exploitation des réacteurs et de la conception de futurs réacteurs, des moyens de mitigation visant à réduire les conséquences d'un accident grave sur l'installation et l'environnement sont à l'étude.

Une des approches de sûreté envisagée est de maintenir le bain de corium au sein de la cuve du réacteur : il s'agit de la stratégie IVR (In-Vessel Retention).

Cette stratégie de rétention du corium en cuve consiste en le refroidissement externe de la cuve du réacteur par un renoyage du puits de cuve [6–9]. Depuis la fin des années 1990, ce concept de rétention en cuve par un renoyage externe a fait l'objet d'investigations et de mises en œuvre sur des réacteurs existants de faible puissance [10, 11] ainsi que pour des

concepts avancés de réacteurs tels que l'AP1000 [12] ou le réacteur APR1400 [13].

Le succès de cette stratégie de gestion de l'accident réside dans la capacité d'extraire en tout point de la cuve et à tout moment le flux de chaleur transmis par le bain de corium à la cuve. Localement, le flux de chaleur à extraire ne doit pas excéder le flux critique correspondant à la limite d'assèchement sur la face externe de la cuve. Si cela se produisait, le percement de la cuve par fusion deviendrait inévitable.

Le bain de corium est un système chimique complexe en termes d'espèces en présence, puisqu'il est constitué du combustible nucléaire fondu (UO_2), des gaines de combustible partiellement oxydées (ZrO_2 , Zr), des matériaux métalliques issus de la fusion des structures internes (Fe, Cr, Ni,...) ainsi que des produits de fissions non volatils portant la majorité de la puissance résiduelle du bain de corium. Le comportement de ce bain de corium est régi par deux grands phénomènes.

D'une part, la thermochimie de ce bain conditionne sa séparation en plusieurs phases (liquides et solides). D'autre part, la thermo-hydraulique (convection naturelle) du bain détermine le flux de chaleur transmis à la cuve, et donc la probabilité de succès d'une stratégie IVR par renoyage du puits de cuve.

Une des principales menaces pour l'intégrité de la cuve est l'existence d'une couche d'acier au-dessus d'un bain de corium oxyde entouré d'une croûte réfractaire, tel que représenté schématiquement à la Figure 1.4.

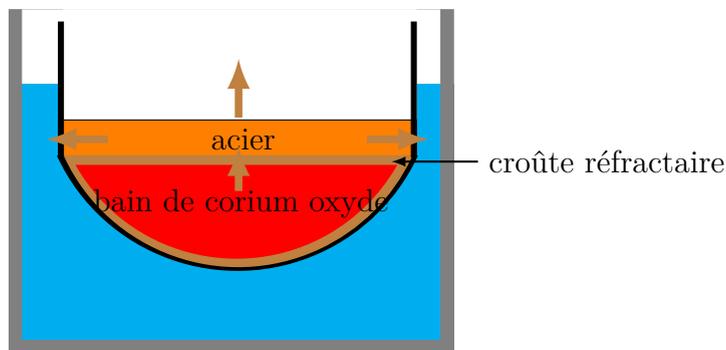


FIGURE 1.4 : Stratégie de rétention du corium en cuve de réacteur par renoyage externe du puits de cuve et phénomène de « focusing effect »

Au sein du bain de corium oxyde, les transferts de chaleur par convection naturelle s'effectuent vers les parois de la cuve ainsi que vers la surface supérieure du bain.

La part de la puissance résiduelle transmise par le bain oxyde à cette couche supérieure est de 50% en ordre de grandeur [1]. La couche métallique supérieure étant très conductrice, en l'absence d'une croûte oxyde aux parois de la cuve, celle-ci transmet une puissance latérale importante à la cuve sur une faible épaisseur, conduisant ainsi à un phénomène de concentration du flux de chaleur également appelé « focusing effect ». Ce phénomène est d'autant plus pénalisant pour la tenue de la cuve que l'épaisseur de la couche métallique supérieure peut être faible (décimétrique).

La connaissance de l'état du bain de corium, et notamment la possible existence d'une phase métallique supérieure, est de premier intérêt vis-à-vis de l'évaluation de la distribution du flux de chaleur à son interface et donc le succès d'une stratégie de rétention du corium en cuve de réacteur.

Dans ce qui suit, nous abordons la problématique de la rétention sous l'angle de la configuration du bain en termes de répartitions des phases oxyde et métalliques.

1.2.2 Etat stationnaire du bain de corium en fond de cuve

L'approche standard consiste à évaluer le flux de chaleur transmis à la cuve en considérant des configurations stationnaires (en termes de répartition des phases liquides) dites « enveloppes » associées au bain de corium [12, 14–16]. Ces configurations sont obtenues à partir de raisonnements relatifs à l'équilibre thermodynamique du système U-O-Zr-acier.

1.2.2.1 Phénoménologie

La présence d'une lacune de miscibilité dans le système U-O-Zr-acier à l'état liquide conduit à l'équilibre thermodynamique à la coexistence de deux phases liquides immiscibles [17] :

- une phase métallique présentant une faible limite de solubilité de l'oxygène ;
- une phase oxyde riche en oxygène.

La phase métallique est majoritairement constituée d'espèces métalliques et la phase oxyde d'espèces oxydées.

A l'équilibre thermochimique, étant donné que ces phases liquides présentent des écarts de densités significatifs, l'état du bain de corium oxyde-métal est caractérisé par une stratification à deux couches. L'état de stratification dépend de :

- la température T du système ;
- le degré d'oxydation du zirconium, noté C_n et défini par

$$C_n = \frac{N_{ZrO_2}}{N_{Zr} + N_{ZrO_2}} \quad (1.1)$$

où N_{ZrO_2} et N_{Zr} désignent respectivement la quantité de dioxyde de zirconium ZrO_2 et de zirconium métallique Zr ;

- le rapport molaire entre l'uranium et le zirconium dans le bain oxyde, désigné par $R_{U/Zr}$;
- le rapport x_{steel} entre la masse d'acier et d'oxyde mis en présence :

$$x_{steel} = \frac{m_{steel}}{m_{ox}} \quad (1.2)$$

La Figure 1.5 décrit l'évolution des densités des phases oxyde et métallique à l'équilibre thermodynamique³ en fonction de la quantité d'acier x_{steel} présente.

³Ce calcul de densités est obtenu à partir de l'équilibre thermochimique associé à la base thermodynamique NUCLEA09 [18] pour le système U-O-Zr-Fe-acier et des lois de densités $\rho_i(T)$ des espèces physico-chimiques du système considéré implémentées dans le code TOLBIAC-ICB [19] et le code PRO-COR [20]

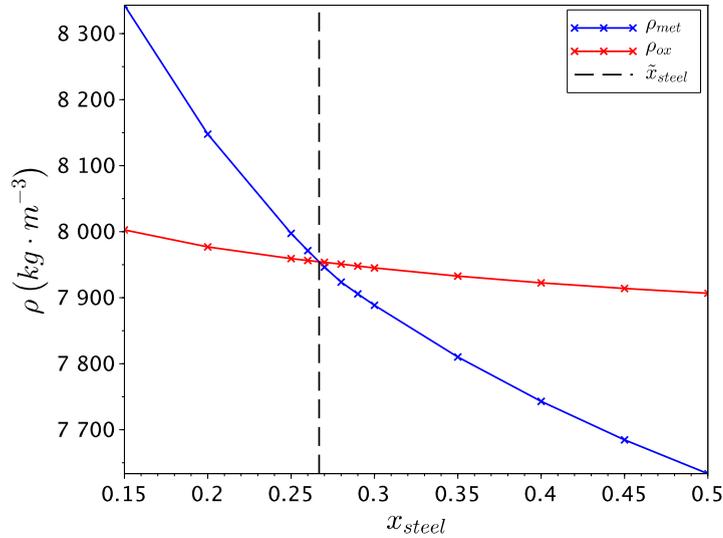


FIGURE 1.5 : Evolution des densités des phases oxyde et métallique en fonction de la quantité d'acier x_{steel} pour $T = 3000$ K, $R_{U/Zr} = 1.2$ et $C_n = 32\%$

On distingue alors deux configurations :

- une première situation où la phase métallique est plus dense que la phase oxyde lorsque que la quantité d'acier ajoutée, définie par la valeur de x_{steel} , est inférieure à la valeur seuil \tilde{x}_{steel} ;
- si la quantité d'acier ajoutée dépasse cette valeur seuil, l'état de stratification à deux couches est caractérisé par une phase oxyde plus dense que la phase métallique.

La question de l'interaction thermochimique entre une phase métallique et un corium sous-oxydé a été étudiée dans le programme OCDE MASCA [21] mené par l'institut Kurchatov en Russie. Ce programme expérimental avait entre autres pour objectif d'étudier le transfert d'espèces (U,Zr) depuis un corium sous-oxydé vers une phase métallique. Pour cela, différentes campagnes d'essais expérimentaux ont été menées.

En particulier, on peut citer les essais MA réalisés dans l'installation RASPLAV-3 (voir Figure 1.6), au nombre de 8 et mettant en jeu une masse de corium sous-oxydé de l'ordre de 1 à 2 kg. Ce corium, caractérisé par un degré d'oxydation C_n et un rapport molaire $R_{U/Zr}$, est mis au contact d'une masse d'acier définie par x_{steel} .



FIGURE 1.6 : L'installation RASPLAV-3

Ces essais ont été réalisés en creuset froid par chauffage inductif et en atmosphères inerte (pour 6 d'entre eux) et oxydantes.

La Figure 1.7 présente l'état final des essais MA-3 (Figure 1.7a) et MA-6 (Figure 1.7b) réalisés sous atmosphère neutre.



FIGURE 1.7 : Lingots post-mortem des essais MA-3 et MA-6

L'analyse comparative de ces deux essais est particulièrement intéressante car ils présentent un état de stratification final différent. En effet, pour l'essai MA-3, l'état final correspond à une phase métallique sous une phase oxyde, alors que l'essai MA-6 présente un état de stratification inverse. Cet état stationnaire peut ainsi être interprété en termes de différences de l'équilibre thermochimique atteint. Notamment, la quantité d'acier ajoutée lors de l'essai MA-6 est supérieure à celle de l'essai MA-3 et se trouve au-dessus du seuil d'inversion de stratification, ce qui est cohérent avec l'état de stratification observé. Les essais de la série MA ont mis en évidence que le transfert d'uranium et de zirconium depuis un corium oxyde vers une phase métallique supérieure pouvait conduire à une augmentation significative de la densité de la phase métallique supérieure et à sa relocalisation sous la phase oxyde.

La présence de matériaux absorbants en B_4C affecte l'état de stratification du bain par son impact en particulier sur la densité de la phase métallique et le seuil d'inversion de stratification. Ces effets sont discutés dans [22, 23] dans le cadre du programme expérimental EPICOR. Au vu des faibles quantités présentes de ces matériaux absorbants dans les réacteurs à eau pressurisée, l'effet du B_4C sur l'état de stratification du bain ne sera pas abordé ici.

Par ailleurs, toujours en lien avec l'état de stratification à deux couches d'un bain de corium et de l'évaluation du flux de chaleur, la répartition dans chacune des phases des produits de fission et donc la puissance résiduelle associée, a fait l'objet d'investigations dans le cadre des essais STFM-FP du programme MASCA [21].

Il a été déduit que la part de la puissance résiduelle présente dans la phase métallique est comprise entre 15 et 25% de la puissance résiduelle totale du bain.

1.2.2.2 Configurations stationnaires « enveloppes » pour l'application réacteur

Le choix des configurations stationnaires « enveloppes » est en particulier discuté dans [14–16, 24, 25] et notamment du point de vue de l'état de stratification du bain (répartition des phases oxyde et métalliques).

La méthodologie proposée dans [25] pour évaluer ces configurations stationnaires est décrite ci-après :

- on considère un bain de corium en fond de cuve constitué d'une masse initiale d'oxydes m_{ox}^0 , dont la composition est donnée par C_n et $R_{U/Zr}$, et d'une masse d'acier m_{steel}^0 .
- le calcul de l'équilibre thermo-chimique associé au système constitué de la masse d'oxydes m_{ox}^0 et d'une masse d'acier $m_{ox}^0 \times \tilde{x}_{steel}$, conduit à un état stratifié à deux couches avec une phase oxyde au-dessus d'une phase métallique.

La masse d'acier restante $m_{steel}^0 - m_{ox}^0 \times \tilde{x}_{steel}$ est au-dessus de ce bain oxyde-métal.

La Figure 1.8 est une illustration de la configuration stationnaire décrite précédemment pour l'évaluation du flux de chaleur.

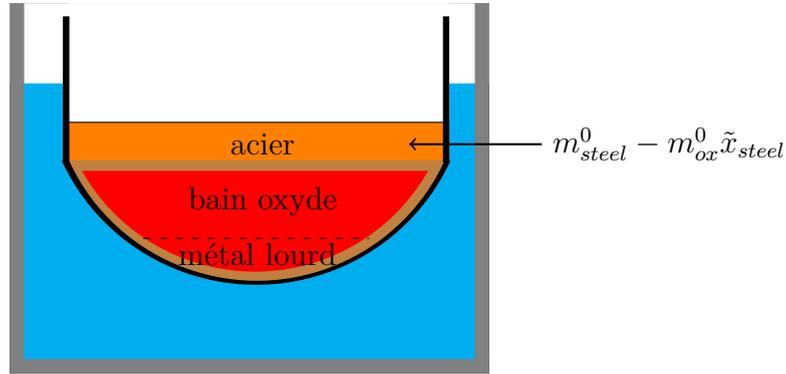


FIGURE 1.8 : Configuration de stratification « enveloppe » pour les calculs stationnaires de flux de chaleur

Cette configuration est qualifiée « d’enveloppe » vis-à-vis du phénomène de « focusing effect » car l’épaisseur de la couche d’acier supérieure est minimale et le flux latéral transmis à la paroi de la cuve maximum.

Néanmoins, dans cette approche, les masses d’oxydes et d’acier mises en jeu tout comme le degré d’oxydation du bain de corium oxyde sont dépendants du scénario de dégradation du cœur et leur choix n’est pas aisé [24]. De plus, des travaux récents remettent en cause le caractère enveloppe de ces configurations stationnaires pour l’évaluation du risque de percement par un phénomène de « focusing effect » transitoire. Au cours de la formation de la couche métallique supérieure, son épaisseur peut se trouver être inférieure à celle obtenue par l’approche stationnaire et donc mener à une sous-évaluation du flux de chaleur transmis par la couche supérieure à la paroi de la cuve [25].

L’approche stationnaire ne semble pas suffisante pour une évaluation « enveloppe » du flux de chaleur et *in fine* du risque de percement de la cuve par « focusing effect » et il faut ainsi s’intéresser à une approche transitoire d’évaluation du flux de chaleur.

1.3 Vers une modélisation transitoire du bain de corium

La modélisation de la propagation d’un accident grave, et en particulier le comportement du bain de corium met en jeu le développement d’outils de simulation numérique. Les progrès réalisés dans la compréhension des phénomènes intervenant au cours d’un accident

grave sont capitalisés dans les codes scénarios (voir par exemple [26] pour le code LEONAR et [20, 25] pour la plateforme logicielle PROCOR) utilisés dans le cadre des études de sûreté pour différents types de réacteurs nucléaires. Une approche transitoire « 0D » est mise en jeu dans ces codes de calcul et fait intervenir :

- une modélisation thermo-hydraulique « 0D » d'évaluation du flux de chaleur ;
- la modélisation de phénomènes thermo-chimiques transitoires.

Les modèles thermo-hydrauliques « 0D » reposent sur l'évaluation du flux de chaleur par le biais de corrélations du transfert de chaleur en convection naturelle. Des programmes expérimentaux [27] ont permis, pour différents matériaux simulants et différentes géométries (principalement en bain homogène), d'établir des corrélations du flux de chaleur en régime permanent (convection naturelle établie). Leur utilisation dans une approche transitoire rend la modélisation du bain de corium incertaine comme discuté par [28].

D'une part, ces corrélations étant associées à un régime thermo-hydraulique du bain établi, elles ne peuvent capturer les transitoires associés à l'établissement de la convection naturelle (par exemple en cas de changement rapide d'une condition aux limites).

D'autre part, les corrélations du flux de chaleur ont été obtenues principalement pour des bains homogènes dans des géométries de type « calotte sphérique » ou elliptique, qui diffèrent de la configuration transitoire des couches du bain en situation réacteur. En particulier, dans le cas de la couche métallique supérieure, pour de faibles épaisseurs les corrélations utilisées sont hors de leur domaine de validité et conduisent à une surestimation du flux de chaleur latéral. Ainsi, le choix de ces corrélations pour une approche transitoire dans les codes accidents graves conduit à une incertitude sur la modélisation du bain.

Par ailleurs, une approche transitoire « 0D » du comportement du bain de corium met en jeu la modélisation de phénomènes transitoires qui influencent le comportement thermo-hydraulique du bain. Par exemple, l'aspect transitoire de la stratification du bain ou encore le phénomène de solidification à l'interface du bain. Il existe un manque de connaissances sur la compréhension de ces phénomènes transitoires qui rend la modélisation macroscopique difficile et relativement incertaine.

Le développement d'une modélisation « fine » du comportement du bain de corium constitue une approche complémentaire aux programmes expérimentaux dans le but de gagner en connaissances sur la compréhension des phénomènes transitoires impliqués et

d'améliorer *in fine* la modélisation macroscopique des codes scénarios.

En ce sens, une approche CFD (« Computational Fluid Dynamics » ou mécanique des fluides numériques en français) de la thermo-hydraulique du bain semble intéressante. Cette approche a connu un intérêt grandissant ces dernières années pour traiter la convection naturelle d'un bain de corium avec dissipation interne de chaleur, et consiste à résoudre les équations de Navier-Stokes de la mécanique des fluides (équation de conservation de la masse, conservation de la quantité de mouvement, équation de conservation de l'énergie) pour des fluides compressibles ou incompressibles.

Dans ce cadre, un point important dans la modélisation de la convection naturelle est le traitement de la turbulence pour des bains de grandes tailles. En effet, pour ces cas 3D à l'échelle réacteur, une approche en « simulation directe » (DNS : Direct Numerical Simulation) n'est pas envisageable et le recours à la modélisation est inévitable. En la matière, les méthodes de « simulation aux grandes échelles » (LES : Large Eddy Simulation) ont atteint un niveau de maturité qui les rendent intéressantes pour cette application.

Récemment dans [29], ces méthodes ont été mises en œuvre avec succès pour l'étude d'un bain stratifié oxyde-métal. L'analyse menée se déroule en deux étapes. Tout d'abord, la couche oxyde a été simulée par une approche LES avec des conditions aux limites supérieure et inférieure isothermes. Puis, pour la phase métallique, il est imposé un flux depuis la phase oxyde supérieure. Dans le but de tenir compte du changement des conditions aux limites suite à la fusion partielle de la paroi de la cuve, un modèle de fusion et de solidification du métal a été considéré pour l'analyse de la phase métallique inférieure.

Par ailleurs, dans le cadre de l'interprétation d'expériences de type MASCA, le code CONV [30] qui traite la convection naturelle laminaire a été enrichi dans le but de prendre en compte le chauffage inductif dans l'équation de conservation de l'énergie. Les résultats obtenus sont qualitativement en accord avec les résultats expérimentaux.

Dans le cadre du projet européen H2020 IVMR (2015-2019)⁴, des travaux sur la modélisation de la thermo-hydraulique des bains par une approche CFD [31] sont en cours et montrent ainsi l'intérêt de cette approche pour une modélisation « fine » du comportement du bain de corium.

Le travail de thèse présenté ici s'inscrit dans cette démarche de modélisation

⁴http://cordis.europa.eu/project/rcn/196923_en.html

« fine ». En parallèle d'autres travaux réalisés dans le laboratoire et portant directement sur la simulation thermo-hydraulique⁵, on s'intéresse ici à question de la prise en compte de la cinétique de stratification des phases oxyde et métalliques dans une telle approche CFD.

1.4 Transitoire de stratification d'un bain de corium oxyde-métal

1.4.1 Phénoménologie

Nous discutons dans cette partie de la phénoménologie relative à l'état de stratification transitoire d'un bain de corium oxyde-métal. En particulier, nous présentons l'état des lieux des connaissances des phénomènes susceptibles d'influencer cet état de stratification.

1.4.1.1 La cinétique de stratification

Dans le cadre du programme MASCA, outre les essais à « petite échelle » ayant permis la caractérisation de l'état stratifié à deux couches d'un bain de corium oxyde-métal, un essai mettant en jeu une masse plus importante de corium sous-oxydé a été réalisé : il s'agit de l'essai RCW [21, 32].

Environ 45 kg de corium sous-oxydé ont été mis en contact avec une masse d'acier de 4 kg. Au sens de l'inventaire global du système, la quantité d'acier ajoutée place ce dernier, à l'équilibre thermo-chimique, sous le seuil d'inversion de stratification et donc à un état stratifié caractérisé par une phase métallique sous la phase oxyde.

L'expérience arrêtée au bout de 20 minutes a conduit à un état différent d'un état stationnaire à deux couches tel que présenté en Figure 1.9.

⁵En particulier, au sein du laboratoire CEA, DTN/SMTA/LPMA, le travail de L. Saas avec le code TRIO_CFD porte sur la couche d'acier responsable du focusing effect et son comportement thermo-hydraulique pour de faibles épaisseurs.

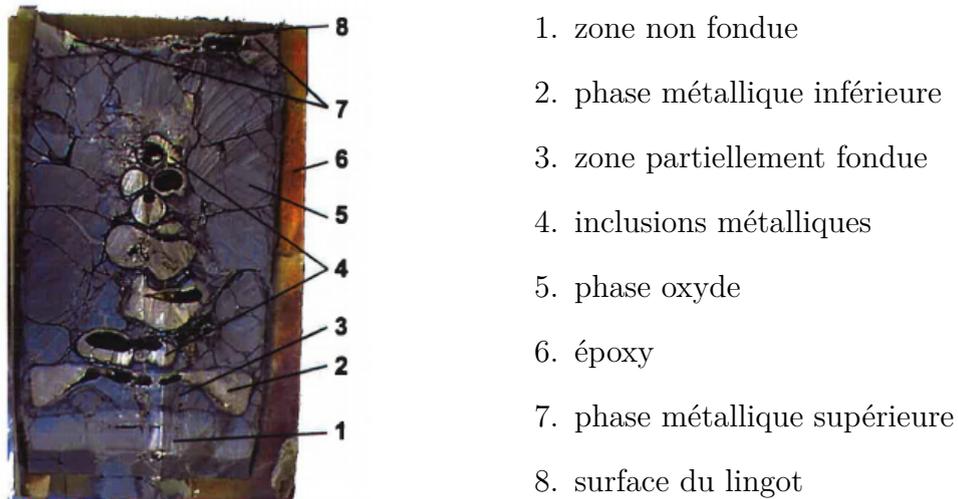


FIGURE 1.9 : Etat post-mortem de l'essai RCW (extrait de [32])

L'analyse du lingot post-mortem a mis en évidence un phénomène de relocalisation de l'acier supérieur sous l'oxyde et l'existence de 3 zones distinctes :

- une phase métallique légère (7) ;
- des inclusions métalliques centimétriques (4) enrichies en uranium (U) et zirconium (Zr) au sein de la phase oxyde (5) ;
- une phase métallique inférieure (2) sous l'oxyde.

De par cette analyse, les mécanismes proposés par [33] associés au phénomène de relocalisation de l'acier sous la couche oxyde sont :

- la réduction du dioxyde d'uranium par le zirconium métallique présent selon la réaction chimique $UO_2 + Zr \rightarrow U + ZrO_2$ et le transfert d'uranium et de zirconium depuis la phase oxyde vers l'acier supérieur au niveau de l'interface oxyde/acier ;
- un enrichissement local de la phase métallique supérieure en uranium et zirconium (Figure 1.10) qui devient plus dense que la phase oxyde, ce phénomène est à l'origine de la formation puis du détachement de globules métalliques par instabilités de *Rayleigh-Taylor*.

Le mécanisme de coulée des globules métalliques présente une cinétique plus rapide que la diffusion de l'uranium et du zirconium dans la phase métallique comme en témoigne l'existence de gradients de composition en uranium et zirconium à l'interface entre la phase métallique supérieure et l'oxyde (Figure 1.10).

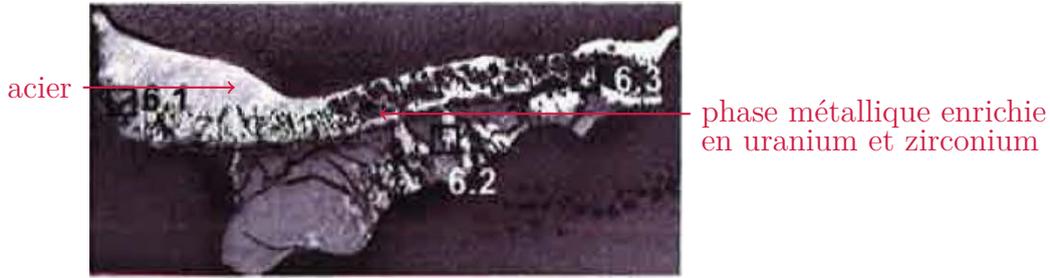


FIGURE 1.10 : Structure macroscopique de la phase métallique supérieure solidifiée de l'essai RCW (photographie extraite de [32])

Les états stationnaires des essais MA et RCW peuvent être discutés en termes de développements des instabilités de *Rayleigh-Taylor* à l'interface métal-oxyde.

Pour notre discussion, on considère l'apparition des instabilités de *Rayleigh-Taylor* à l'interface initialement plane entre deux liquides et on s'appuie sur l'analyse spectrale perturbative de la mécanique des fluides. Dans la phase de croissance linéaire des instabilités pour une géométrie plane infinie, le critère d'amplification des instabilités relatif au nombre d'onde k est donné par [34] :

$$k \leq k_c = \sqrt{\frac{g(\rho_{met} - \rho_{ox})}{\sigma}} \quad (1.3)$$

où g est l'accélération de la pesanteur, ρ_{met} , ρ_{ox} et σ désignent respectivement les densités de phase métallique supérieure et de la phase oxyde, et la tension interfaciale à l'interface oxyde-métal.

Cette tension interfaciale joue un rôle stabilisant sur l'onde de perturbation de l'interface dans une gamme de nombre d'onde $k > k_c$. Lorsque le nombre d'onde k devient inférieur à ce nombre d'onde critique, les instabilités croissent puisque les effets de tension de surface ne suffisent plus à stabiliser les ondes d'interface.

On peut, à partir de ce critère d'amplification des instabilités de *Rayleigh-Taylor*, évaluer le diamètre caractéristique des globules qui se détachent de l'interface entre la phase oxyde et la phase métal. Par exemple, si l'on considère que ces instabilités se développent dès un écart de densité $\Delta\rho = 200 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ entre la phase métallique et oxyde, et une tension interfaciale $\sigma \approx 0.36 \text{ N}\cdot\text{m}^{-1}$ donnée par le modèle de *Girifalco* [35] entre une interface UO_2 -fer [36], le diamètre caractéristique des globules métalliques est d'environ 3 cm ce qui coïncide avec la taille de ces inclusions observées dans l'essai RCW.

Dans cet essai, les globules métalliques solidifiés au sein de la phase oxyde présentent un

diamètre de l'ordre de 6 cm (pour les globules les plus importants) ce qui représente une masse d'acier de l'ordre du kilogramme. Au vu de la masse d'acier mise en jeu dans la série MA (entre 150 et 500 g), le transitoire de relocalisation se traduit par un mouvement en « bloc » de la phase métallique supérieure. Dans l'essai RCW, la masse d'acier étant plus importante (de l'ordre de 4 kg), cette cinétique de relocalisation se traduit par le détachement de plusieurs globules métalliques depuis l'interface acier-oxyde.

Les essais MA « petite échelle » ont uniquement permis de caractériser un état stationnaire à deux couches, et ne fournissent que peu d'informations sur la cinétique de stratification. L'essai RCW, de plus grande taille, ne caractérise que partiellement le transitoire de stratification puisque les seules informations obtenues proviennent de l'analyse post-mortem de cet essai. L'état de connaissance du phénomène transitoire de stratification d'un bain de corium oxyde-métal reste ainsi très partiel.

1.4.1.2 Effet de la présence d'une croûte réfractaire à l'interface acier/oxyde

Les essais réalisés dans le cadre du programme MASCA visant à étudier les interactions thermochimiques entre l'acier et un bain de corium sous-oxydé ont mis en jeu des configurations ne présentant pas de croûte à l'interface entre l'acier et le corium oxyde.

De par le bilan thermique en situation réacteur, on peut s'attendre à une croûte d'épaisseur millimétrique au-dessus du bain oxyde. Celle-ci est probablement instable mécaniquement et peut être soumise à des cycles de formation et de disparition [24].

L'influence d'une croûte stable à l'interface acier-oxyde sur le transfert de masse de l'acier au travers de cette dernière a été étudiée dans le cadre des essais CD1 du programme expérimental CORDEB [37] réalisés en atmosphère neutre.

La conclusion que l'on peut tirer de ces essais CD1 est que la présence d'une croûte à l'interface acier-oxyde n'interdit pas le transfert d'acier mais le ralentit. Les mécanismes proposés sont :

- une interaction thermochimique entre l'acier et la croûte sous-oxydée (diffusion de l'acier, dissolution des grains oxydes) ;
- un écoulement convectif d'une phase métallique au travers de la croûte.

En comparaison de l'essai MA-6 présentant un inventaire proche de celui des essais CD1, un état stratifié à deux couches a été obtenu au bout de 30 minutes (avec une phase

métallique au-dessus d'une phase oxyde), alors que pour l'essai CD1 qui s'est arrêté après 3 heures, le transfert d'acier n'est pas fini.

Par ailleurs, des benchmarks réalisés entre deux outils de simulation de la propagation du corium en cuve au cours d'un accident grave ont mis en évidence l'importance jouée par cette croûte à l'interface oxyde/acier sur le transfert de l'acier. Cette comparaison [38] a été effectuée entre le code MAAP [39] (Modular Analysis Accident Program) dans sa version développée par EDF et la plateforme numérique PROCOR [20] (PROpagation of CORium) développée au CEA Cadarache.

Dans le code MAAP, la croûte est supposée mécaniquement stable et poreuse, alors que pour la plateforme PROCOR cette croûte est « transparente » au transfert de masse et n'agit donc pas comme une barrière à ce transfert. En particulier, les résultats montrent que le temps de transfert de l'acier est 5 fois moins important dans le calcul PROCOR par rapport au calcul MAAP.

Le comportement de la croûte sous-oxydée joue donc un rôle sur le transfert de masse de l'acier au travers de cette dernière, et *in fine* sur le phénomène de « focusing effect ».

Des incertitudes persistent sur la phénoménologie relative à l'interaction entre une croûte et l'acier fondu. Dans le cadre du projet européen IVMR des essais expérimentaux auront pour objectifs une meilleure compréhension des phénomènes mis en jeu (programme expérimental CORDEB2 [37], essais dans l'installation expérimentale VITI⁶ [40] de la plateforme PLINIUS⁷ du CEA Cadarache).

1.4.1.3 Influence de l'oxydation du bain par une atmosphère gazeuse

Jusqu'à maintenant, nous avons abordé la problématique de stratification d'un bain de corium en atmosphère neutre. L'état de stratification à température T , rapport molaire $R_{U/Zr}$ et degré d'oxydation C_n du bain fixés est alors caractérisé par un seuil d'inversion de stratification \tilde{x}_{steel} associé à la masse d'acier présente.

La présence d'une atmosphère gazeuse au contact du bain de corium peut modifier son état de stratification. Cette fois-ci, à rapport $R_{U/Zr}$, température T et proportion d'acier x_{steel} fixés, il existe une valeur \tilde{C}_n du degré d'oxydation du bain correspondant au seuil d'inversion de stratification tel que mis en évidence à la Figure 1.11.

En dessous de ce degré d'oxydation \tilde{C}_n , l'état stratifié correspond à une phase métallique

⁶<http://www-cadarache.cea.fr/fr/activites/fission/dtn/Plateformes/Plinius/VITI.php>

⁷<http://www-cadarache.cea.fr/fr/activites/fission/dtn/Plateformes/Plinius/Plinius.php>

sous la phase oxyde, et au-dessus de ce seuil d'inversion la phase métallique devient plus légère que la phase oxyde.

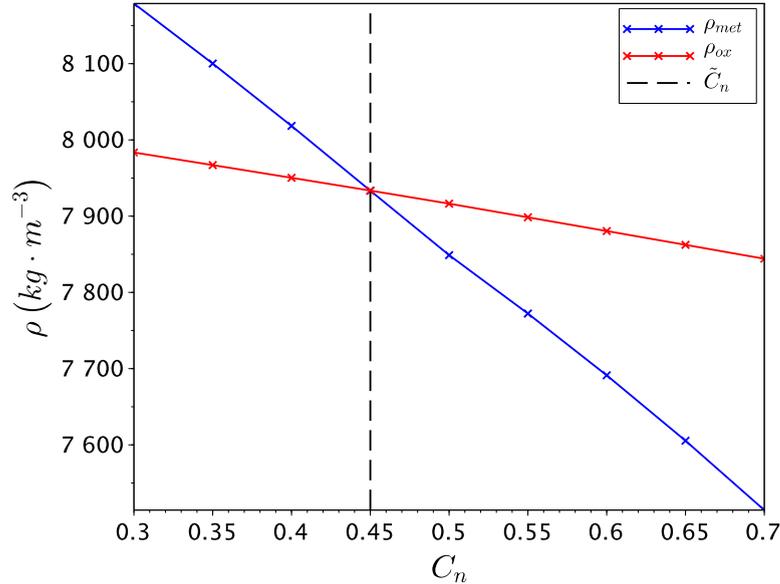


FIGURE 1.11 : Evolution des densités des phases oxyde et métal en fonction du degré d'oxydation du bain à $T=3000$ K, $R_{U/Zr}=1.2$ et $x_{steel}=0.2$

L'étude de l'effet de l'oxydation d'un bain de corium par une atmosphère gazeuse a fait l'objet d'investigations au travers de divers programmes expérimentaux dont une revue est donnée dans [41].

On peut notamment faire référence aux essais MA-7 et MA-9 du programme MASCA [21]. Ces deux essais diffèrent par la nature de l'atmosphère oxydante. Dans l'essai MA-7 il s'agit de l'air et pour l'essai MA-9 la vapeur d'eau joue le rôle d'atmosphère oxydante, et ces essais présentent dans l'état final une stratification à deux couches.

Du fait de l'hétérogénéité du système atmosphère gazeuse-bain de corium, le phénomène d'oxydation du bain est contrôlé par la cinétique chimique de la réaction d'oxydo-réduction et par le transport des réactifs (espèces oxydantes et réductrices) à l'interface ainsi que par le transport des produits de la réaction.

La conclusion tirée des essais expérimentaux menés est que le processus d'oxydation est limité par l'apport des espèces oxydantes à l'interface et non pas par la cinétique de la réaction chimique [41].

De la même manière, le programme expérimental CORDEB, et en particulier la série

d'essais CD2, a eu pour objectif l'investigation de l'effet combiné lié à la présence d'une atmosphère gazeuse et d'une croûte sous-oxydée sur le processus de stratification.

Ces essais ont notamment montré que la cinétique d'oxydation du bain par l'atmosphère oxydante est limitée cette fois-ci par l'apport d'oxydant au travers de la croûte et la vitesse de la cinétique d'oxydation serait au premier ordre inversement proportionnelle à l'épaisseur de la croûte supérieure.

Nous avons discuté ici les phénomènes pouvant présenter un effet sur l'état de stratification du bain de corium en fond de cuve en termes de répartition des phases liquides oxyde et métalliques.

Dans ce qui suit, les effets relatifs à l'existence d'une croûte et à la présence d'une atmosphère gazeuse, ainsi que leur effet combiné sur la stratification ne seront pas traités. Nous aborderons le phénomène de stratification sous l'angle de la cinétique de stratification des phases liquides oxyde et métal sans croûte d'interface et en atmosphère neutre.

Nous discutons dans la section suivante l'état de la modélisation de cette cinétique de stratification des phases liquides dans les codes accidents graves. En particulier, nous présentons une revue des modélisations existantes dans ces codes de calcul et nous détaillons les limitations de ces modèles vis-à-vis de leur prise en compte dans le cadre d'une modélisation par une approche CFD.

1.4.2 Modélisation de la cinétique de stratification dans les codes de calculs

Le modèle proposé par [42] et implémenté dans le code ASTEC (Accident Source Term Evaluation Code) [43, 44] ne présente pas de cinétique de répartition des espèces par diffusion. La cinétique de stratification repose ici sur un modèle de séparation hydrodynamique des phases liquides oxyde et métalliques. Dans cette modélisation, une configuration du bain de corium à 3 couches (métallique supérieure, oxyde et métallique inférieure) est considérée. Le modèle thermochimique de *Salay et Fichot* [45] est utilisé pour le calcul de l'équilibre thermochimique associé au bain, et en particulier pour déterminer les compositions massiques des phases oxyde et métalliques ainsi que leur densité. Ce modèle thermochimique est une surface de réponse pour les calculs d'équilibres thermodynamiques dans le système U-O-Zr-(Fe-Cr-Ni) construite à partir des résultats du

programme expérimental MASCA.

A partir de là, le processus de séparation hydrodynamique est alors basé sur les différences de densité des phases oxyde et métalliques à l'origine d'un mouvement de matière de ces phases.

Le modèle permet ainsi d'évaluer à partir de ces mouvements de matière les inventaires en termes de masse des espèces de chaque phase. Le modèle traite ainsi la cinétique de stratification du bain de corium du point de vue de l'hydrodynamique des phases oxyde et métalliques et non pas sous l'angle de la diffusion chimique qui, de par l'analyse de l'essai RCW, semble être le phénomène limitant dans le processus de stratification des phases liquides. La cinétique de stratification associée est de ce fait très rapide puisqu'il est fait l'hypothèse que l'équilibre thermo-chimique est atteint instantanément.

Un modèle cinétique « 0D » de transfert de masse inter-couches dans le cadre d'un bain oxyde-métal, et basé sur l'interprétation de l'essai RCW du programme MASCA a été proposé par [33] et implémenté dans la plateforme logicielle PROCOR [25].

Ce modèle considère un bain à 3 couches liquides (oxyde, métallique supérieure et inférieure).

Dans ce modèle, il est fait l'hypothèse que le temps caractéristique associé à la diffusion de l'uranium depuis la phase oxyde vers la phase métallique est supérieur au temps associé au phénomène de relocalisation des globules métalliques enrichis sous la phase oxyde au vu de l'interprétation de l'essai RCW. Ce modèle cinétique porte donc sur l'évolution temporelle de la fraction massique moyenne de l'uranium f_U^{ox} dans la couche oxyde.

Il est notamment fait l'hypothèse qu'à l'interface entre la couche oxyde et métallique la fraction massique de l'uranium est égale à la fraction à l'équilibre thermodynamique $f_U^{ox,eq}$ dans la couche oxyde. L'évolution de f_U^{ox} est alors donnée par

$$f_U^{ox}(t) = f_{U,eq}^{ox} - \left(f_{U,eq}^{ox} - f_U^{ox}(0) \right) e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (1.4)$$

τ est un temps caractéristique proportionnel au coefficient de transfert de masse h_m

$$\tau \propto \frac{1}{h_m} \quad (1.5)$$

Ce coefficient de transfert de masse h_m est obtenu par une analogie avec le transfert de chaleur et relie l'épaisseur de la couche limite associée au transfert de masse à la couche limite de transfert thermique. Ce paramètre h_m dépend notamment du coefficient de

diffusion D_U ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) de l'uranium dans la couche oxyde.

Dans ce modèle, il est fait l'hypothèse que toutes les variations de masse ΔM_i^l des espèces i dans la couche l sont corrélées à celle de l'uranium dans la couche oxyde. Cette variation de masse ΔM_i^l entre un instant t et $t + \Delta t$ est alors donnée par

$$\Delta M_i^l = \alpha \Delta M_{i,eq}^l \quad (1.6)$$

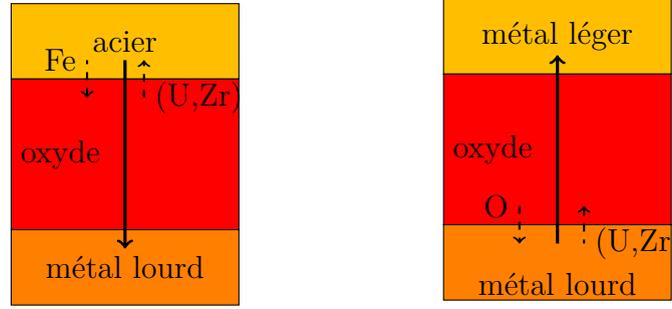
α est un facteur de progression obtenu à partir de l'équation (1.4) et $\Delta M_{i,eq}^l$ désigne la variation de masse de l'espèce i entre l'état actuel et l'équilibre thermodynamique.

En pratique, pour les calculs réacteurs, les valeurs relatives à l'équilibre thermodynamique (symbolisées par *eq*) ne sont pas obtenues par un code de minimisation de l'énergie de Gibbs d'une base thermodynamique mais par le modèle de *Salay et Fichot*.

Plus récemment un modèle cinétique de transfert de masse dans le cadre d'une configuration à 3 couches (phase métallique supérieure, inférieure, phase oxyde) dans le système quaternaire U-O-Zr-Fe a été proposé par [46] et adapté par [47] pour son implémentation dans le code ASTEC.

Ce modèle fait l'hypothèse de l'équilibre thermochimique à l'interface entre la phase oxyde et la phase métallique supérieure et inférieure. Les compositions relatives à cet équilibre thermochimique sont obtenues à partir du modèle de *Salay et Fichot*.

Dans ce modèle cinétique de stratification, deux étapes ont été identifiées. La première étape est une phase dite « d'ablation ». La diffusion du fer dans la phase oxyde et celle de l'uranium et du zirconium dans la phase métallique supérieure conduit alors à une séparation oxyde-métal dans cette couche oxyde. La phase métallique ainsi formée est à la composition de l'équilibre thermochimique. La seconde étape identifiée est « l'oxydation » de la phase métallique supérieure qui intervient dès lors que la phase oxyde atteint un degré d'oxydation maximal. Les auteurs décrivent ce processus « d'oxydation » comme le transfert d'oxygène depuis la phase oxyde vers la phase métallique et le transfert de (U,Zr) vers la phase oxyde, la phase métallique inférieure devenant alors plus légère que la phase oxyde. Ces deux mécanismes sont illustrés à la Figure 1.12.



(A) Processus « d'ablation » (B) Processus « d'oxydation »

FIGURE 1.12 : Les étapes « d'ablation » et « d'oxydation » (adaptation de [47])

Le modèle cinétique de stratification décrit l'évolution de la quantité de matière (en moles) de l'élément i (U, Zr, Fe et O) dans chacune des phases l (oxyde, métallique supérieure et inférieure). Les équations d'évolution font intervenir les paramètres cinétiques relatifs au processus « d'ablation » et « d'oxydation » qui sont déterminés à partir d'une analogie entre le transfert de chaleur et le transfert de masse. En particulier, ces coefficients sont reliés au coefficient de diffusion des éléments et à la longueur sur laquelle se produit l'interaction entre la phase oxyde et la phase métallique (supérieure et inférieure).

Les deux modèles que nous avons présentés ci-dessus affichent certaines limitations de part les hypothèses qui y sont faites.

Le modèle décrit dans [33] fait notamment l'hypothèse que les transferts de masse entre la phase oxyde et les phases métalliques supérieure et inférieure sont corrélés à celui de l'uranium.

Dans [46, 47] les auteurs décrivent l'évolution de la stratification du bain en deux étapes :

- une première étape « d'ablation » relative au transfert (U,Zr) depuis la phase oxyde vers la phase métallique ;
- une seconde étape « d'oxydation » où se produit le transfert d'oxygène vers la phase métallique et le transfert de (U,Zr) vers l'oxyde.

Pour ces deux modèles, le mécanisme de remontée de la phase métallique lourde associée au transfert à l'interface oxyde-métal lourd n'a pu être validé par des observations expérimentales directes.

Ces modélisations sont macroscopiques et présentent plutôt un caractère phénoménologique de la diffusion multi-composants, et ne peuvent être envisagées pour la prise en compte de la cinétique de stratification dans une approche CFD.

Dans le cadre du développement du code CONV [30], pour le calcul de l'essai MASCA-RCW, un modèle de diffusion est couplé aux équations de *Navier-Stokes* de conservation de l'énergie et du bilan de la quantité de mouvement. Ce modèle reste toutefois très partiel puisque seul la concentration en uranium est déterminée. Ce modèle ne permet pas d'obtenir les compositions des phases oxyde et métallique à l'équilibre thermo-chimique car il ne fait pas intervenir de couplage avec les bases thermodynamiques.

Le travail présenté ici vise donc à proposer un modèle cinétique de stratification des phases oxyde et métalliques qui s'inscrit dans une modélisation « fine » du bain de corium basée sur une approche CFD de son comportement thermo-hydraulique.