

# Simulation numérique des écoulements et des transferts de masse dans un procédé inductif d'extraction réductrice liquide-liquide

C. COURTESSOLE<sup>a</sup>, J. ETAY<sup>a</sup>

a. CNRS-SIMaP-EPM, 1340 rue de la piscine, 38402 SAINT-MARTIN D'HÈRES

## Résumé :

*L'extraction réductrice liquide-liquide est une des voies pyrochimiques les plus prometteuses pour assurer le traitement du combustible nucléaire usé consistant notamment à séparer les actinides des produits de fission. L'extraction des espèces est assurée par une réaction d'oxydo-réduction à l'interface entre un sel fondu dans lequel les espèces à extraire sont en solution et un métal liquide. Dans ce type de procédé, le transfert de masse est fortement dépendant du brassage des phases et de l'interface elle-même. Afin d'étudier l'influence du brassage sur le transfert de masse, une installation expérimentale utilisant l'induction électromagnétique a été construite. Cet article vise à modéliser les écoulements et le transfert de masse de notre installation.*

## Abstract :

*Reductive liquid-liquid extraction is one of the most promising ways to reprocess spent nuclear fuel and especially to separate actinides and fission products. The extraction is ensured by an oxydo-reductive reaction that occurs at the interface between a molten salt that contains the elements to be extracted and a liquid metal. In that kind of process, the associated mass transfer is strongly dependent of the stirring of both phases as well as of the interface itself. In order to study the impact of stirring on mass transfer, an experimental facility based on electromagnetic induction has been built. This paper aims to simulate flow and mass transfer in this facility.*

**Mots clefs :** extraction réductrice liquide-liquide, transfert de masse, brassage électromagnétique

## 1 Introduction

L'extraction réductrice liquide-liquide est une des voies pyrochimiques les plus prometteuses pour assurer le traitement du combustible nucléaire puisqu'elle permet de séparer les produits de fission (notamment constitués d'éléments radioactifs à vie longue tels les lanthanides) des éléments fissiles ou fertiles comme les actinides. Cette technique, déjà employée en métallurgie lors du traitement des poches d'acier, permet de transférer des éléments entre deux phases immiscibles (généralement un métal liquide et un sel ou un oxyde fondu) au moyen d'une réaction d'oxydo-réduction localisée à l'interface entre les deux fluides. Les transferts sont caractérisés par le rendement de l'extraction (dépendant de la thermodynamique) et la cinétique d'extraction qui peut être limitée par la réaction chimique ou le transfert de masse des espèces réactives au voisinage de l'interface. Dans ce type de procédé, la réaction chimique est rarement l'étape cinétiquement limitante ; la cinétique du transfert de masse est, le plus souvent, dépendante de l'agitation des deux phases et de l'interface elle-même. Un brassage adéquat peut ainsi permettre de diminuer les résistances au transfert et donc d'augmenter significativement la cinétique en :

- i) promouvant le renouvellement des espèces au voisinage de l'interface par leur advection du cœur de chaque fluide vers l'interface,
- ii) diminuant l'épaisseur des sous-couches de diffusion limitant le transfert de masse par la turbulence des écoulements,
- iii) renouvelant l'interface elle-même.

Les études antérieures ont notamment mis en évidence le rôle prépondérant de l'agitation interfaciale sur l'accélération des transferts de masse entre deux fluides immiscibles [1]. Ceci a été mis en œuvre dans un procédé électromagnétique basé sur l'utilisation d'un champ magnétique bi-fréquence [2]. Par ailleurs, l'utilisation de l'induction électromagnétique permet à la fois de travailler à haute température puisque le chauffage est engendré par le développement de courants induits dans les fluides tout en assurant le brassage du cœur des bains sans contact matériel par les forces électromagnétiques.

La description numérique d'un tel réacteur expérimental est cependant difficile puisqu'elle requiert la description des différents phénomènes fortement couplés (électromagnétisme, dynamique des fluides, thermique, déformation de l'interface). Elle s'avère néanmoins nécessaire à l'optimisation de ce type de procédé.

## 2 Réacteur modélisé

L'installation expérimentale a été initialement décrite par Perrier et al. [3]. Elle a été amendée depuis. Elle est constituée d'une enceinte boîte-à-gants dans laquelle des passages ont été aménagés pour permettre l'alimentation électrique de l'inducteur ainsi que la visualisation et l'échantillonnage de métal et de sel au cours des essais. Le réacteur est constitué d'un inducteur de six spires placé autour d'un creuset en graphite de 10 cm de diamètre contenant le métal liquide et le sel fondu (figure 1). Un creuset froid est intercalé entre l'inducteur et le creuset en graphite ; il permet d'absorber une partie des rayonnements émis et sécurise l'installation en cas de rupture du creuset. Le dispositif permet de fondre séparément les deux fluides avant de les mettre en contact. Des prélèvements sont ensuite réalisés dans chacune des phases afin de suivre l'évolution de la concentration de l'espèce à extraire au cours du temps.

À partir de considérations thermodynamiques, le fluorure de lithium a été retenu comme solvant salin, l'antimoine comme solvant métallique. Un réducteur (lithium) est également en solution dans le métal pour permettre le transfert des éléments à extraire. L'extraction de plusieurs lanthanides (cérium, néodyme et samarium) initialement sous forme fluorée dans le sel ( $\text{CeF}_3$ ,  $\text{NdF}_3$  et  $\text{SmF}_3$ ) a été étudiée dans ce dispositif. La température de travail se situe autour de 950 °C. Les volumes de solvant métallique et salin mis en jeu sont respectivement de l'ordre de 250 cm<sup>3</sup> et 125 cm<sup>3</sup> ce qui correspond à 1600 g d'antimoine et 200 g de fluorure de lithium.

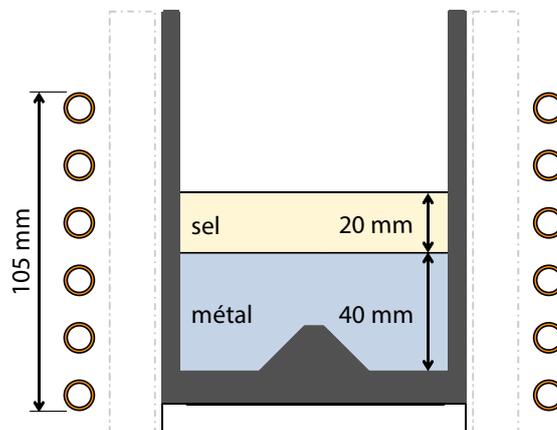


FIG. 1 – Schéma du réacteur modélisé.

## 3 Ordres de grandeur

Les propriétés physiques des différents matériaux utilisés dans l'expérience sont résumées dans la table 1. L'intensité efficace et la fréquence du courant circulant dans l'inducteur sont respectivement de 390 A et 14 kHz. Ce courant génère un champ magnétique dont l'intensité a été mesurée expérimentalement en l'absence de matériau dans le graphite et dont l'ordre de grandeur est de 20 mT dans les conditions expérimentales.

Dans un four à induction, ce champ magnétique donne naissance à des forces électromagnétiques qui peuvent être décomposées en une partie rotationnelle, qui engendre un brassage turbulent du fluide, et en une partie irrotationnelle, encore appelée pression électromagnétique, qui cause une déformation de l'interface.

La hauteur caractéristique de la déformation de l'interface peut être déduite de l'équilibre entre la pression électromagnétique ( $B_0^2/2\mu_0$ ) et la pression hydrostatique ( $(\rho_m - \rho_s)gh_m$ ). Dans notre réacteur, l'ordre de grandeur de la hauteur du dôme est de 2 mm.

S'il ne fait aucun doute que l'écoulement dans le métal est engendré par l'action des forces électromagnétiques, la situation est toutefois plus complexe dans le sel dont la conductivité électrique est très faible. Très peu de forces électromagnétiques se développent dans ce milieu et l'écoulement dans cette phase est vraisemblablement dû à l'entraînement par la couche de métal et à la thermo-convection. À partir de ce constat, différents ordres de grandeurs ont été déduits (table 2).

	Conductivité électrique $\sigma$ [ $\Omega^{-1} \cdot m^{-1}$ ]	Densité $\rho$ [ $kg \cdot m^{-3}$ ]	Viscosité $\mu$ [Pa.s]	Tension de surface $\gamma$ [ $N \cdot m^{-1}$ ]	Coefficient de dilatation $\beta$ [ $K^{-1}$ ]	Conductivité thermique $\lambda$ [ $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ ]	Chaleur spécifique $c_p$ [ $J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$ ]
Métal	$8.2 \cdot 10^5$	6270	$0.93 \cdot 10^{-3}$	0.314	-	18.7	255
Sel	900	1760	$1.57 \cdot 10^{-3}$	0.225	$2.8 \cdot 10^{-4}$	1.6	2495
Graphite	$1.1 \cdot 10^5$	1950	-	-	-	150	710

TAB. 1 – Propriétés physiques à 950 °C.

	Métal liquide		Sel fondu	
Paramètre d'écran	$R\omega_m \approx \mu_0 \sigma_m 2\pi fa^2$	185	$R\omega_s \approx \mu_0 \sigma_s 2\pi fa^2$	0.2
Vitesse caractéristique	$U_m \approx 0.2 \frac{B_0}{\sqrt{\mu_0 \rho}}$	4.5 cm.s <sup>-1</sup>	$U_{s,ss} \approx 0.4U_m$	1.8 m.s <sup>-1</sup>
			$U_{s,b} \approx \sqrt{\beta \Delta T g a}$	3.5 m.s <sup>-1</sup>
Nombre de Reynolds	$Re_m = \frac{\rho_m U_m a}{\mu_m}$	13600	$Re_s = \frac{\rho_s U_s a}{\mu_s}$	2600

TAB. 2 – Ordres de grandeur attachés à la géométrie étudiée.

## 4 Procédure de calcul

### 4.1 Stratégie adoptée

Pour calculer les écoulements dans chacune des phases, quatre problèmes fortement couplés doivent être résolus : électromagnétisme, hydrodynamique, thermique et déformation de l'interface. Les couplages intervenant entre les différentes physiques sont représentés sur la figure 2. Pour simplifier le problème, plusieurs hypothèses ont été réalisées :

- i) Le modèle est 2D-axisymétrique.
- ii) Certains couplages peuvent être négligés comme l'effet de l'écoulement sur l'induction ou la variation des propriétés physiques avec la température; les propriétés physiques étant choisies à la température du bain à savoir 950°C.
- iii) Enfin, le problème a été traité en plusieurs étapes (figure 3). La forme statique de l'interface a été calculée dans un premier temps en prenant uniquement en compte l'effet de la pression électromagnétique avant d'être considérée comme fixe dans un second temps pour déterminer les écoulements turbulents dans les deux fluides. Une fois les écoulements obtenus, le transfert de masse peut être calculé en post-traitement.

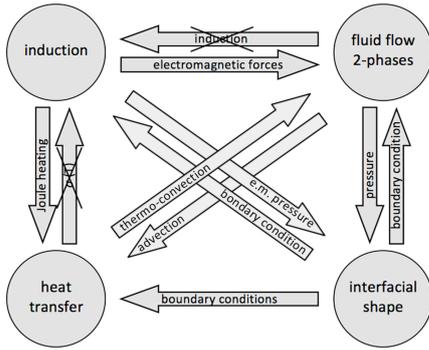


FIG. 2 – Couplages entre les différents physiques.

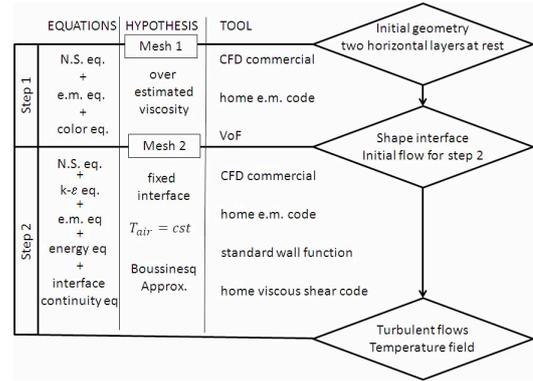


FIG. 3 – Diagramme de la procédure de calcul.

## 4.2 Modèles utilisés

La simulation numérique a été réalisée à l’aide du code commercial de CFD ANSYS Fluent auquel deux routines ont été adjointes : une première, développée par Delannoy, permettant de calculer les forces électromagnétiques et la puissance joule dans les milieux électroconducteurs [4] et une seconde permettant de réaliser le couplage entre les deux fluides immiscibles.

### 4.2.1 Problème électromagnétique

Une formulation potentiel-harmonique  $\mathbf{A}$ - $V$  a été utilisée pour résoudre le problème électromagnétique. Elle a été implémentée par Delannoy et permet, à partir de la fréquence et de l’intensité du courant inducteur  $j_e$  de déduire les forces électromagnétiques. Pour un problème 2D-axisymétrique, le potentiel magnétique  $\mathbf{A}$  est uniquement azimutal,  $\mathbf{A} = (0, A_\theta, 0)$ , et est solution de l’équation complexe aux dérivées partielles suivante :

$$\Delta \hat{A}_\theta - i\mu_0 \sigma \omega \hat{A}_\theta + j_e = 0 \quad \text{avec} \quad A_\theta = \text{Re}(\hat{A}_\theta(r, z)e^{i\omega t}) \quad \text{et} \quad \hat{A}_\theta = A_\theta^r + iA_\theta^i \quad (1)$$

La force électromagnétique  $\mathbf{f}_{em}$  et la puissance joule dissipée  $\chi$  sont déduites du potentiel magnétique.

$$\mathbf{f}_{em} = \frac{1}{2} \text{Re}(\hat{\mathbf{j}} \times \hat{\mathbf{B}}^*) = \frac{\sigma \omega}{2} \left( \frac{A_\theta^i}{r} \frac{\partial r A_\theta^r}{\partial r} - \frac{A_\theta^r}{r} \frac{\partial r A_\theta^i}{\partial r} \right) \mathbf{e}_r + \frac{\sigma \omega}{2} \left( A_\theta^i \frac{\partial A_\theta^r}{\partial z} - A_\theta^r \frac{\partial A_\theta^i}{\partial z} \right) \mathbf{e}_z \quad (2)$$

$$\chi = \frac{1}{2} \text{Re} \left( \frac{\hat{\mathbf{j}} \cdot \hat{\mathbf{j}}^*}{\sigma} \right) = \frac{\sigma \omega^2}{2} \left[ (A_\theta^r)^2 + (A_\theta^i)^2 \right] \quad (3)$$

### 4.2.2 Forme de l’interface sel-métal

La forme statique de l’interface sel-métal a été calculée dans un premier temps à l’aide de la méthode Volume of Fluid (VOF) et d’un schéma de reconstruction de l’interface linéaire par morceaux. Cette méthode permet de résoudre une seule équation de quantité de mouvement pour les deux phases distinctes.

Pour éviter que des oscillations apparaissent lorsque l’interface commence à dévier de sa position initiale, et ainsi diminuer les temps de calculs, les viscosités ont été multipliées par 1000 et le calcul a été réalisé en laminaire. Cette méthode a déjà été testée avec succès par Delannoy pour déterminer la forme de la surface libre d’un bain d’étain dans un four à induction [5].

### 4.2.3 Couplage entre les deux écoulements

Une fois la forme de l’interface calculée, un nouveau maillage a été reconstruit à partir de la forme de l’interface calculée à l’étape précédente. Les écoulements stationnaires et le champ de température sont calculés sur cette nouvelle géométrie à l’aide d’un modèle RNG k- $\epsilon$ . Bien que les écoulements dans un four à induction ne soient pas réellement axisymétriques mais présentent des variations basses fréquences [6], Taberlet et Baake ont montré que les modèles RANS produisent néanmoins de bons résultats même s’il ne permettent pas de décrire ces oscillations [7, 8]. Le couplage entre les deux écoulements a été réalisé en implémentant les conditions de continuité des vitesses et du cisaillement à l’interface.

$$u_{t, \text{int}} = \mathbf{u}_{m, \text{int}} \cdot \mathbf{t} = \mathbf{u}_{s, \text{int}} \cdot \mathbf{t} \quad \text{et} \quad \tau_{\text{int}} = \mu_m \frac{\partial u_{t, m}}{\partial n} = \mu_s \frac{\partial u_{t, s}}{\partial n} \quad (4)$$

## 5 Résultats

### 5.1 Forme de l'interface

La forme de l'interface calculée à la première étape est représentée sur la figure 4. L'interface se stabilise en un peu moins de 2 s (figure 5). La hauteur du dôme liée à la pression électromagnétique obtenue, prise entre la position initiale de l'interface et le centre de l'interface, est de 2 mm, en accord avec l'ordre de grandeur donné à la section 2.

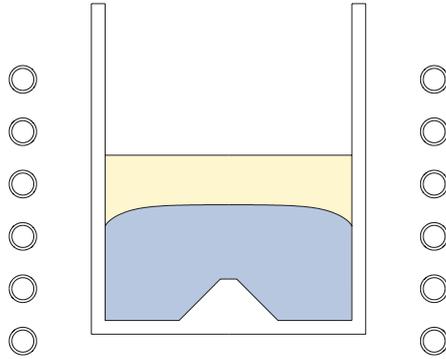


FIG. 4 – Forme de l'interface obtenue après 10 s de calcul.

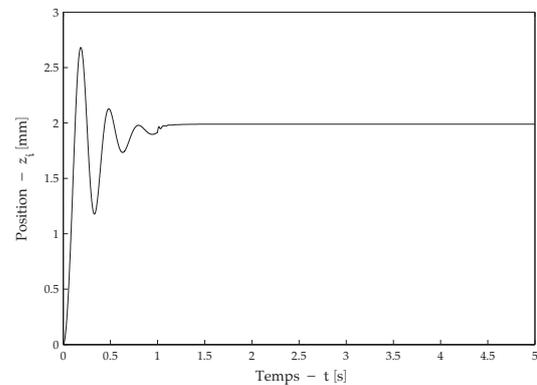


FIG. 5 – Évolution de la position du centre de l'interface.

### 5.2 Champs de température et de vitesse

La figure 5 représente la densité de puissance joule dissipée dans le métal et le champ de température obtenus dans les deux fluides. Les pertes par effet joule ne sont pas représentées dans le creuset en graphite alors qu'elles représentent 83 % de la puissance totale dissipée qui s'élève à 5.1 kW. Le reste de la puissance joule est principalement dissipé dans le métal ; la conductivité électrique du sel étant trop faible pour que des courants induits s'y développent. Les températures obtenues sont en accord avec celles mesurées lors des expériences puisque la température moyenne du métal liquide est de 955 °C alors que celle du sel atteint 953 °C. Si le champ de températures dans l'antimoine est quasiment homogène, on note toutefois un écart de température d'environ 40 °C dans le sel.

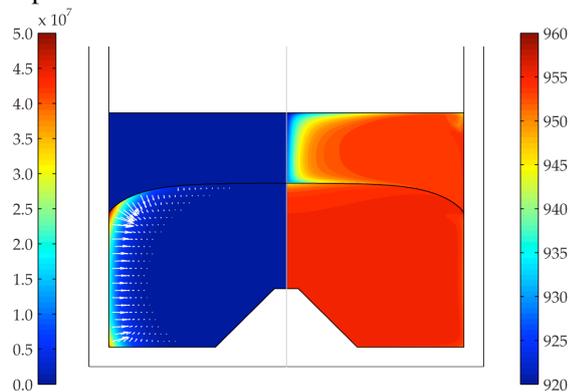


FIG. 5 – Densité de puissance joule dissipée  $\chi$  en  $\text{W}\cdot\text{m}^{-3}$  (gauche) et champ de température  $T$  en °C (droite) calculés dans les deux fluides ; les flèches blanches représentent la densité de force électromagnétique.

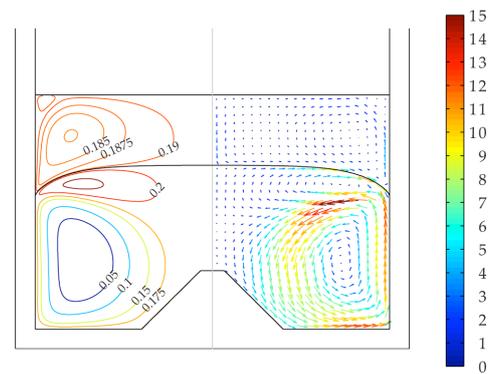


FIG. 6 – Lignes de courant (gauche) et champ de vitesse calculés dans les deux fluides ; les vitesses sont données en  $\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ .

Les forces électromagnétiques engendrent un écoulement constitué de deux vortex contra-rotatifs dans la phase métallique (figure 6). Le plus petit des vortex ramène le métal le long de l'interface du centre vers les parois du creuset. Dans la phase saline, une seule recirculation est présente. Les vitesses moyennes obtenues dans le métal liquide et le sel fondu sont respectivement de  $6.6 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$  et de  $1.5 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ . Ces valeurs sont en accord avec les ordres de grandeur estimés dans la table 2 et confirment que l'écoulement est turbulent dans les deux phases. Un calcul réalisé sans prendre en compte la force de flottabilité dans le sel confirme

que l'écoulement dans cette phase est à la fois dû à l'entraînement du métal liquide mais également à la convection naturelle puisque la vitesse moyenne est alors de  $1,3 \text{ cm.s}^{-1}$ .

### 5.3 Transfert de masse

À partir des champs de vitesse obtenus, le transfert de masse d'un lanthanide (cérium) a été calculé. En supposant que l'étape cinétiquement limitante est la diffusion des espèces dans les sous-couches de diffusion au voisinage de l'interface, les fractions massiques correspondant à l'équilibre obtenu expérimentalement ont été imposées à l'interface et les coefficients de diffusion des différentes espèces ont été évalués à l'aide du modèle de Stokes-Einstein.

Les résultats sont visibles sur la figure 7. L'évolution de la fraction massique de cérium calculée est étonnamment proche des valeurs mesurées expérimentalement aux vues des hypothèses de calcul réalisées ; la constante de transfert de masse calculée est de  $2,81.10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$  alors que la valeur mesurée vaut  $2,89.10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$ .

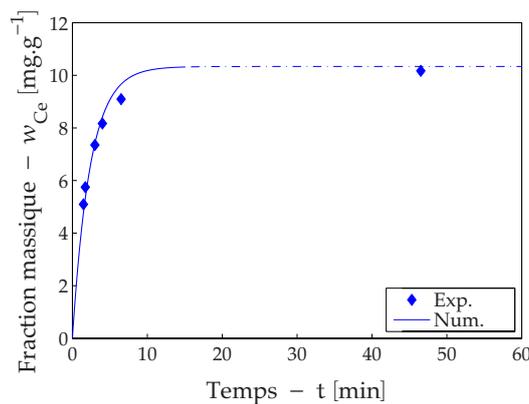


FIG. 7 – Comparaison de l'évolution des fractions massiques de cérium mesurées expérimentalement et calculées dans le métal.

## 6 Conclusion

La simulation numérique du réacteur expérimental a été réalisée en prenant en compte les différents couplages intervenant entre l'électromagnétisme, la thermique, les écoulements et la déformation de l'interface. Malgré les hypothèses simplificatrices adoptées, les résultats numériques sont en accord avec les ordres de grandeur attendus ainsi qu'avec les valeurs mesurées expérimentalement (température, constante de transfert de masse).

## Références

- [1] Fautrelle Y., Etay J., Perrier D., Piccinato R. and Boen R., CEA Patent n° EN 02-02-07 262.
- [2] Lemort F., Boen R., Allibert M., Perrier D., Fautrelle Y. and Etay J., Kinetics of actinides-lanthanides separation: mass transfer between molten fluorides and liquid metal at high temperature, *J. Nucl. Mat.*, 336, 163-172, 2005.
- [3] Perrier D., Fautrelle Y., Etay J., Lemort F. and Boen R., Mass transfer control between a molten salt and a liquid metal using a two frequency magnetic field, *Proceedings of the 5<sup>th</sup> International PAMIR Conference*, Ramatuelle, France, II-29, 2002.
- [4] Delannoy Y., Pelletier D., Etay J and Fautrelle Y., Stirring and mass transfer in a 1-phase induction system, *Proceedings of the 5<sup>th</sup> International PAMIR Conference*, Ramatuelle, France, II-29, 2002.
- [5] Delannoy Y. and Garnier C., Free surface shape in induction furnace: influence of the stirring on the mean dome height, *Proceedings of the 5<sup>th</sup> International Conference on Electromagnetic Processing of Materials (EPM 2006)*, Sendai, Japan, 2006.
- [6] E. Baake, B. Nacke, A. Umbrashko, A. Jakovics, Turbulence flow dynamics, heat transfer and mass exchange in the melt induction furnace, *COMPEL*, 22, 39-47, 2003.
- [7] E. Taberlet, Y. Fautrelle, Turbulent stirring in an experimental induction furnace, *J. Fluid Mech.*, 159, 409-431, 1985.
- [8] E. Baake, A. Mühlbauer, A. Jakowitsch, W. Andree, Extension of the k-e model for the numerical simulation of the melt flow in induction crucible furnace, *Met. Mat. Trans. B*, 26, 529-536, 1995.