

Contribution des essais en matériaux prototypiques sur la plate-forme PLINIUS à l'étude des accidents graves de réacteurs nucléaires

Christophe Journeau

► To cite this version:

Christophe Journeau. Contribution des essais en matériaux prototypiques sur la plate-forme PLINIUS à l'étude des accidents graves de réacteurs nucléaires. Sciences de l'ingénieur [physics]. Université d'Orléans, 2008. <tel-00343657>

HAL Id: tel-00343657 https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00343657

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. CEA-R-6189

2008



ISSN 0429 - 3460

COMMISSARIAT À L'ÉNERGIE ATOMIQUE

CONTRIBUTION DES ESSAIS EN MATÉRIAUX PROTOTYPIQUES SUR LA PLATE-FORME **PLINIUS** À L'ÉTUDE DES ACCIDENTS GRAVES DE RÉACTEURS NUCLÉAIRES

par Christophe JOURNEAU

CEA CADARACHE DIRECTION DE L'ÉNERGIE NUCLÉAIRE DÉPARTEMENT DE TECHNOLOGIE NUCLÉAIRE SERVICE DE TECHNOLOGIES DES RÉACTEURS INDUSTRIELS LABORATOIRE D'ESSAIS POUR LA MAÎTRISE

LABORATOIRE D'ESSAIS POUR LA MAITRISE DES ACCIDENTS GRAVES



RAPPORT

CEA-R-6189

DIRECTION DES SYSTÈMES D'INFORMATION

CEA / SACLAY 91191 GIF-SUR-YVETTE CEDEX FRANCE

- Rapport CEA-R-6189 -

CEA Cadarache Direction de L'Énergie Nucléaire Département de Technologie Nucléaire Service de Technologies des Réacteurs Industriels Laboratoire d'Essais pour la Maîtrise des Accidents Graves

CONTRIBUTION DES ESSAIS EN MATÉRIAUX PROTOTYPIQUES SUR LA PLATE-FORME **PLINIUS** A L'ÉTUDE DES ACCIDENTS GRAVES DE RÉACTEURS NUCLÉAIRES

par

Christophe JOURNEAU

- Juin 2008 -

RAPPORT CEA-R-6189 – C. JOURNEAU

«CONTRIBUTION DES ESSAIS EN MATERIAUX PROTOTYPIQUES SUR LA PLATE-FORME PLINIUS A L'ETUDE DES ACCIDENTS GRAVES DE REACTEURS NUCLEAIRES»

Résumé - La plate-forme expérimentale PLINIUS du CEA Cadarache est dédiée à l'étude expérimentale des accidents graves de réacteurs nucléaires en réalisant des essais entre 2000 et 3500 K avec du corium prototypique. Le corium est le mélange issu d'une hypothétique fusion du cœur et de son mélange avec les matériaux de structure. Le corium prototypique a la même composition chimique que le corium envisagé pour un scénario d'accident grave mais une composition isotopique différente (utilisation d'uranium appauvri,...). Des programmes de recherches et des campagnes d'essais ont eu pour thème les propriétés physiques du corium, le comportement des produits de fission, l'étalement du corium, sa solidification et son interaction avec le béton, ainsi que sa refroidissabilité. Ils ont servi de cadre a la formation par la recherche de nombreux étudiants. Ces travaux ont été réalisés dans le cadre de collaborations nationales, européennes et internationales.

2008 – Commissariat à l'Énergie Atomique – France

RAPPORT CEA-R-6189 – C. JOURNEAU

«CONTRIBUTION OF PROTOTYPIC MATERIAL TESTS ON THE PLINIUS PLATFORM TO THE STUDY OF NUCLEAR REACTOR SEVERE ACCIDENTS.»

Abstract - The PLINIUS experimental platform at CEA Cadarache is dedicated to the experimental study of nuclear reactor severe accidents thanks to experiments between 2000 and 3500 K with prototypic corium. Corium is the mixture that would be formed by an hypothetical core melting and its mixing with structural materials. Prototypical corium has the same chemical composition as the corium corresponding to a given accident scenario but has a different isotopic composition (use of depleted uranium, ...). Research programs and test series have been performed to study corium thermophysical properties, fission product behaviour, corium spreading, solidification and interaction with concrete as well as its coolability. It was the frame of research training of many students and was realized within national, European and international collaborations.

2008 – Commissariat à l'Énergie Atomique – France



MEMOIRE PRESENTE A L'UNIVERSITE D'ORLEANS POUR OBTENIR L'HABILITATION A DIRIGER LES RECHERCHES

Discipline :

Mécanique-Energétique

PAR

JOURNEAU Christophe

Ingénieur des Arts et Manufactures, Docteur de l'Université d'Orléans Expert-Sénior au Commissariat à l'Energie Atomique

Titre:

Contribution des essais en materiaux prototypiques sur la plate-forme PLINIUS a l'etude des accidents graves de reacteurs nucleaires

Soutenu le 15 janvier 2008

MEMBRES DU JURY :

(Fonction/Etablissement)

| G. DUCROS | Directeur de Recherches, CEA Cadarache | | |
|---|--|--|--|
| Р. ЕСНЕБИТ | Directeur de Recherches, CNRS-CEMHTI Orléans | | |
| G. FLAMANT | Directeur de Recherches, CNRS-PROMES, Odeillo | | |
| M. GIOT* | Professeur émérite, Université Catholique de Louvain | | |
| J. POIRIER* | Professeur, Université d'Orléans | | |
| G. YADIGAROGLU* Professeur émérite, Ecole Polytechnique Fédérale, | | | |
| | * Rapporteurs | | |

Soyez sur vos gardes, veillez, car vous ne savez pas quand cet instant surviendra.

Mc 13 :33

A ma femme Anne, A mes enfants Camille, Guilhem et Antonin, qui m'ont soutenu de leur amour et de leur affection.

> Ce mémoire est aussi dédié aux victimes de Tchernobyl et à ceux qui se sont consacrés à étudier le corium qui s'est écoulé sous ce réacteur en 1986.

<u>Remerciements</u>

Je voudrais tout d'abord remercier toute la communauté des expérimentateurs en corium prototypique, de Kurchatov au Kazakhstan à Argonne, en passant par Podolsk, Moscou, Sosnovy Bor, Budapest, Řež, Erlangen, Karlsruhe, Cadarache, Ispra, Winfrith, Chalk River, Sandia, Oak Ridge et Taejon, et plus généralement les expérimentateurs à haute température. Sans eux, nous aurions dû tout inventer et la plate-forme PLINIUS n'aurait pas pu fonctionner comme elle l'a fait. Car les hautes températures, couplées à l'utilisation de matières nucléaires, créent de nombreux défis technologiques que les uns ou les autres avons réussi à surmonter pour arriver où nous en sommes aujourd'hui.

Localement, c'est bien entendu tous les ingénieurs, chercheurs, techniciens, étudiants, visiteurs scientifiques qui ont travaillé sur la plate-forme PLINIUS, depuis l'époque héroïque du projet VULCANO (Jean-Claude Bouchter, Gérard Cognet, André Roubaud, Jacques Marseille, Claude Jégou, auxquels se sont rapidement joints François Sudreau, Guy Laffont, José Monerris, Jacques Mattéi, Pascal Fouquart et bien d'autres) jusqu'à aujourd'hui que je dois remercier, car les essais en matériaux prototypiques ne peuvent pas être l'affaire d'un chercheur isolé mais sont obligatoirement une aventure collective. Ceux qui n'ont jamais passé de longues heures à la chapelle ne peuvent pas imaginer l'intensité de l'attente d'une coulée de corium et l'humilité qu'apporte la probabilité jamais négligeable d'échec à ces hautes températures. Nos soutiens, à la Direction d'Objectif, à la Commission Européenne, chez nos partenaires EDF, IRSN et AREVA ont eu aussi un rôle important dans cette aventure, ne serait-ce que pour leur constance à soutenir des recherches dont le but ardemment espéré est qu'elles ne servent jamais, ou au plus 10⁻⁵ fois par réacteur et par an, même s'il convient néanmoins de se préparer et d'étudier ces risques très peu probables, afin de garantir un niveau de sûreté acceptable pour les réacteurs nucléaires. Hors de la sphère du nucléaire, les chercheurs engagés dans la thématique des hautes températures et en particulier ceux qui ont formé le groupe Hautes Températures de la Société Française de Thermique forment une autre communauté de recherche partageant des problématiques communes au sein de laquelle des échanges très fructueux ont souvent eu lieu.

Je voudrais aussi remercier tous les étudiants, apprentis, doctorants que j'ai encadrés au cours de mes années au CERDAN puis au CEA, ce sont eux qui m'ont permis en pratique d'apprendre à diriger des recherches. La formation par la recherche n'est vraiment pas à sens unique !

Un grand merci encore à Patrick Echegut quim'a accompagné dans ma démarche d'habilitation et dans la thèse de doctorat qui l'a précédée, à Michel Giot, Georges Yadigaroglou et Jacques Poirier pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ce mémoire. Et finalement merci à deux grands expérimentateurs à Hautes Températures, Gilles Flamant du laboratoire PROMES et Gérard Ducros du CEA Cadarache qui ont participé à mon jury.

TABLE DES MATIERES

| <u>CHAP</u> | PITRE 1 | INTRODUCTION- CONTEXTE DE L'ETUDE |
|-------------|------------------|--|
| | | |
| 1.1 | LA SURET | E DES REACTEURS - LA DEFENSE EN PROFONDEUR |
| 1.2 | LES ACCIE | DENTS GRAVES |
| 1.3 | LES DISPO | DSITIFS DE RECUPERATION DU CORIUM14 |
| 1.4 | TRAVAUX | DE RECHERCHE ET PLAN DU MEMOIRE |
| СНАР | PITRF 2 | FTAT DE L'ART 18 |
| | | |
| 2.1 | Scenario | s D'ACCIDENTS GRAVES |
| 2.2 | Experime | NTATIONS EN PILE |
| 2.3 | Experime | NTATIONS EN MATERIAUX IRRADIES |
| 2.4 | Experime | INTATIONS AVEC MATERIAUX PROTOTYPIQUES |
| СНАР | PITRE 3 | LA PLATE-FORME PLINIUS |
| | <u> </u> | |
| 3.1 | L'INSTALI | LATION VULCANO |
| 3.2 | L'INSTALI | LATION COLIMA |
| 3.3 | L'INSTALI | LATION VITI |
| | | |
| <u>CHAP</u> | PITRE 4 | PROPRIETES THERMOPHYSIQUES DU CORIUM |
| | | 94 |
| 4.1 | | 01 00 00 00 00 00 00 00 00 00 00 00 00 0 |
| 4.2 | | |
| CHAP | PITRE 5 | RELACHEMENT ET TRANSPORT DES AEROSOLS |
| 5 1 | CONTEXT | 09 |
| 5 2 | RELACHE | ۲۵۵ میں |
| 53 | | RT DES ÅEROSOLS AU-DESSUS D'UN DAIN DE CONIOM |
| 5.4 | | TION ACOUSTIONE DE FUITES DANS L'ESPACE ENTRE ENCEINTES |
| | 2007121071 | |
| CHAP | PITRE 6 | L'ETALEMENT DU CORIUM 113 |
| | | |
| 6.1 | ESSAIS EN | I MATERIAUX PROTOTYPIQUES |
| 6.2 | VALIDATI | ON DES MODELES ET CODES D'ETALEMENT |
| 0.3 | APPLICAT | IONS REACTEURS |
| СНАР | PITRE 7 | REGIME DE SOLIDIFICATION DU CORIUM |
| | | |
| 7.1 | INTRODUC | CTION |
| 7.2 | CRITERE I | DE TILLER ET AL. ET EXTENSION AUX SYSTEMES MULTICOMPOSANTS D'OXYDES FONDUS |
| 7.3 | ESSAIS DE | SOLIDIFICATION CONTROLEE - CAMPAGNES URAN ET VP-U |
| 7.4 | APPLICAT | ION AUX SCENARIOS D'ACCIDENTS GRAVES HORS CUVE |
| | | |
| CHAP | <u>PITRE 8</u> | L'INTERACTION CORIUM-BETON154 |
| 0 4 | - | |
| ช.1 งา | I ENUE DU | |
| 0.2 | LES ESSAI | 5 AVEC UN CORIUM OXTDE |

| 8.3 8.4 | 8.3 Essai avec un corium oxyde-metal 8.4 Modelisation | | 164 168 |
|--------------------------|---|---|--------------------------|
| CHAF | PITRE 9 | REFROIDISSEMENT DU CORIUM - CONCEPT COMET | <u>182</u> |
| 9.1 9.2 9.3 9.4 | LE CONC DISPOSITI L'ESSAI V SYNTHES | EPT DE RECUPERATEUR COMET IF D'ESSAI /W-U1 E | 182 183 184 190 |
| <u>CHAF</u> | <u>PITRE 10</u> | CONCLUSIONS | <u>191</u> |
| Refer | RENCES | | 193 |

Nomenclature

| А | Position de la source | [m] ³ |
|-----------------------|---|--|
| a | Rayon | [m] |
| С | Constante | n - |
| | Matrice Interspectrale | |
| С | Concentration | [mol/m ³] |
| C ₀ | Vitesse du son | [m/s] |
| Cp | Chaleur massique | [J/(kg.K)] |
| D์ | Diamètre | [m] |
| | Coefficient de diffusion | [m ² /s] |
| d | Diamètre | [m] |
| dh | Diamètre hydraulique | [m] |
| F | Fonction de transfert | |
| | Flux de chaleur | [W/m²] |
| f | Fréquence | [Hz] |
| G | Energie de Gibbs | [J/mol] |
| | Débit volumique | $[m^3/s]$ |
| | Gradient de température | [K/m] |
| g | Accélération de la pesanteur | [9,81 m/s ²] |
| Ĥ | enthalpie | [J/kg] |
| h | Constante de Planck | [6.63.10 ⁻³⁴ N.m.s] |
| | Hauteur- épaisseur | [m] |
| | Coefficient de transfert de chaleur | [W/(m ² .K)] |
| J | Flux de matière | [mol/m ²] |
| | Fonction de Bessel | 'n |
| i | Vitesse superficielle | [m/s] |
| k | Conductivité thermique | [W/(m.K)] |
| Mi | Masse molaire de l'espèce i | [kg/mol] |
| N | Constante d'Avogadro | [6.02 10 ²³ mol ⁻¹] |
| P | Puissance | [W] |
| | Probabilité | 'n |
| D | Pente de la température de liquidus | [K.m ³ /mol] |
| ò | Energie d'activation | [J/mol] |
| a | flux de chaleur | [W/m²] |
| Ŕ | Rayon | [m] |
| | Constante des gaz parfaits | [8,31 J/(K.mol)] |
| | Vitesse de solidification | [m/s] |
| | Taux d'échauffement | [K/s] |
| R _{th} | Résistance thermique de contact | [K.m ² /W] |
| r | Coordonnée radiale | [m] |
| s | Pente de la température de liquidus par rapport au 2° composant | [K.m ³ /mol] |
| Т | Température | ΪK] |
| t | Temps | [s] |
| U | Vitesse | [m/s] |
| V | Volume molaire | [m ³ /mol] |
| | Vitesse de solidification/fusion/dissolution | [m/s] |
| х | Abscisse | [m] |
| Vi | Fraction molaire de l'espèce i | 'n |
| Z | Côte | [m] |
| | | - |

Lettres Grecques

| α | Angle | [rad] |
|----|------------------------------------|-----------------------|
| | Diffusivité thermique | [m²/s] |
| Ϋ́ | Taux de cisaillement | [s ⁻¹] |
| δ | Symbole de Kronecker | [] |
| η | Viscosité dynamique | [Pa.s] |
| Θ | Fonction d'ambiguïté | [] |
| θ | Angle | [rad] |
| | Température adimensionnée | [] |
| λ | Conductivité thermique | [W/(m.K)] |
| μ | Viscosité dynamique | [Pa.s] |
| ν | Viscosité cinématique | [m/s ²] |
| ρ | Masse volumique | [kg./m ³] |
| σ | Tension de surface | [N/m] |
| τ | Constante de temps | [s] |
| φ | Fraction volumique (de solide) | [] |
| χ | Rapport modificateurs sur oxygènes | [] |
| ω | Pulsation | [rad/s] |

Indices

| abl | ablation |
|------|------------------------------|
| В | bulle |
| с | critique |
| emp | d'empîlement maximum |
| exp | expérimental |
| gl | gaz-liquide |
| j | jet |
| Ĺ | liquidus |
| ι | liquide |
| liq | liquidus |
| m | de fusion (<i>melting</i>) |
| max | maximum |
| р | particule |
| rel | relative |
| S | solide |
| vers | versement |

Nombres adimensionnés

| Nu | Nombre de Nusselt | $Nu = \frac{q \ d}{\lambda \left(T_{bain} - T_{int}\right)}$ |
|-----|----------------------------|--|
| Oh | Nombre d'Ohnesorge | $Oh = \frac{\eta}{\left(\sigma \rho R\right)^{0.5}}$ |
| Re | Nombre de Reynolds | $\operatorname{Re} = \frac{\rho U d}{\eta}$ |
| Ra | Nombre de Rayleigh | $Ra = \frac{\alpha g C_{p} \rho^{2} d^{3} (T_{bain} - T_{int})}{\lambda \eta}$ |
| | Nombre de Rayleigh solutal | $Ra = \frac{gh_d^3 \Delta \rho}{D\mu_m}$ |
| St | Nombre de Stanton | $St = \frac{\rho_p C d_p^2 U}{9nD}$ |
| Str | Nombre de Strouhal | $Str = vD/U_j$ |
| | | |

Chapître 1 Introduction- Contexte de l'étude

1.1. LA SURETE DES REACTEURS – LA DEFENSE EN **P**ROFONDEUR

Les 443 réacteurs nucléaires en opération dans le monde (59 en France, 153 dans 27 pays de l'Union Européenne, plus 4 en construction dans 3 pays de l'Union) produisent plus de 16% de l'électricité mondiale (Omoto, 2005, AIEA, 2006) - 78,5% en France, 34% dans l'Union Européenne -, soit 7% environ de la production mondiale d'énergie primaire (Murakami, 2007). 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 (Libmann, 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. 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

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

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° niveau de défense, la maîtrise des accidents graves. Trois barrières (Figure 1-1) assurent le confinement des produits radioactifs: 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.

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 Evénements 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) - ou des barrières de confinement, ou encore 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, 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 de la gaine 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, jusqu'à 1000 MWe selon les concepteurs de l'AP1000, McLaughlin et al., 2005), 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. Le besoin d'analyser ces configurations a nécessité le lancement de programmes de recherche et développement destinés à connaître la phénoménologie des accidents grave et à disposer de codes de calcul permettant de les étudier, par exemple dans le cadre d'une évaluation probabiliste de sûreté de niveau 2 (Libmann, 2000).

Les études des accidents graves se fondent en partie sur l'étude des accidents historiques de Three Mile Island et de Tchernobyl que nous allons décrire ci-après.

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 & 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 arrêtèrent 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 relachés de façon contrôlée après l'accident. Ces rejets n'ont pas fait dépasser en 1979 les limites réglemenatires 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 d'une part mis en évidence l'importance des facteurs humains dans la sûreté des réacteurs. Elles ont d'autre part 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 séquences en cuve des 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 RMBK 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.



Figure 1-4 : Réacteur de type RMBK 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 configurationⁱⁱ 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 - conformément à la procédure de l'essai - , la puissance du réacteur divergea et fut multipliée par 100 (Libmann, 2000) avant de s'arrêter suite à la destruction partielle du combustible.

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.

ⁱⁱ Fonctionnement à une puissance inférieure à 700 MWth, avec moins de 30 barres de contrôles insérées dans le cœur.

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. 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 Ci/km²). 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 $[Mg_6Si_4O_{10}(OH)_8]$ a entraîné la fusion d'une grande partie du combustible (Pazukhin, 1994). 1370 ± 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 Figure 1-6 montre l'étendue de l'ablation du béton granitique, estimée à l'aide de forages dans le béton. On peut remarquer son caractère anisotrope, avec une ablation latérale plus importante que vers le bas. La progression du corium s'est arrêtée sans intervention extérieure au 3° niveau sous le puits du réacteur (voir par exemple Figure 1-7) 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 (moins 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 : Coupe de la salle sous le réacteur (305/2) indiquant l'ablation du béton



Figure 1-7 : Le « pied d'éléphant », un étalement de corium à Tchernobyl.

1.3. Les **D**ISPOSITIFS DE RECUPERATION DU CORIUM

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 (Figure 1-8) 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 (McLaughin 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 (Rempe et al., 2004, Figure 1-9).
- La rétention hors cuve est la solution généralement retenue pour des réacteurs de plus de 1000 MWe. Actuellement, le seul récupérateur de corium (Figure 1-10) effectivement construit est celui les réacteurs VVER-1000 construits à Tian Wan (Chine) par un consortium russe (Svetlov et al., 2003). Il s'agit d'une deuxième cuve placée sous la cuve principale, dans laquelle un matériau sacrificiel viendrait modifier les propriétés du corium afin de favoriser sa refroidissabilité. La rétention hors cuve a aussi été retenue par AREVA NP pour

l'EPR (Fischer, 2003, 2004 ; Bouteille et al. , 2005 ; Estève, 2005). Dans ce cas, l'étalement du corium sur une surface de 170 m² permet de réduire le flux de chaleur à évacuer et de garantir son refroidissement par un système passif (Figure 1-11). La phénoménologie de l'étalement du corium sera décrite plus en détail au Chapître 6.



Figure 1-8 : Schéma de principe de la récupération en cuve (d'après Theophanous et al., 1996)



Figure 1-9 : Schéma de principe du récupérateur en cuve pour l'APR1400 (Rempe et al., 2004)



Figure 1-10 : Schéma du récupérateur de corium des VVER-1000 91/99 (Sidorov et al., 2001) 1 : radier, 2 : cuve du réacteur, 3 : puits de cuve, 4 : console, 5 : arrivée d'eau
6 : évacuation d'eau, 7 : échangeur, 8 : récupérateur, 9 : protection, 10 : calorifuge 11 : canal de refroidissement par air, 12 : calorifuge, 13 : plaque inférieure.



Figure 1-11 : Vue générale du récupérateur EPR (d'après Fischer, 2003).

1.4. TRAVAUX DE RECHERCHE ET PLAN DU MEMOIRE

Ce mémoire est consacrée à l'étude expérimentale des accidents graves à l'aide d'expérimentations en corium prototypique réalisées sur la plate-forme PLINIUS au CEA Cadarache. On appelle *corium prototypique* un mélange ayant la même composition chimique que le corium envisagé pour un scénario d'accident grave, mais ayant une composition isotopique différente. En pratique, on utilise de l'uranium appauvri ou naturel à la place de l'uranium enrichi et les produits de fissions, lorsqu'ils sont présents, ont la composition isotopique naturelle.

Nous exposerons d'abord l'intérêt de l'utilisation de matériaux prototypique et présenterons un état de l'art des essais relatifs aux accidents graves en matériaux réels et en matériaux prototypiques de par le monde. Le lecteur pourra se reporter au récent rapport de synthèse IRSN-CEA-EDF (Tenaud et al., 2006) pour un état de l'art sur l'ensemble des aspects de la R&D sur les accidents graves.

Le chapitre suivant décrira les quatre installations d'essai VULCANO, COLIMA, VITI et KROTOS de la plate-forme PLINIUS. Cette infrastructure de recherche a été retenue pour deux projets européens successifs d'accès transnational. Les technologies mises au point pour effectuer des essais à hautes températures sont en fait transverses et m'ont amené à collaborer avec d'autres laboratoires travaillant à hautes températures puis à participer à la création du groupe « Hautes Températures » au sein de la Société Française de Thermique. Une des activités phares de ce groupe est l'organisation des colloques Matériaux et Fluides à Hautes Températures (MFHT).

Nous présenterons ensuite l'étude des propriétés thermophysiques du corium et en particulier de sa rhéologie, car il s'agit d'une propriété cruciale pour l'étalement et la convection dans des bains de corium. Ce chapitre reprend les principaux résultats de la thèse de Muriel Ramacciotti (1999), du Diplôme de Recherches Technologiques (DRT) de Guillaume Jeulain (2001) et du stage de MSc d'Eric L. Richardson (1999).

Ensuite, on s'attachera à l'évolution des produits de fission lors d'un accident grave dans un chapitre qui décrira la génération et le transport de produits de fission au-dessus d'un bain de corium et en particulier un essai réalisé en collaboration avec des chercheurs bulgares dans le cadre du projet européen PLINIUS (Journeau, 2006b), le transport des aérosols dans des fissures du béton, étudié dans le cadre du réseau d'excellence SARNET sur la recherche relative aux accidents graves (Miccaelli et al., 2006 ; Parozzi et al., 2005, Journeau et al., 2007) et de la localisation acoustique de fuites dans l'espace entre enceintes, moyen d'évaluation du risque de contamination de l'environnement lors d'un accident grave étudié lors de la thèse de Frédéric Thomann (1996).

Le chapitre suivant aura trait à l'étude de l'étalement du corium, solution retenue pour réduire le flux de chaleur sur le récupérateur de l'EPR (Fischer, 2004). Il s'agit de la première campagne d'essais ayant eu lieu sur la plate-forme PLINIUS. Elle s'est déroulée dans le cadre de projets coopératifs nationaux (avec EDF, FRAMATOME et/ou l'IPSN¹) et européens : CSC (Cognet et al., 2001) et ECOSTAR (Almeyer et al., 2005). On présentera entre autres les résultats du stage de master de G. de Palma (1998).

Nous allons ensuite présenter l'étude de la solidification lente de bains de corium et de la diffusion chimique dans les mélanges d'oxydes fondus. Ce chapitre synthétise des essais réalisés au CEA Cadarache et à l'Institut de Recherches Nucléaires de Řež (République Tchèque) dans le cadre du projet ECOSTAR (Alsmeyer, 2005) et leur interprétation dans le cadre de la thèse de Kiril Frolovⁱⁱ (2004).

La solidification du mélange corium-béton est un des aspects de l'interaction corium-béton (ICB) présentée dans le chapitre suivant. Les essais d'interaction corium-béton sont en cours dans le cadre d'actions de R&D coopératives entre le CEA, l'IRSN et EDF. Les principaux résultats du DRT de Sophie Malaval (2006) ainsi que des stages de Master de Marion Ng Win Tin (2004) et Laure Careniniⁱⁱⁱ (2006) seront présentés. Finalement, un dernier chapitre présentera les résultats d'un essai réalisé sur l'installation VULCANO, dans le cadre d'une collaboration avec le centre de recherches de Karlsruhe, afin de valider en matériaux prototypiques le concept de récupérateur COMET basé sur le noyage du corium par le bas (Journeau & Alsmeyer, 2006).

¹ Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, regroupé le 13/2/2002 avec l'Office de Protection contre les Rayonnements Ionisants (OPRI) pour former l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN)

ⁱⁱ Kirill Frolov a obtenu le Prix Jean Bourgeois de la Société Française de l'Energie Nucléaire (SFEN) récompensant la meilleure thèse dans le domaine de la sûreté nucléaire.

ⁱⁱⁱ La soutenance de Laure Carenini lui a valu le 2° prix 2006 de l'amicale ENSTA.

Chapître 2 Etat de l'art

2.1. SCENARIOS D'ACCIDENTS GRAVES

Dans un réacteur à eau pressurisée (REP), le dénoyage prolongé du cœur va conduire à l'échauffement de celui-ci sous l'effet de la puissance résiduelle. Ce dénoyage a deux familles de causes envisageables (Libmann, 2000) : une brèche du circuit primaire ou une défaillance du refroidissement par le circuit primaire entraînant une vaporisation de l'eau du circuit primaire. Par exemple, pour l'EPR, l'Evaluation Probabiliste de Sûreté (Bitterman et al., 2001) indique que les causes les plus probables d'accident graves seraient une perte de la source froide ou un accident de perte de refroidissement primaire en situation d'arrêt de tranche.

Une réaction exothermique d'oxydation des gaines de combustible en zircaloy par la vapeur d'eau se produit, si le corium n'est pas renoyé à temps, menant à une production importante d'hydrogène et de puissance thermique. Cet hydrogène va être relâché dans l'enceinte et pourra, si on n'y a pas installé des recombineurs catalytiques, donner lieu à une déflagration ou une explosion. Sous l'effet de l'échauffement, les produits de fission les plus volatils, puis les produits de fission semi-volatils sont relâchés par le combustible.

Par ailleurs, des réactions entre le combustible et la gaine produisent des eutectiques à bas point de fusion. Progressivement, il se forme, dans le cœur, un bain de matériaux fondus, appelé *corium*, qui va s'écouler dans le cœur. La Figure 2-1 montre, à titre d'illustration, la relocalisation du corium observée lors de l'essai Phébus FPTO au cours duquel un assemblage de 20 crayons de combustible a été placé en situation de perte de réfrigérant primaire (Clément et al., 2003).



Figure 2-1 : Auto-Radiographie du faisceau de combustible de l'essai FPTO, après relocalisation du corium (d'après Clément et al., 2003).

Dans une deuxième phase (appelée « phase tardive en cuve »), le corium va s'écouler vers le fond de cuve. Il va vraisemblablement interagir avec l'eau restant en fond de cuve. Cette interaction peut se traduire soit par une fragmentation du corium soit par une explosion vapeur. S'il est généralement admis (Sehgal, 2001) qu'il est peu plausible que cette explosion thermique puisse provoquer la rupture de l'enceinte de confinement du fait de la projection d'un missile issu de la rupture de la cuve- mode de ruine α selon le rapport Rasmunsen (1975) -, il n'y a pas de consensus quant à la possibilité ou non de rupture de la cuve (Sehgal, 2001).

Le fond de cuve va alors contenir un lit de débris (voir par ex. Figure 2-2), constitué partiellement d'un corium fondu et de particules ayant une distribution de tailles très étendue (Magallon, 2006).

La *refroidissabilité* des lits de débris (Suh et Henry, 1996, Müller, 2006, Reinke et al., 2006) constitue la prochaine bifurcation dans les scénarios d'accidents graves. Si l'on ne parvient pas à garantir le refroidissement du lit de débris, il va fondre et former un bain en fond de cuve.



Figure 2-2 : Débris de corium dans le fond de la cuve de TMI-2 (d'après Akers et Schütz, 1993)

Deux stratégies sont alors possibles, suivant les caractéristiques du réacteur, et en particulier sa puissance, soit on met en place une stratégie de rétention en cuve par refroidissement externe de la cuve - par exemple par renoyage du puits de cuve (Theophanous et al., 1996, Kymäläinen et al., 1997, McLaughlin et al., 2005), soit la cuve risque de se percer. Les essais mécaniques et leur interprétation (Chu et al., 1999, Willschütz, 2003, Koundy et al., 2005, Sehgal et al., 2006) ont montré que la rupture s'effectuera principalement par fluage (Figure 2-3) au niveau du maximum de flux de chaleur. Des percements par érosion thermique ou par rupture plastique sont aussi envisagés, en fonction de la pression dans la cuve.



Figure 2-3 : Maquette de cuve avant/après l'essai de rupture LHF (Chu et al., 1999)

Ce flux est maximal en l'absence de renoyage du corium dans la configuration constitué d'une fine couche de métal au-dessus d'un bain d'oxydes. Ce phénomène de concentration de flux - *focusing effect* (Theophanous et al., 1997; Esmaili & Khatib-Rahbar, 2004)- est dû à la faible émissivité du bain métallique qui ne permet d'évacuer vers le haut qu'une faible fraction de la puissance reçue du bain d'oxydesⁱ(Figure 2-4), la puissance restante devant être évacuée par les côtés, ce qui implique des flux très élevés dans le cas d'une couche de métal fine. Les récents essais MASCA ont

ⁱ On estime qu'environ 90% de la puissance résiduelle est générée dans le bain d'oxydes, le reste étant généré par des produits de fission se trouvant dans le bain métallique.

mis en évidence des configurations avec la formation d'une couche de métal, enrichi en uranium et zirconium, plus dense que l'oxyde. Paradoxalement, cette configuration pourrait amener à une augmentation de l'effet de concentration en cas de coulées successives d'acier (Seiler et al., 2003), car on pourrait alors avoir une couche fine de métal en haut, en cas de coulées successives de métal, dans des configurations ne permettant pas d'atteindre un équilibre thermodynamique.



Figure 2-4 : Schéma des bains de corium en cuve - Effet de concentration de flux

Lors de la rupture de la cuve, une partie du corium peut être dispersée dans l'enceinte de confinement. On peut alors avoir des échanges thermiques importants entre le corium et l'air. On parle d'échauffement direct des gaz de l'enceinte, en anglais *Direct Containment Heating* - (Blanchat & Allen, 1996, Binder et Spencer, 1996, Wu et al., 1996, Meyer et Gargallo, 2003). Ce phénomène associé à l'oxydation des éléments métalliques du corium et de l'éventuelle combustion simultanée de l'hydrogène présent dans l'enceinte peut provoquer un pic de pression dans l'enceinte. Il convient de noter que la géométrie précise du puits de cuve et des passages entre celui-ci et le reste du confinement influent significativement sur l'échauffement direct des gaz. Néanmoins, on a adopté pour la plupart des réacteurs une stratégie visant à dépressuriser le circuit primaire en cas d'accident grave afin d'éviter une éjection sous haute pression.

Soit lors de la coulée du corium du cœur vers le fond de cuve, soit après la rupture de la cuve, une interaction corium-eau peut se produire si le fond de cuve ou le puits de cuve sont remplis d'eau. Cette interaction va entraîner une vaporisation rapide d'une partie de l'eau. Dans certaines conditions, on risque d'avoir une interaction très énergétique, dite explosion de vapeur (Berthoud, 2000). Dans une première phase, dite de pré-mélange, le jet de corium se fragmente par instabilités de Kelvin-Helmholtz. Ces fragments grossiers (de l'ordre du centimètre) sont entourés d'un film de vapeur. Une perturbation de pression peut déstabiliser ces films (Board et al., 1975) et donner lieu à une fragmentation fine de la goutte et une augmentation de l'aire interfaciale et donc du transfert de chaleur. La détente de la vapeur d'eau créée par cet apport de chaleur va entraîner un pic de pression qui pourra, dans certaines conditions, se propager vers les gouttes voisines et entraîner une escalade du phénomène (Figure 2-5). On parle de détonation thermique ou d'explosion de vapeur. Dans le cadre d'une étude de sûreté, il s'agit d'évaluer le risque de telles explosions vis à vis de l'intégrité de la cuve (Krieg et al., 1996, Theofanous et al., 1999) ou du puits de cuve (Chu et al., 1995, Cizelj et al., 2006).



Figure 2-5 : Schéma de l'explosion vapeur, d'après le modèle de Board et al. (1975)

Après la rupture de la cuve, le corium s'accumule dans le puits de cuve. L'interaction entre le corium et le béton provoque une érosion thermique progressive du radier (Figure 2-6). En l'absence de contre-mesures, elle pourrait aller jusqu'à le percer, causant ainsi la perte du confinement (mode de rupture ε du rapport Rasmussen (1975). Durant cette phase, une quantité importante de gaz incondensables est libérée provoquant une montée en pression progressive de l'enceinte de confinement. La phénoménologie de l'interaction corium-béton sera décrite en détail au Chapître 8.



Figure 2-6 : Essai d'interaction corium-béton COTELS D-8 (Maruyama et al., 2006)

Au cours du déroulement d'un accident grave, il peut se produire des fuites hors de l'enceinte de confinement soit via les traversées, soit à travers l'enceinte en béton. Pour les différents modes de rupture du confinement, les rejets dans l'environnement dépendent des conditions affectant le transfert des produits de fission dans l'installation. Nous étudierons plus en détail ces aspects au Chapître 5.

La Figure 2-7 récapitule les principales phases envisagées pour un accident grave de REP.



Figure 2-7 : Schéma des principales phases d'un accident grave de REP

2.2. EXPERIMENTATIONS EN PILE

La simulation expérimentale d'accidents graves en pile permet de réaliser des essais garantissant une excellente représentativité des matériaux (présence de plutonium, des actinides mineurs et des produits de fission en plus de l'uranium) et aussi du chauffage par les produits de fission. Ces essais utilisent des réacteurs d'essai dans lesquels un canal expérimental permet la réalisation d'expériences aux conditions accidentelles tout en garantissant le respect des critères de sûreté. Ceci limite la taille de ces expériences et implique qu'elles aient un coût unitaire important, comparés aux essais hors pile. Les principaux programmes expérimentaux en pile relatifs aux accidents graves des Réacteurs à Eau Pressurisée sont LOFT-FP, PBF-SFD, NRU-FLHT, ACRR et Phébus (Tenaud et al., 2006, Harman & Clough, 1992). Ces essais ont permis de progresser dans la compréhension des phénomènes liés à la dégradation du cœur, à la production d'hydrogène et aux produits de fission. Il convient de noter qu'à ce jour toutes ces installations sont soit démantelées, soit à l'arrêt.

2.2.1. LOFT

L'installation d'essai de perte de fluide caloporteur (LOFT) a été construite au Laboratoire National d'Ingénierie de l'Idaho (INEL). Deux essais ont été réalisés en 1984 et 1985 sous les auspices de l'OCDE afin d'étudier le relâchement de produits de fission lors de séquences d'accidents de perte de refroidissement primaire (Hicks & Sato, 1990).

L'installation LOFT (Figure 2-8) est constituée d'un réacteur d'essai de 50 MW thermiques, d'une boucle « intacte » avec un générateur de vapeur, un pressuriseur et de deux pompes montées en parallèle et d'une boucle sur laquelle on simule une brèche. Elle simule à échelle réduite un réacteur de puissance et permet de reproduire toute une séquence d'accident grave. Les essais LOFT permettaient de simuler une séquence entière d'accident grave : arrêt d'urgence, insertion des barres de contrôle, dépressurisation du circuit primaire, dénoyage, puis renoyage. Les produits de fission relâchés étaient mesurés, collectés et analysés (Figure 2-9). Lors de l'essai LOFT FP-2, la température du combustible a atteint des températures entre 2300 K et 2700 K et plus de 50% des

gaines en zircaloy ont été oxydées (Carboneau, 1991). Les principales espèces de produits de fission observées ont été AgI et CsOH.



Figure 2-8 : Schéma du réacteur LOFT (d'après Hicks & Sato, 1990)



Figure 2-9 : Schéma du dispositif de mesure des produits de fission dans LOFT (Schuster, 1990)

2.2.2. Le Programme PBF-SFD

Le programme d'endommagement sévère du combustible (Severe Fuel Damage) a été réalisé au Laboratoire National d'Ingénierie de l'Idaho (INEL) sur le réacteur PBF (Power Burst Facility). Ce réacteur PBF permet de réaliser des excursions de puissance au cours desquelles une grappe de 32 crayons était amenée à des températures pouvant atteindre 3200 K. Les relâchements d'hydrogène et de produits de fission étaient mesurés au cours des phases de chauffage et de refroidissement par de la vapeur puis de renoyage. 4 essais ont été réalisés afin de varier les paramètres de la rampe de chauffage, de débit de refroidissement et de renoyage et l'irradiation du combustible, ainsi que l'effet de la présence de matériau de barres de contrôle (Ag-In-Cd). Pour ce qui est des produits de fission, l'essai SFD1-4 (Martinson & Miller, 1985 ; Petti et al ., 1989), le plus proche des conditions d'un scénario réacteur, a permis de conclure (Harman & Clough, 1992) que :

- De l'iodure de césium s'est formé ;
- Le tellure réagit fortement avec les structures en acier inoxydable, contrairement à l'iode et au césium ;
- Des aérosols de cadmium étaient abondants, contrairement à l'indium et à l'argent.

2.2.3. Le projet NRU-FLHT

Le projet FLHT (Full Length High Temperature) a permis de réaliser des essais sur une grappe d'une douzaine de crayons de longueur réelle (3,7 mètres) chauffées en pile au réacteur national de recherche universel NRU d'EACL (Chalk River, Canada). Ce dispositif permettait d'étudier les séquences de dégradation du cœur sur toute la longueur du combustible (Trambauer et al, 2000). Les températures ont été limitées à 2600 K du fait de pertes latérales importantes. Des relâchements de produits de fission volatils (Cs,I) et peu volatils (Ba, Sr) ont été observés.

2.2.4. Le programme ACRR-ST

Ce programme, réalisé sur le réacteur de recherche à cœur annulaire (Annular Core Research Reactor) du Laboratoire National de Sandia avait pour objectif de compléter par des essais en pile, la campagne d'essai hors pile VI (§ 2.3.1) sur le relâchement des produits de fission. L'objectif principal était d'étudier la différence entre chauffage en four (VI) et chauffage en réacteur (ACRR) - essai ST1 - puis l'effet de la pression -essai ST2 à 1.9 MPa-.

La section d'essai était constituée de 4 segments de crayons irradiés de 15 cm de long (soit 320 g de combustible irradié) refroidis par une circulation d'argon hydrogéné. Les produits de fission relâchés étaient récoltés sur un tube à gradient thermique et des filtres.

Il faut noter que les principaux enseignements de ces essais en atmosphère réductrice - relâchements importants d'europium (plus de 15%) et significatifs de baryum et de strontium - ont confirmé ceux de l'essai hors pile VI-4 (Iglesias et al., 1999).

2.2.5. Le programme Phébus PF

Le programme d'essai Phébus PF (Schwartz et al., 2001 ; Dubourg & Taylor, 2001 ; Clément et al., 2003 ; Birchley et al., 2005 ; Dubourg et al., 2005 ; Girault et al., 2006) a pour but d'étudier le relâchement et le transport des produits de fission lors d'accidents graves. L'installation Phébus (Figure 2-10 et Figure 2-11) permet d'étudier au 1:5000 un REP 900 MW : un dispositif en pile permet de soumettre à des conditions de perte de réfrigérant primaire un faisceau de 20 crayons de combustible irradié. Cet assemblage expérimental, entouré d'un isolant thermique résistant aux hautes températures est installé dans le réacteur piscine Phébus. Il est en communication avec une réplique au 1:5000° des principaux circuits d'un REP : section de circuit primaire, générateur de vapeur, enceinte de confinement.



Figure 2-10 : Le réacteur Phébus en configuration PF



Figure 2-11 : Dispositif d'essai Phébus PF

Cinq essais ont été réalisés :

- Le premier essai (FPT0) a été réalisé avec un combustible peu irradié et a permis d'atteindre un état de dégradation voisin de celui de TMI-2 (liquéfaction de près de la moitié du combustible) [Figure 2-1].
- Le deuxième essai (FPT1) a repris les caractéristiques du premier, mais avec du combustible irradié.
- Le troisième essai (FPT-4) a été réalisé à partir d'une configuration initiale en lit de débris de combustible irradié.
- Le quatrième essai (FPT-2) est une reprise de FPT-1, mais dans une configuration pauvre en vapeur d'eau.

• Le cinquième et dernier essai (FPT-3) a permis d'étudier les différences induites par l'utilisation de barres en carbure de bore au lieu de barres argent indium cadmium.

Ces essais ont fourni une importante base de données pour la validation des codes de calculs. Leur caractère intégral permet de mettre en évidence certaines interactions qui n'étaient pas prévues par la modélisation antérieure : par exemple, le faible relâchement du baryum, contrairement aux essais analytiques hors pile VERCORS et HI-VI (§ 2.3), attribué à la solubilité d'oxyde de baryum (Dubourg & Taylor, 2001). De même, la chimie de l'iode a apporté de nombreuses surprises : détection très rapide de relâchements d'iode, formation significative d'iodure d'argent insoluble dans le puisard et formation d'iode organique au contact des surfaces peintes (Girault et al., 2006).

2.3. EXPERIMENTATIONS EN MATERIAUX IRRADIES

Des essais hors pile permettent de s'affranchir de certaines des contraintes d'exploitation liées à la réalisation d'essais en réacteur. De nombreux programmes d'essais analytiques ont été réalisés en matériaux irradié pour étudier le relâchement des produits de fission et des transuraniens : les programmes HI et VI au laboratoire National d'Oak Ridge (Lorenz & Osborne, 1995), les essais CRL de l'Energie Atomique du Canada Limitée (Liu et al., 1994), le programme japonais VEGA (Hidaka et al., 1999), au CEA, les programmes HEVA (Lévêque et al., 1994) et VERCORS (Ducros et al., 2001 ; Pontillon et al., 2005) ainsi que le projet VVER-QUENCH à l'Institut de Recherche des Réacteurs Atomiques de Dimitrovgrad (Leshchenko, 2005 ; Goryachev et al., 2006). Ces expériences doivent néanmoins être réalisées à l'aide de télémanipulateurs en cellule blindée du fait de la présence de combustible irradié.

2.3.1. Le programme HI/VI



Figure 2-12 : Boucle Expérimentale HI/VI (en configuration VI)

Pionnier dans le domaine, le programme HI/VI (Lorenz & Osborne, 1995) a été réalisé de 1981 à 1993 pour le compte de l'Autorité de Sûreté américaine (NRC). Des tronçons de combustible d'une centaine de grammes (15 cm de long environ) gainés en Zircaloy ont été étudiés dans deux fours à induction (HI et VI) permettant d'atteindre 2700 K, soit légèrement en dessous du point de fusion de l' UO_2 . Ces fours sont constitués de céramiques réfractaires (zircone ou thorine) et à la sortie du four, les produits de fission sont recueillis à l'aide de trois dispositifs fonctionnant séquentiellement. Chacun est constitué d'un tube à gradient de température (TGT) pour collecter les vapeurs condensables, de filtres pour recueillir les aérosols et de charbons actifs pour piéger les formes gazeuses. Des détecteurs de rayonnement permettent de mesurer en ligne les dépôts de 85 Kr, 134 Cs et 137 Cs dans les filtres.

Ces essais ont permis d'obtenir des valeurs de référence pour le relâchement des produits de fission à période longue (en l'absence de ré-irradiation avant l'essai, les isotopes à période courte sont pratiquement absents du combustible lors de l'essai).

2.3.2. Le Programme CRL

Le programme canadien CRL (Liu et al., 1994) utilise un dispositif d'essai plus simple que la boucle d'essai VI, avec des fragments de combustibles plus petits (de quelques décigrammes à quelques grammes). Il a été principalement dédié à l'étude de combustible de la filière CANDU, mais son principal apport a été de réaliser des essais sous air qui ont mis en évidence la possibilité de relâchements significatifs en ambiance oxydante du ruthénium, conjugués à la présence à température ambiante de phases gazeuses métastables du RuO₄, alors que cet élément est peu volatil en atmosphère réductrice. AECL a développé des sondes permettant de contrôler le potentiel d'oxygène en entrée et en sortie du four.

A titre d'exemple, les essais MCE-1 (Cox et al., 1991) ont permis d'étudier le relâchement de produits de fission au dessus de fragments de combustible CANDU irradié (moins de 0,3 g) tandis que les essais HCE-3 (Barrand et al., 1999) ont concerné un segment de combustible gainé de 25 mm. Les essais en air ont mis en évidence des relâchements importants de ruthénium, y compris en présence de gainage de Zircaloy.

2.3.3. Le programme VEGA

Dans le dispositif japonais VEGA (Hidaka et al., 1999), les gaz chargés en aérosols circulent successivement dans différents TGT, filtres et/ou impacteurs, condenseur/sécheur pour piéger les gaz solubles et les aérosols et piège froid pour les gaz nobles (Figure 2-13). 10 essais ont été réalisés, dont certains avec du combustible ré-irradié. Une des particularités de cette installation est la possibilité de réaliser des essais sous une pression de 1 MPa. Dans ce cas, les relâchements ont été plus faibles qu'à la pression atmosphérique de 0,1 MPa.



Figure 2-13 : Schéma du dispositif expérimental VEGA

2.3.4. Les essais HEVA

Le programme d'essais HEVA (Levêque et al., 1994) au CEA Grenoble a consisté en huit essais de relâchement de produits de fission en situations d'accidents graves. Le dispositif expérimental (Figure 2-14) a été installé dans une cellule blindée afin de pouvoir travailler sur trois pastilles de combustible irradié (une ré-irradiation de ces pastilles a lieu en réacteur expérimental pour recréer

Chapître 2

des produits de fission à vie courte). Le four HEVA est constitué de manchons de zircone délimitant un canal d'essai permettant la circulation d'une atmosphère oxydante (vapeur surchauffée + hydrogène) ou réductrice(hydrogène) et d'un volume sous hélium abritant le suscepteur en graphite nécessaire au chauffage par induction.



Figure 2-14 : Dispositif expérimental HEVA

Les aérosols de produits de fission sont collectés sur une cascade d'impacteurs, permettant de les classifier en 6 gammes de diamètres aérodynamiques compris entre 0,01 et 19,4 μ m (Boulaud et al., 1980; voir aussi le § 5.2.2) permettant des mesures en ligne grâce à un spectromètre gamma. Il s'avère que le relâchement et le dépôt des aérosols sont approximativement simultanés, à l'exception du cadmium et que le diamètre aérodynamique moyen est de l'ordre de 0,3 μ m. Lorsque l'impacteur était chauffé au-delà de 870 K, les aérosols devenaient trop fins pour être détectés ou étaient sous forme de vapeur.

Les essais réalisés en atmosphère réductrice ont montré une diminution des relâchements de césium et d'iode et une augmentation des relâchements de baryum.

2.3.5. Les programmes VERCORS et VERDON

Le programme d'essai VERCORS fait suite aux essais HEVA du CEA Grenoble, en permettant d'atteindre de plus hautes températures. Dans la majorité des essais VERCORS, l'échantillon est constitué de trois pastilles de combustible REP (Oxyde d'uranium ou oxyde mixte d'uranium et de plutonium)dans leur gaine d'origine. Lors des essais RT3 et RT4, on a étudié des débris de combustible disposés dans un creuset en thorine.

Le four à induction est constitué d'un circuit interne séparé physiquement du suscepteur en tungstène, afin de permettre de varier le potentiel d'oxygène du gaz sans oxyder de pièce métallique tout en atteignant des températures de 2800°C. Il est constitué de pièces de zircone et de thorine. Il donne sur, des lits de billes, des filtres et/ou un impacteur en cascade. L'utilisation de dispositifs annulaires permet une visée pyrométrique et une observation vidéo de l'échantillon. Les essais HT ont aussi mis en œuvre un tube à gradient thermique entre 830 et 130°C(Figure 2-15).

Chapître 2



Figure 2-15 : Dispositif VERCORS HT (Ducros et al., 2001)

Vercors 4: UO₂, 38 GWd/T, H₂ Close to the relocation



UO₂ highly porous UO₂ split up Open clad Low fuel-clad interaction Open high porosity in the RIM

Vercors 5: UO_2 , 38 GWd/T, H_2O Close to the relocation



UO₂ highly porous Sintering of cracks Open clad Strong fuel-clad interaction Open high porosity in the RIM

Figure 2-16 Céramographie et radiographie X des combustibles VERCORS 4 et 5 (Pontillon et al., 2005)

Une des particularités des essais VERCORS, CRL et VEGA a été de réirradier la plupart des échantillons dans un réacteur d'essai (SILOE ou OSIRIS) pendant quelques jours et de réaliser les essais deux à trois jours plus tard, afin de disposer d'un inventaire en produit de fission à période courte (cet inventaire en produit de fission est mesuré par spectrométrie gamma avant l'essai).

Les essais VERCORS ont mis en évidence l'oxydation totale de la gaine dès 1300°C y compris en présnece d'hydrogène, la formation d'une microstructure en éponge (fort gonflement et forte porosité avant la délocalisation du combustible, la délocalisation du combustible irradié à partir de 2150-2350°C soit bien en dessous du point de fusion de l'UO₂ (2860°C) et même du solidus (UO₂- ZrO_2), et ceci quel que soit le taux de combustion et l'atmosphère (néanmoins la délocalisation se produit à plus basse température pour des atmosphères oxydantes, Figure 2-16). Après délocalisation, on a mis en évidence que le corium, du fait de sa forte fluidité s'insère dans les porosités et forme des ménisques, le long des parois.

Les produits de fission peuvent se classer en quatre classes :

- 1. les volatils (Xe, Kr, I, Cs, Sb, Te, Cd, Rb, Ag) ont un relâchement très élevé, voire complet à 2350°C ;
- 2. les semi-volatils (Mo, Rh, Ba, Pd, Tc) ont un relâchement de 50% à 100%, sensible au potentiel d'oxygène et se redéposent généralement près de l'émission ;
- 3. les peu volatils (Ru, Ce, Sr, Y, Eu, Nb, La) ont des relâchements de 3à 10% pouvant atteindre néanmoins 40% dans certaines conditions (présence d'air pour le Ru, par exemple);
- 4. les non volatils (Zr, Nd) pour lesquels aucun relâchement n'a été détecté.

Pour ce qui est des actinides, des relâchements d'uranium et de neptunium atteignant 10% ont été observés, tandis que le plutonium, l'américium et le Curium ont des relâchements inférieurs au pour cent.

Il reste à étudier les taux de combustions élevés et à agrandir la base de données expérimentale pour le MOX et les accidents avec entrée d'air. C'est l'objectif du programme VERDON en cours de préparation au CEA Cadarache. Ce programme utilisera un dispositif voisin de celui de VERCORS, mais avec un four utilisant des pièces en hafnie (Ferrier et al., 2006) à la place de la thorine du four VERCORS.

2.3.6. Le projet VVER QUENCH

Le projet VVER QUENCH du Centre International pour la Science et la Technologie est réalisé à l'Institut de Recherches des Réacteurs Atomiques de Dimitrovgrad. Il a pour but d'étudier la dégradation des assemblages et le relâchement des produits de fission lors du renoyage d'un assemblage (Leshchenko, 2005 ; Goryachev et al., 2006).



Figure 2-17 : Installation VVER-QUENCH (Leshhenko et al., 2005)

La particularité de ce dispositif est de permettre la trempe d'un élément d'assemblage irradié porté à des températures pouvant atteindre 1700°C. La Figure 2-18 montre à titre d'exemple l'évolution des relâchements en gaz de fission lors d'un essai avec un combustible avec un taux de combustion élevé. La majorité des gaz de fission ont été relâchés lors de la phase de chauffage, mais on observe aussi un relâchement lors de la trempe. Pour ce même essai, on a estimé

qu'environ 14% du césium a été relâché, dont 1,2-1,3% lors de la trempe. Les essais à plus haute température sont en cours et devraient apporter des informations pertinentes sur l'effet d'un renoyage du cœur vis à vis de sa dégradation et du relâchement de produits de fission.



Figure 2-18 : relâchement des gaz de fission lors de l'essai VVER-QUENCH (65 MW.j/kg U)

2.4. EXPERIMENTATIONS AVEC MATERIAUX PROTOTYPIQUES

Les contraintes liées à l'utilisation à hautes températures de matériaux irradiés en limitent l'utilisation. De ce fait, de nombreux essais sont réalisés avec des matériaux significativement moins radioactifs. Pour obtenir ces matériaux dits *prototypiques*, on conserve la composition chimique du corium mais pas sa composition isotopique. En pratique, on utilise de l'uranium naturel ou appauvri à la place de l'uranium enrichi et les produits de fission sont remplacés par les mêmes éléments, mais avec la composition isotopique naturelle.

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 prototypiques 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 propriétés physiques et 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 prototypiques 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, ainsi que la mise au point de dispositifs permettant de simuler la puissance radiologique résiduelle dans le volume du corium. Néanmoins, il n'est pas nécessaire de simuler la puissance résiduelle lors d'essais d'étalement ou d'interaction corium-eau, car il s'agit de phénomènes ayant une échelle de temps caractéristique tels que l'inertie thermique y est prépondérante par rapport à la puissance résiduelle.

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. Puis nous passerons en revue les différents programmes de recherches expérimentales ayant mis en œuvre des matériaux prototypique pour l'étude des accidents graves de réacteurs à eau.

2.4.1. Importance des matériaux prototypiques

Piluso et al. (2001) ont synthétisé les principales propriétés de l'uranium et de ses oxydes par rapport à ses simulants potentiels :

• L'uranium a 5 états d'oxydation possibles : 0, +3, +4, +5, +6, du fait de sa configuration électronique 5f³ 6d 7s² avec une bande 5f partiellement remplis. Ses simulants classiques (Al, Zr, Hf, Ce) n'en ont au plus que quatre (Tableau 2-I);

| Element | U | Zr | Hf | Се |
|----------------|---|----------------------------------|--|--------------------------------------|
| Structure | 5f ³ -6d ¹ -7s ² | 4d ² -5s ² | 4f ¹⁴ -5d ² -6s ² | 4f ¹ -5d1-6s ² |
| électronique | | | | |
| Etats | 0,+3,+4, +5, | 0,+1,+4 | 0,+4 | 0,+1,+3,+4 |
| d'oxydations | + 6 | | | |
| Rayon ioniques | +3, r= 10.3 | + 1, r=10.9 | +4, r=7.8 | +1, r= 12.7 |
| r | +4, r = 8.9 | +4, r=7.9 | | +3, r=10.3 |
| (nm) | +5, r= 7.6 | | | +4, r= 9.2 |

Tableau 2-I: Structure électronique, états d'oxydation et rayons ioniques de l'uranium et dequelques autres éléments (TAPP, 1994).

 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±x}, U₄O₉, U₃O₈, UO₃,...



Figure 2-19 : Diagramme de phase uranium-oxygène, d'après Levinskii (1974)

 Il existe quatre formes gazeuses dans le diagramme uranium-oxygène : U, UO, UO₂, UO₃ (Labroche, 2000). Les tensions de vapeurs d'oxydes d'uraniumⁱ sont significativement plus

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 stœchiométrie en oxygène.
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 (CeO₂), 5,68 pour la zircone, 3,99 pour l'alumine.
- Il existe une lacune de miscibilité (Guéneau et al., 1998, Figure 2-20, 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.



Figure 2-20 : Lacune de miscibilité (d'après Guéneau et al., 1998) (a) dans le diagramme U,Zr,O à 3223 K (b) dans le pseudo-binaire $Zr-UO_2$

Ces différences font que le comportement du corium et de ses simulants, y compris des oxydes réfractaires, peut être très différent. A titre d'exemple, la Figure 2-21 compare des images de la pénétration de jets de corium (80% masse UO_2 , 20% ZrO_2) et d'alumine (Al_2O_3) dans l'installation KROTOS (Piluso et al., 2005). On observe une allure très différente pour ces deux compositions qui se traduit par des comportements différents lors de l'interaction de ce bain avec de l'eau : on a observé des explosions de vapeur spontanées avec l'alumine tandis qu'avec ce corium, elles n'étaient jamais spontanées et les explosions provoquées étaient moins énergétiques qu'avec l'alumine (Huhtiniemi et al., 1999). On a aussi observé des différences, encore mal expliquées, entre compositions de corium différentes (Leskovar et al., 2007), ce qui empêche de définir des lois de similitude. De même, l'absence de modèle consistant expliquant les anisotropies observées lors de l'ablation par du corium de bétons riches en silice (cf. §2.4.8 et Chapître 8) ne permet pas d'établir pour l'instant de lois de similitudes que devraient vérifier des essais en matériaux simulants.

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. L'objectif des essais en matériaux prototypique est double : d'une part ils permettent une analyse phénoménologique qui permettra de déterminer les phénomènes les plus importants qui pourront être étudiés en similitude dans des expériences analytiques à plus basse température, d'autre part, ils servent à la gualification des modèles et codes de calcul.



Figure 2-21 : Pénétration d'un jet dans de l'eau (à gauche : corium, à droite : alumine) d'après Piluso et al., 2005.

2.4.2. Essais de dégradation du cœur

Devant la complexité des essais en pile ou en cellule chaude, dédiés à l'étude de la dégradation du cœur et en particulier aux relâchements d'hydrogène et de produits de fission, plusieurs campagnes d'essais ont été réalisées en matériaux prototypique sur ces thématiques. Le principal avantage d'utiliser des matériaux prototypique est la facilité de manutention, en particulier pour la réalisation des analyses matériaux après les essais, tout en conservant la physico-chimie du cas réel. Par contre, le chauffage des éléments combustibles doit être simulé, à l'aide de résistances en tungstène installées au centre des crayons, au prix d'une perte de représentativité lors des phases de .

2.4.2.1. CORA

Le programme d'essai CORA (Complex Out-of-pile Rode bundle Assembly) s'est déroulé entre 1987 et 1993 au Centre de Recherches de Karlsruhe (Schanz et al., 1992 ; Hofmann et al., 1994, 1997, Firmhaber et al., 1996). L'objectif de ces 19 essais était d'étudier la dégradation des assemblages et en particulier la perte de géométrie du cœur, son oxydation et la génération d'hydrogène, les phases produites lors de la dégradation et leurs interactions.

Dans l'installation CORA, on étudie des faisceaux de 2 m de long constitués de 57 crayons au maximum (selon le type de réacteur considéré, Réacteurs à Eau Pressurisé - *REP* de type occidental ou *VVER* de conception soviétique - et Réacteurs à Eau Bouillante, *REB*) constitués de pastilles de dioxyde d'uranium, gainés de Zircaloy. Ces faisceaux contiennent aussi des matériaux absorbants (Ag-In-Cd ou B₄C, selon les essais) et des grilles en Zircaloy ou en Inconel (Figure 2-22). Des essais à effet séparés, à plus petite échelle, ont complété ce programme expérimental. Ils comprenaient des essais en matériaux prototypiques pour étudier l'interaction de l'UO₂ avec du Zircaloy tant solide que fondu (Hofmann et al., 1989; Veschunov & Hofmann, 1994).



Figure 2-22 : Schéma de principe de l'installation CORA et vues en coupe des assemblages REP(PWR), REB(BWR) et VVER étudiés (Hofmann et al., 1994)

L'installation d'essai comprend la section d'essai à haute température (jusqu'à 2400°C) avec une isolation thermique amovible (afin de geler la configuration obtenue en fin d'essai), l'alimentation électrique de puissance, un circuit de vapeur surchauffé, un dispositif de trempe et une grande enceinte menant aux circuits de traitement des gaz.

Une des caractéristiques de cette installation est l'importance de l'instrumentation et de la visualisation, à l'aide de hublots et d'endoscopes refroidis. Les gaz sortant de la section d'essai sont aussi analysés par des spectromètres de masse à quadripôles.

Les principaux enseignements de ce programme expérimental sont les suivants (Hofmann et al., 1997) :

• L'excursion de température due à la réaction zirconium-vapeur d'eau commence dans la partie supérieure du faisceau qui est la plus chaude. Dans les conditions adiabatiques des essais CORA (échauffement supérieur à 1 K/s), elle démarre dès 1400 K avec une vitesse de l'ordre de 20 K/s pour atteindre 2300 K (Figure 2-23), ce très bref délai ne permet pas la mise en œuvre pratique de contre-mesures. Par contre, lorsque le cœur est échauffé plus lentement (~0,2 K/s), l'excursion de puissance est plus lente. En configuration sèche (pour certains scénarios concernant les réacteurs à eau bouillante) il n'y pas d'excursion de puissance.



Figure 2-23 : Evolution de l'accident grave en fonction de la température, pour des vitesses d'échauffement supérieures à 1 K/s, d'après Hofmann et al., 1994.

- A partir du point de fusion du Zircaloy (~2040 K), le métal fondu peut couler sur des distances importantes. Ces coulées partent de zones où la couche superficielle d'oxyde de zirconium peut être pénétrée par des processus soit chimiques soit mécaniques.
- L'intégrité du gainage peut être détruite bien en dessous du point de fusion du Zircaloy par la formation d'eutectiques entre le zirconium et l'acier inoxydable, l'Inconel des grilles ou les matériaux absorbants (Ag-In-Cd ou B₄C selon les réacteurs). Des quantités significatives de liquides peuvent en effet exister dès 1550 K (Figure 2-23).
- La progression de la fusion du cœur est un processus non cohérent. La fusion des matériaux est principalement due à la formation d'eutectiques à des températures souvent très inférieures au point de fusion des composants originaux du cœur. De ce fait la composition du bain varie avec le temps et la température. La Figure 2-24 présente les vues en coupe du faisceau prises après un essai.



UO₂ dissolution and rubble accumulation relocat

relocation of molten cladding

Figure 2-24 : Vue en coupe du faisceau CORA-2 (Essai de référence à 2000°C avec des espaceurs en Inconel), montrant des détails de l'oxydation et de la déformation du gainage, de la dissolution du combustible, de sa relocalisation et de l'accumulation de débris (Schanz et al., 1992).

- Il y a une forte corrélation entre profil axial de température et relocalisation du corium : les divers matériaux fondus se ressolidifient lorsqu'ils atteignent leur température d'immobilisation.
- Les matériaux des barres de contrôle peuvent se séparer du combustible lors de la relocalisation à des températures de l'ordre de 1550 K. Il faut donc que l'eau de renoyage soit boratée pour éviter tout risque de recriticité (Hofmann et al., 1994).

- La relocalisation du combustible peut commencer dès la fusion du 2040 K. Vers 2700 K, une grande fraction des pastilles d'UO₂ ont fondu et le corium va bloquer l'écoulement entre les crayons.
- La formation d'hydrogène dépend de la disponibilité de Zircaloy et de vapeur, de la vitesse d'échauffement. Elle continue après la fusion du Zircaloy. Le renoyage d'un cœur endommagé peut fragmenter les gainages dégradés et les coulées métalliques solidifiées, ce qui va entraîner une oxydation rapide, une élévation de température et un pic de production d'hydrogène (Figure 2-25).



Figure 2-25 : Effet du renoyage sur le déroulement de l'accident. Evolution de la température et de la génération d'hydrogène au cours des essais d'assemblages de type REB, CORA-16 et 17 le premier sans renoyage, le second avec (Hofmann et al., 1997)

- L'analyse des essais CORA a permis de définir trois gammes de température pour les phases initiales d'un accident grave :
 - a. De 1500 à 1700 K : dégradation localisée
 - b. De 2100 à 2300 K : dégradation étendue
 - c. De 2900 à 3150 K : destruction totale du cœur

L'étendue de la dégradation du cœur dépend de la vitesse d'échauffement initiale, de la préoxydation des gaines et de la température maximale atteinte. Les actions concourant à retarder le dénoyage du cœur vont réduire la vitesse d'échauffement et donc vont amener à une formation réduite de liquides, vers 2900 K.

• Malgré une conception différente, les assemblages de VVER-1000 ont eu un comportement qualitativement similaire à celui des réacteurs à eau pressurisée occidentaux.

Chapître 2

2.4.2.2. CODEX

Les principales différences entre les assemblages occidentaux et ceux utilisés dans les VVER de conception soviétique sont l'utilisation de gainage en alliage Zr-1%Nb au lieu de l'alliage avec de l'étain (Zircaloy) et la disposition hexagonale des assemblages. Si deux essais ont eu lieu dans le cadre du programme CORA (§ 2.4.2.1) sur des assemblages de type VVER, l'institut de Recherches hongrois de l'Energie Atomique (AEKI) a lancé le programme CODEX (Core Degradation Experiment, Hózer et al., 2006) afin d'élargir la base de données expérimentale sur les assemblages VVER dans les phases initiales d'un accident grave (ainsi que deux essais dans des configurations REP dans un but de comparaison avec CORA). 6 essais en matériaux prototypiques ont été réalisés auparavant, en particulier pour étudier l'interaction UO₂-Zr1%Nb (Figure 2-26). Le comportement est globalement voisin de celui observé avec du Zircalloy, mais avec une cinétique différente dont les coefficients ont été déterminés.



Figure 2-26 ; Schéma de l'installation pour les essais d'interaction UO₂ / Zr-1%Nb

Un faisceau hexagonal (Figure 2-27) de 7 crayons est chauffé sur 600 mm à l'aide de résistances en tungstène, de 3 mm de diamètre, insérées au centre des 6 crayons périphériques. Il est fabriqué avec les mêmes matériaux que le combustible des VVER. Lors de l'essai CODEX-B4C, le crayon central était remplacé par une barre de contrôle en carbure de bore. L'ensemble est disposé dans un cylindre d'alliage Zr-2,5%Nb protégé par des couches d'isolation thermique en zircone, alumine, acier inoxydable et laine de roche.



Figure 2-27 : Coupe du faisceau CODEX

Les températures des crayons et dans l'enceinte cylindrique sont mesurées par des thermocouples haute température et des pyromètres. Les gaz sortant du faisceau sont analysés par une sonde à hydrogène au palladium. Lors de l'essai CODEX-B4C la composition des gaz est suivie par spectrométrie de masse et les aérosols étaient mesurés par des compteurs lasers et ils étaient collectés dans des impacteurs en cascade. Un système de radiographie à rayon X a permis d'observer la dégradation du faisceau lors de ce dernier essai.

Les résultats originaux de ce programme d'essai sont les suivants :

- La présence d'une couche importante d'oxydes sur les gaines a un effet protecteur vis à vis de l'excursion de température lors du renoyage.
- Lors de l'essai avec le B_4C , on a noté en plus de la production d'hydrogène (40 mg/s lors de l'excursion de température), l'apparition, due à la présence de B_4C , de CO, puis de CO_2 et de très peu de méthaneⁱ (CH₄).
- Les aérosols ont été relâchés principalement lorsque la vapeur était injectée dans le faisceau. Elle décroissait lorsqu'on passait en balayage par de l'argon, ce qui indique une forte corrélation entre le processus d'oxydation et la formation d'aérosols. Leur concentration a augmenté significativement dès que le faisceau a atteint 1400°C pour atteindre 10⁶ particules par litre. La Figure 2-28 montre des particules contenant de l'uranium collectées sur l'impacteur alors que le faisceau était à 2000°C. La taille de ces particules variait de 1 à 10 µm. Le relâchement d'uranium est proportionnel à la pression partielle de vapeur d'UO₃ (Hózer et al., 2006) et atteint 40 mg lors de l'essai. En plus de l'uranium, on a trouvé dans les aérosols du tungstène, du zirconium, du fer, du chrome, du nickel, du tantale, du molybdène, du niobium, de l'yttrie et de l'hafnium. Un précipité boraté a aussi été observé dans le bain du condenseur, indiquant que la plupart du bore des barres de contrôle s'est volatilisée et n'a donc pas pu interagir avec les autres constituants.

ⁱ La présence de molécules organiques aurait pu avoir une influence sur la spéciation de l'iode et augmenter la fraction de l'iode sous forme gazeuse (CH₃I par exemple).



Figure 2-28 : Petites et grandes particules riches en uranium collectées dans l'impacteur mis en service quand le combustible était à 2000°C lors de CODEX-B4C (Hózer et al., 2006)

2.4.2.3. PARAMETER

L'installation PARAMETER, à l'institut LUTCH de Podolsk près de Moscou, a pour objectif l'étude d'accidents de perte de refroidissement et en particulier du renoyage de faisceaux d'assemblages vierges de VVER (Gukov et al., 2005 ; Yudina, 2006 ; Ignatyev, 2006 ; Brunet-Thibault, 2006).



Figure 2-29 : Schéma de l'installation d'essai PARAMETER (Yudina, 2006)

Un faisceau de 19 crayons de type VVER est chauffé par des résistances en tantale de 1,275 m de haut placées au centre de 18 des crayons (Figure 2-29). Il est entouré d'un isolant en zircone. Après une phase de pré-oxydation, on peut renoyer le faisceau soit par le bas (comme dans les autres

essais de renoyage tels que CORA), soit par le haut. L'objectif des essais réalisés dans le cadre du projet n° 3194 du Centre International Scientifique et Technique est d'étudier la phénoménologie du renoyage par le haut, pour lequel l'écoulement de l'eau liquide et de la vapeur seront à contrecourant. Lors du premier essai, on a observé un by-pass de l'écoulement d'eau par la périphérie du faisceau, ce qui a entraîné une élévation de température et une fusion des crayons (Figure 2-30). On a pu observer une dissolution du combustible par le corium (Figure 2-31). Par contre les résultats sont difficile à exploiter au niveau de la thermohydraulique du renoyage, du fait de ce by-pass. L'analyse du second essai (avec un renoyage par le haut et le bas) devrait permettre une meilleure compréhension des phénomènes à prendre en compte pour modéliser cette situation qui pourrait par exemple se produire en cas de renoyage par la branche chaude.



Figure 2-30 : Etat final du faisceau après l'essai PARAMETR SF-1



Figure 2-31 : Coupe du faisceau PAREMETER SF-1 à 745 mm

2.4.3. Essais de relâchements de PF

Du fait des difficultés inhérentes à la manipulation de combustible irradié, des essais de relâchement des produits de fission (*PF*) ont été réalisés avec de l'oxyde d'uranium appauvri auquel on ajoutait des prototypes de produits de fission (même composition chimique mais composition isotopique différente, en pratique, de composition isotopique naturelle).

2.4.3.1. SASCHA

Les essais SASCHA (Albrecht, 1987) ont été réalisés avec des pastilles composées d'UO₂ appauvri mélangé à 14 prototypes de produits de fission. Ces pastilles (d'une masse totale de 200 à 250 g), frittées à 1500°C, ont été gainées de Zircaloy et ont été placées dans un four entre 1600 et 2200°C. Un des principaux résultat de ces essais, confirmé ultérieurement par des essais en combustible irradié (§2.3), a été de montrer qu'en conditions réductrices, l'oxydation de la gaine, le relâchement du tellure, et dans une moindre mesure de l'argent et de l'antimoine, est réduit, alors que celui du baryum est augmenté. Ceci serait dû au piégeage du tellure sous la forme de tellurure de zirconium en milieu réducteur et à la dégradation du gainage en milieu oxydant. A l'opposé l'oxyde de baryum est réduit en baryum plus volatile.

Néanmoins, il reste toujours des interrogations quant à l'effet du mode de fabrication de la pastille prototype sur le mode de relâchement des produits de fission. C'est pourquoi la plupart des essais en matériaux prototypiques a été dédiée à la phénoménologie des bains de corium.



Figure 2-32 : L'installation SASCHA

2.4.3.2. RUSET



Figure 2-33 : Scheme of the RUSET facility (Auvinen et al., 2007)

Les essais hongrois RUSET (Windberg, 2004 ; Auvinen et al., 2005, 2007) ont eu pour but d'étudier de façon analytique le relâchement du ruthénium. Des grains fins de ruthénium métallique, éventuellement allié avec au molybdène, rhodium et palladium ont été introduits dans une matrice en zircone ou en uraninite. Cet échantillon est chauffé dans un four (Figure 2-33). Les relâchements sont recueillis sur un tube en quartz à gradient thermique (principalement le dioxyde de ruthénium) et par bullage dans une solution de soude à température ambiante (pour le tétroxyde de ruthénium gazeux).

2.4.3.3. Projets FPRMP, LPP et EVAN

Les projets européens FPRMP (Petrov et al., 1998) et LPP (Bechta et al., 2001) ont donné lieu à des campagnes d'essais sur le relâchement d'oxyde d'uranium et de produits de fission à partir d'un bain de corium prototypique. Les essais en bain d'oxydes ont été réalisés dans le four à creuset froid « RASPLAV-2 » (Figure 2-34) d'une capacité de l'ordre de 1,5 kg de corium. Le four est constitué d'un creuset froid en tubes de cuivre monté dans un tube de quartz et placé dans le champ d'un inducteur. Ce montage permet de contrôler l'atmosphère au-dessus du bain et de mesurer les aérosols transportés.

Ces essais ont permis de quantifier le taux de volatilisation de l'UO₂ dans un gaz neutre :

 $W[g/(cm^2.hr)] \sim 3.10^3 exp(-21667/T[K])$

Dans de l'air, les relâchements sont plus faibles. Les analyses des aérosols déposés ont montré qu'en azote les vapeurs s'étaient condensées en U_4O_9 , tandis qu'en air elles se sont condensées sous forme d' U_3O_8 . Les particules ont initialement une taille submicronique et s'agglomèrent pour atteindre une taille moyenne de l'ordre de 1 - 2 µm (au-dessus d'un bain autour de 2000 K) à 4-8 µm (au-dessus d'un bain à 3000 K).

Une des principales difficultés de ce type d'essai est la possibilité de formation d'une croûte audessus du bain, qui va retenir les aérosols.

Ces essais ont été complétés par des essais (au centre d'Harwell d'AEA Technology) sur le relâchement des produits de fission par une phase métallique liquide.

Un nouveau programme d'essais, dans le cadre du projet ÉVAN (Veshchunov, 2007) a été lancé dans l'installation RASPLAV-2 dans le but d'étudier le relâchement de produits de fission prototypiques lors de l'oxydation d'un bain de corium due au passage d'une atmosphère inerte à une atmosphère oxydante au-dessus du bain.





Figure 2-34 : Four RASPLAV-2

2.4.3.4. ACE-MACE

Lors des essais ACE et MACE, réalisés au laboratoire national d'Argonne dans le cadre de l'étude de l'interaction corium-béton (\$2.4.8), des prototypes de produits de fission ont été ajoutés au bain de corium afin d'étudier leur relâchement durant l'interaction corium-béton (Spencer et al., 1986; Sehgal & Spencer, 1992; Fink & Thompson, 1997). La concentration en aérosols était estimée par une mesure d'extinction et dix filtres cyclones et une cascade d'impacteurs permettaient de collecter les aérosols (Figure 2-35). Des coupons métalliques étaient aussi disposés parallèlement ou perpendiculairement à l'écoulement de gaz. Les particules sur ces coupons avaient typiquement un diamètre compris entre 0,1 et 1 μ m. Il s'agissait principalement d'aérosols de métal Cr, Fe, Zr.

La synthèse de ces 7 essais de grande taille avec du corium prototypique (UO₂, ZrO₂, Zr, matériaux des barres de contrôles, produits de fission) interagissant avec du béton a montré que les aérosols étaient principalement constitués des produits de décomposition du béton : des composés du silicium pour plus de 50% dans les essais avec du zirconium métallique ou avec un béton siliceux, du potassium et du sodium issus du ciment lors des essais avec un béton silico-calcaire, de la silice, de la chaux, de la magnésie et de l'argent pour l'essai avec un béton calcaire.

Les produits de fission, tellure excepté, formaient moins de 1,3% des aérosols. De même, les relâchements d'uranium étaient faibles. L'essai avec du béton calcaire a donné lieu à des relâchements de baryum, cérium, lanthane, strontium et molybdène un ordre de grandeur plus élevé qu'avec les autres bétons. Les relâchements d'uranium ont aussi été plus important avec ce type de béton.



Figure 2-35 : Circuit aérosols des essais ACE

2.4.4. Essais de bains en cuve

Plusieurs séries d'essais ont été menées, principalement en Russie sur l'étude des bains de corium prototypique en cuve.

2.4.4.1. RASPLAV-MASCA

Le programme RASPLAV (mot signifiant *bain fondu* en russe) a été réalisé dans le cadre de l'OCDE à l'Institut Kurchatov de Moscou (Strizhov, 1994; Speis & Asmolov, 1995; Asmolov et al., 1998; Asmolov et al., 2001) à partir de 1994. Alors que les programmes antérieurs dédiés aux bains en cuve avaient été réalisés en eau (Kymalainen et al., 1993; Asfia & Dhir, 1994, Theophanous et al., 1996, Bonnet, 2000) ou en sels fondus (Sehgal et al., 1998), les essais RASPLAV ont utilisé des bains de corium prototypique UO₂-ZrO₂-Zr pour lesquelles le taux d'oxydation du zirconium variait de 22 à 100%.

Quatre essais à grande échelle (~200 kg, correspondant à des nombres de Rayleigh de l'ordre de 10^{11} - 10^{12} , soit moins que les 10^{15} à 10^{17} estimés pour le cas réacteur, ce qui implique des écoulements convectifs moins turbulents lors des essais qu'à l'échelle du réacteur) ont été réalisés à plus de 2500°C dans l'installation RASPLAV-AW-200 (Figure 2-36). La section d'essai correspond à une tranche de la cuve de 11,6 cm d'épaisseur et 40 cm de rayon. Elle est chauffée par induction en utilisant deux plaques de graphite comme suscepteurs. Une contamination par du graphite a entraîné une stratification du corium du fait de la démixtion d'une phase liquide riche en oxycarbures. Un des enseignements de ces essais est qu'il faut plusieurs heures pour atteindre une situation de convection stable. Ces essais ont pu montrer qu'il y avait bien similitude, à nombre de Rayleigh équivalent, entre essais en corium et essais en eau, malgré la présence d'un intervalle de solidification : il n'y a donc pas d'effet de couche pâteuse entre les isothermes correspondant aux températures de liquidus et de solidus, et une approche de type front plan (Seiler & Froment, 2000) peut rendre compte de la thermohydraulique de ces bains. Conformément à ce modèle, on observe une évolution de la composition du bain au fur et à mesure de sa solidification. L'essai TULPAN T4, à plus petite échelle, a par exemple mis en évidence une macroségrégation lors de la solidification d'un mélange d'oxydes UO₂+ZrO₂.



Figure 2-36 : Schéma de l'installation RASPLAV AW 1 : Section d'essai, 2 : Enceinte fixe, 3 : circuit gaz, 4 : Enceinte mobile

Le projet MASCA a fait suite, sous les auspices de l'OCDE, à RASPLAV. Il s'est avéré que les dispositifs expérimentaux du projet RASPLAV pouvaient apporter des résultats intéressants sur les aspects "matériaux" et sur leurs conséquences pour la distribution des flux de chaleur dans un bain. Les expériences ont donc été orientées vers l'étude de l'impact des interactions entre matériaux sur une stratification éventuelle du bain fondu et par conséquent sur l'écoulement et les échanges de chaleur aux frontières du bain. Les essais principaux ont permis d'étudier l'addition d'acier et/ou de produits de fission et de B_4C à un corium (UO_2+ZrO_2+Zr).

La stratification « classique » consiste à avoir une couche d'oxyde dense, riche en UO_2 , sous une couche de métal, principalement de l'acier et du zirconium, moins dense (Figure 2-4). Le principal résultat des essais MASCA a été de mettre en évidence la possibilité d'avoir une configuration inverse, avec une proportion significative d'uranium dans la phase métallique, qui devient de ce fait plus dense que l'oxyde (Seiler et al., 2003 ; Asmolov & Strizhov, 2004).

En parallèle, certaines propriétés thermophysiques d'alliages métalliques (U-Zr-Fe) ou d'oxydes ont été mesurées, telles que la densité, la viscosité et les températures de solidus et de liquidus.

2.4.4.2. COTELS, INVECOR

Dans le cadre du projet COTELS (Maruyama et al., 2002), le Centre Nucléaire National du Kazakhstan a réalisé des essais en corium prototypique pour le compte de la Nuclear Power Engineering Corporation japonaise. Ces essais concernaient l'interaction corium-eau (Kato et al., 1999), l'interaction corium-béton (Naruyama et al., 2006) et l'interaction corium-cuve. Après l'arrêt de cette collaboration, ces dernieres recherches ont été poursuivies grâce à un financement européen dans le cadre du projet INVECOR du Centre International Scientifique et Technique.

L'objectif de ce projet est d'étudier le comportement en fond de cuve d'un bain de corium. Le corium (UO_2, ZrO_2, Zr) est fondu dans le creuset chaud (en graphite) du four à induction LAVA (Figure 2-37). Ce four permet de fondre 60 kg de corium. Lorsque la phase de fusion est terminée, le fond du creuset est perforé, permettant le transfert du corium vers la section d'essai.

La section d'essai est constituée d'une maquette du fond de cuve d'un réacteur. Le maintien de chauffage sera assuré par des « plasmatrons » (éléments chauffants basés sur le fonctionnement d'une torche à plasma à l'intérieur d'un fourreau) plongeant dans le corium.

A l'heure où nous écrivons ce mémoire, il n'y a pas encore eu d'essai avec maintien de la puissance résiduelle dans le cadre du projet INVECOR.



Figure 2-37 : Four COTELS (Nagasaka et al., 1999)

1 :plaque inférieure, 2 : inducteur, 3 : enceinte, 4 : couvercle, 5 : arrivée de courant,
6 : circuit magnétique, 7 : vanne, 8 : mechanisme d'ouverture, 9 : perforateur, 10 : capot,
11 : anneau, 12 : creuset, 13 : insert en tantale, 14-15 : calorifuge, 16 : échangeur.



Figure 2-38 : Dispositif d'essai en cuve COTELS

2.4.4.3. METCOR

Le projet METCOR (Bechta et al., 2001b, 2005, 2006), réalisé à l'Institut de Recherches Technologiques Alexandrov (NITI) de Sosnovy Bor sous financement européen, a pour objectif d'étudier l'interaction entre le corium et l'acier de la cuve. Les essais ont lieu dans l'installation Rasplav-3 (Figure 2-39). Le corium est fondu par la technique du chauffage par induction avec creuset froid (Petrov, 1983). Un échantillon d'acier de cuve est disposé sous le bain de corium. Des écrans électromagnétiques permettent de chauffer uniquement le bain sans chauffer directement le métal. L'ablation du métal est suivie par des thermocouples ainsi que par un capteur à ultrasons. Une dizaine d'essais ont été réalisés en faisant varier l'état d'oxydation du corium, la teneur en acier du bain et sa température. La Figure 2-40 montre l'état du métal après les essais (d'une durée comprise entre 10 et 13 h). Il s'avère que le front d'ablation correspond à une isotherme de l'ordre de 1090°C, soit bien en dessous du point de fusion de l'acier : il s'agit de la température de l'eutectique entre l'acier et le corium. Il faut néanmoins noter que cela ne va pas trop modifier la tenue mécanique de la cuve car la zone au-delà de 1000°C ne contribue presque pas à la tenue mécanique de la cuve du fait de ses propriétés mécaniques très dégradées.





1 : visée pyrométrique, 2 : couvercle, 3, 18,19 : écrans électromagnétiques, 4 : tube de quartz, 5 : creuset froid, 6 : inducteur, 7 : bain de corium, 8 : défaut acoustique, 9 : zircone fondue, 10 : poudre de zircone, 11 : échantillon d'acier de cuve, 12,13 : calorimètres, 14 : isolation en laine de roche, 15 : traducteur ultrasonore, 16 : thermocouples, 17 : autocreuset, 20 : support.



Figure 2-40 : Etat des échantillons d'acier après ablation

2.4.5. Essais d'injection de corium sous pression

La plupart des essais simulant les éjections sous pression de corium et l'échauffement direct de l'atmosphère du confinement (Direct Containment Heating ou *DCH* en anglais) ont été réalisés en simulant soit à basse, soit à haute température (par ex. Blanchat & Allen, 1996 ou Meyer & Gargallo, 2003). Néanmoins deux campagnes d'essais, au Laboratoire National de Sandia (Allen et al., 1991) et au Laboratoire National d'Argonne (Binder & Spencer, 1996) ont mis en œuvre du corium prototypique.

2.4.5.1. Essais à l'ANL

A Argonne, des essais ont été réalisés dans l'installation d'essai COREXIT (CORium EX-vessel InTeraction) qui est une maquette au 1:40° de l'enceinte du réacteur nucléaire de Zion, comprenant la cuve et le puits de cuve, le tunnel d'instrumentation, l'enceinte de confinement et divers compartiments (Figure 2-41).



Figure 2-41 : Installation COREXIT (Binder & Spencer, 1996)

Un accumulateur de vapeur permet de pressuriser la cuve. Le corium prototypique est généré par la réaction *thermitique*ⁱ suivante :

 $15U+6Zr+9Fe_2O_3+5CrO_3+10.5 Zr \rightarrow 15 UO_2 + 6 ZrO_2 + 18 Fe + 5 Cr + 10.5 Zr + 1.87 MJ/kg$ qui permet d'approcher la composition calculée par Zuber et al. (1991) pour un scénario d'accident faisant suite à une coupure d'électricité dans la centrale de Surry. La masse de corium (1,13 kg) a été choisie pour correspondre à la même énergie thermique que le les 0,7 kilogrammes de simulant utilisés lors d'essais précédents. Il apparaît que la surpression dans l'enceinte a été systématiquement plus faible pour les essais en corium que pour les essais en simulant, principalement dans les essais en atmosphère inerte où l'hydrogène ne pouvait pas brûler. La Figure 2-42 représente l'évolution de l'augmentation de la pression dans l'enceinte rapportée à la pressurisation maximale qui serait obtenue dans le cas adiabatique (Pilch, 1992) en fonction du temps adimensionné par rapport à la durée de l'éjection.

ⁱ Par analogie avec la thermite d'aluminium (Al+Fe₂O₃ \rightarrow Al₂O₃ + Fe + Q), on appelle réaction thermitique les réactions d'oxydo-réduction exothermique permettant d'atteindre un bain fondu (Mwamba et al., 2006).



Figure 2-42 : Tracé adimensionnel de l'efficacité de pressurisation de l'enceinte pour les essais IET en thermite et U en corium prototypique (Binder & Spencer, 1996)

Cette diminution de la pressurisation a été attribuée à la solidification plus rapide du corium (Binder & Spencer, 1996). Par contre, on a observé une plus grande production d'hydrogène avec le corium prototypique, qui contenait plus de métaux fortement réducteurs (Zr, Cr, Al) que la thermite d'aluminium utilisée pour les essais en matériaux simulants à haute température, ce qui a pour effet d'augmenter la chaleur produite dans le cas d'une atmosphère oxydant et de compenser partiellement l'effet précédent.

La campagne d'essai CWTI (Spencer et al., 1987, 1988) réalisée dans la même installation a permis d'étudier l'effet de l'eau présente dans le puits de cuve sur la DCH. Son rôle principal est de retirer une fraction importante (jusqu'à 97%) de la chaleur présente dans les gouttes de corium.

En plus de fournir une base de données expérimentale pour la validation des modèles de DCH, ces essais ont mis en évidence les difficultés qu'il y a à simuler le corium avec de la thermite d'aluminium.

2.4.5.2. Essais Surtsey du SNL

L'installation Surtsey (Allen et al., 1991) a été conçue pour réaliser des essais de DCH à échelle réduite avec 50 à 80 kg de corium prototypique obtenu par réaction thermitique. Le corium est mis sous pression de vapeur (3 à 4,5 MPa) dans une cuve et éjecté sous pression vers une maquette au 1:10° de la cavité du réacteur de Zion (Figure 2-43). On mesure les pressions, les températures et la quantité d'hydrogène produite pour valider des codes intégraux. Des mesures plus précises (taille et vitesse des débris, masse dispersée, taux d'entraînement) sont aussi mesurées dans un but analytique.

16 essais ont été réalisés au cours de 3 campagnes : 7 essais TDS (Test Development and Scoping tests) ayant permis la mise au point de l'installation, 6 essais LFP (Limited Flight Pass) ayant pour but d'étudier l'effet sur la DCH de la longueur de parcours disponible - ces essais montrent que la présence de sous-compartiments diminue fortement l'intensité du réchauffement de l'atmosphère - puis 3 essais WC (Wet Cavity) ayant permis d'utiliser la géométrie du puits de cuve en configuration sèche ou noyée. Il s'avère que la présence d'eau dans le puits de cuve a légèrement amplifié l'échauffement de l'atmosphère de l'enceinte.

L'instrumentation dédiée à la caractérisation des débris a permis d'indiquer que les particules suivaient une loi log-normale avec une taille moyenne de 1 mm. Les vitesses des débris ont été mesurées entre 15 et 75 m/s selon les essais.



Figure 2-43 : Installation Surtsey

2.4.6. Essais d'Interaction Corium-Eau

Les études sur l'explosion vapeur ont débuté dans le cadre des études de sûreté des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium liquide (Berthoud & Newman, 1984; Magallon et al., 1992; Denham & Judd, 1994; Kaiser et al., 1998) avant d'être étendues au cas des réacteurs à eau. Corradini (1991) et Berthoud (2000) ont synthétisé les résultats des principaux programmes expérimentaux relatifs à l'interaction corium-eau. Nous allons décrire les principaux essais réalisés en matériaux prototypiques. On distingue les essais de prémélange des essais d'explosion, généralement déclenchée artificiellement (par un pic de pression) dans un but de reproductibilité.

2.4.6.1. FARO

Le programme expérimental FARO (Magallon et al., 1995, 1999, 2001, 2006) a permis d'étudier la phase de prémélange avec des masses de corium allant jusqu'à 177 kg. Le mélange de poudres d'UO₂ et de ZrO₂ était fondu par chauffage électrique direct en utilisant des générateurs électriques entre 3000 V/ 2A et 60 V /15 000 A. Après fusion, le corium était relâché - à une température mesurée entre 2900 et 3200 K selon les essais - par gravité dans une section d'essai cylindrique de 71 cm de diamètre pouvant contenir jusqu'à 2 mètres d'eau (Figure 2-44). A l'exception du dernier essai de l'installation (Magallon & Huhtiniemi, 2001b) pour lequel on a déclenché une explosion de vapeur, les essais FARO se sont déroulés sans explosion. La trempe du corium entraîne une importante vaporisation et l'augmentation de la pression dans la section d'essai. A titre d'exemple, la Figure 2-45 présente l'évolution de la pression pour trois essais dans des configurations voisines mais avec des masses variant entre 18 et 157 kg de corium. Après les essais, on a observé que généralement seule une partie du corium avait été fragmentée. En règle générale, 80% du corium formait un amas compact observé lors du démontage. La Figure 2-46 montre, à titre d'exemple, des débris issus de l'essai FARO L-24 (coulée de 177 kg de corium à 3023 K dans 2 mètres d'eau saturée sous 20 bars). L'amas a un diamètre égal à la moitié du diamètre de la section d'essai. Le diamètre moyen des particules était de 2,6 mm lors de cet essai.







Figure 2-45 : Effet de la masse de corium sur la pressurisation de la section d'essai FARO Essais L-06 (X) : 18 kg ; L-08 (Y) : 44 kg ; L-19 (Z) : 157 kg





Figure 2-46 : Débris obtenus lors de l'essai FARO L-24 (Magallon, 2006) gauche : vue des débris - droite : micrographie de quelques particules.

2.4.6.2. AEA WInfrith

Le programme expérimental britannique, à l'AEA Winfrith, (Bird & Millington, 1979) a permis de suivre les explosions vapeur dues à l'interaction avec de l'eau d'un mélange contenant de l' UO_2 obtenu par la réaction thermitique suivante :

 $3 \text{ U} + 2 \text{ MoO}_3 \rightarrow 3 \text{ UO}_2 + 2 \text{ Mo} + 1,88 \text{ MJ/kg}$

De 0,5 à 24 kg ont été fondus dans un creuset fermé situé dans un volume d'eau. La chaleur de réaction fait ouvrir le fond du creuset et libère le corium dans le volume d'eau. Même si la présence de 19%_{masse} de molybdène métallique n'est pas prototypique, ces essais ont permis d'obtenir des informations précieuses sur ce type de mise en contact de l'oxyde d'uranium et de l'eau. En particulier, l'effet de la géométrie du volume d'eau a été mis en évidence. En effet, la possibilité ou non de détente des ondes de pression influe largement sur l'efficacité énergétique¹ des explosions. Par ailleurs, des essais avec des masses de corium différentes ont montré que toutes choses égales par ailleurs, l'efficacité est constante, si on la calcule par rapport à la masse de corium ayant participé à l'explosion (estimée par rapport à la proportion de corium retrouvé sous forme de fines particules après l'essai).



Figure 2-47 : Dispositif d'interaction corium eau de l'AEA Winfrith

ⁱ Rapport de l'énergie mécanique à l'énergie thermique disponible dans le jet.

2.4.6.3. SNL

Au Laboratoire National de Sandia, USA, les études d'interaction corium-eau ont débuté par des essais mettant en jeu de 10 à 35 grammes de corium (Nelson et al., 1978, 1980). Deux familles de compositions ont été étudiées, le corium-A (typiquement $60\%_{masse}$ UO₂, 22% ZrO₂, 13% Fe, 4 % Fe₂O₃, mais les compositions fluctuaient d'un essai à l'autre, en particulier le degré d'oxydation du bain) et le corium-E (typiquement 28 $\%_{masse}$ UO₂, 11% ZrO₂, 6% Fe, 55 % Fe₂O₃) correspondant à deux proportions différentes d'acier fondu lors d'un accident. Le corium est fondu dans un petit four à arc à 3 électrodes. Après fusion du corium, l'arc est éteint et le four est noyé d'environ 1,5 L d'eau, une petite détonation déclenche l'explosion vapeur. Ces essais à petite échelle ont permis de mettre au point le dispositif de déclenchement et d'en étudier la physique. Il est apparu que les compositions riches en métal ne donnaient pas lieu à explosion, dans cette configuration¹, du fait de la génération d'hydrogène, gaz incondensable renforçant la stabilité des films de vapeur. De même une eau proche de la saturation rend plus difficile les explosions vapeur.



ROD IS ATTACHED

Figure 2-48 : Essais d'ICE petite échelle dans le four à arc de Sandia

Environ 160 essais d'interaction corium-eau ont ensuite été menés à plus grande échelle (de l'ordre de 10 kg) au Laboratoire National de Sandia dans deux géométries (Figure 2-49): une installation dite géométrie ouverte - le bain fondu est versé dans un grand volume d'eau (3500 L) - (Buxton & Benedict, 1979, 1980) et une installation mieux instrumentée (FITS : Fully Instrumented Test Series) pour laquelle le corium était versé dans un plus petit réservoir (Mitchell et al., 1981), ce qui permet une meilleure estimation de la puissance et de l'impulsion de l'explosion. La majorité de ces essais ont été réalisés avec de la thermite d'aluminium ($3 Fe_3O_4 + 8 Al \rightarrow Al_2O_3 + Fe$), mais 10 essais en géométrie ouverte et 18 essais FITR ont eu lieu avec du corium ($53 \%_{masse} UO_2$, $17\% ZrO_2$, 30% acier inoxydable - dit corium A+R) obtenu par réaction thermitique. Lors de ces essais, des prises de vues cinématographiques rapides ont mis en évidence les différentes phases de l'explosion : prémélange, déclenchement et propagation. Lors des essais en corium, on n'a pas observé de déclenchement spontané, contrairement aux essais en alumine et les rendements énergétiques sont beaucoup plus faibles pour le corium que pour l'alumine, confirmant la tendance observée dès les essais à petite échelle.

ⁱ Rappelons néanmoins que de nombreuses explosions vapeur ont eu lieu avec de l'acier liquide dans des aciéries.



Figure 2-49 : Expériences de Sandia en géométrie ouverte (à gauche) et en configuration FITS(à droite)

2.4.6.4. COTELS

La campagne d'essais COTELS-A (Kato et al., 2000) a eu pour objectif l'étude de l'interaction corium-eau en configuration hors cuve (Figure 2-50 gauche). 50 à 60 kg de corium (55%_{masse} UO₂, 25% Zr, 5%ZrO₂, 15% acier inoxydable) sont fondus dans un four inductif à creuset chaud en graphite. Le fond du creuset est percé lorsque la température de coulée est atteinte et le corium tombe dans une section d'essai remplie d'eau. Les paramètres principaux de ces essais sont la masse du corium (27 kg lors de l'essai A4), la présence ou non d'incondensables dans le ciel gazeux (20% d'azote dans A5, 100% argon pour A11, les autres essais étant en vapeur), la sous-saturation de l'eau (21K pour A6), la différence de pression entre le four et la cuve, entraînant une vitesse de jet (0,67, 0,14 et 0,13 MPa pour A8, A10 et A11) et la hauteur d'eau (40 cm, sauf pour les essais A9 -90 cm- et A11-80 cm-). La Figure 2-50 droite présente la fonction de répartition de la granulométrie des débris. On note que les essais A10 (eau sous-saturée de 21 K et grande vitesse initiale) et A11 (eau très sous-saturée -86 K- et vitesse initiale élevée) ont généré une proportion plus importante de particules fines. A l'exception de l'essai A11 dans une eau très sous-refroidie, Kato et al. ont trouvé une corrélation négative entre le pic de pression et la taille médiane (en masse) des particules.



Figure 2-50 : Essais COTELS-A -

Schéma de l'installation (gauche)- Distribution de la taille des particules (gauche)

2.4.6.5. KROTOS

L'installation KROTOS a été mise en service au Centre Commun de Recherches d'Ispra (Hohmann et al., 1995; Magalon et al., 1995b; Huhtiniemi et al., 1997, 1997b; Huhtiniemi & Magallon, 2001, Magallon, 2006). Elle est constituée d'un four à résistor en tungstène permettant de fondre un litre de corium dans un creuset, d'un tube de transfert et d'une section d'essai. Lorsque le corium est fondu, le creuset est relâché et tombe en chute libre dans le tube de transfert. Un poinçon en perce le fond et le corium s'écoule dans la section d'essai. Cette dernière (Figure 2-51) est constituée d'un tube d'essai instrumenté de 200 mm de diamètre, rempli d'eau qui est positionné dans l'axe d'une cuve conçue pour supporter 25 bars.



Figure 2-51 : Section d'essai KROTOS (Huhtiniemi et al., 1999)

Le principal enseignement des essais KROTOS est d'avoir mis en évidence les différences de comportement vis à vis de l'explosion vapeur entre un corium prototypique 80% UO₂ et 20% ZrO₂ et son simulant classique, l'alumine : le rendement des explosions avec de l'alumine variait entre 0.8 et 2.5% alors que les interactions corium-eau était très peu énergétique (Huhtiniemi et al., 1997). Plusieurs effets ont été observés qui pourraient expliquer ces différences de comportement : les jets d'oxydes entrant dans l'eau ont une allure différente suivant la composition (Figure 2-21) ; on a observé l'apparition de phases métastables lors de l'analyse des échantillons issus des explosions d'alumine dans de l'eau (Piluso et al., 2005).

Après l'arrêt du programme d'essais KROTOS au CCR, l'installation KROTOS a été déménagée et reinstallée au sein de la plate-forme PLINIUS (Piluso et al., 2005b).

2.4.6.6. TROI

L'installation TROI (Test of Real cOrium Interaction with water) a été développée par l'Institut de recherche coréen pour l'énergie atomique (KAERI). Il est constitué d'un four inductif à creuset froid (Hong et al., 2003) permettant de fondre jusqu'à 15 kg de corium. Après fusion de la charge, le fond du creuset est percé mécaniquement et le corium coule dans une section d'essai cylindrique remplie d'eau (Figure 2-53).



Figure 2-52 : Creuset froid utilisé pour TROI (Hong et al., 2003) gauche : schémas - droite : vue en fonctionnement



Figure 2-53 : Schéma de l'installation TROI (Song et al., 2003)

Les essais TROI (Song et al., 2002, 2003, 2006 ; Min et al., 2006) ont permis de tester différentes compositions de corium : rutile (TiO₂), zircone (ZrO₂), mélanges $80\%_{masse}$ UO₂- 20% ZrO₂, 70%_{masse} UO₂- 30% ZrO₂. Il s'avère que les explosions spontanées ont été observées uniquement pour des corps purs ou pour des mélanges 70%_{masse} UO₂- 30% ZrO₂, proches de la composition de l'azéotrope, qui ont de ce fait une solidification congruente. Dans le cas des explosions déclenchées, l'efficacité était moindre avec la composition 80/20 qu'avec la composition 70/30.

L'effet de la géométrie de la section d'essai a aussi été mis en évidence : Il n'y a eu aucune explosion lors des essais dans une section de 30 cm de diamètre, alors que dans les mêmes configurations, des explosions avaient eu lieu dans un cylindre de 60 cm de diamètre. Cette différence est interprétée par Song et al. (2006) comme une conséquence de la diminution de la fraction volumique de vapeur dans le 2° cas.

2.4.7. Essais d'étalement

Les essais d'étalement ont été réalisés dans le but de valider le concept de récupérateur EPR basé sur le principe de l'étalement du corium afin de diminuer les flux vers le substrat du récupérateur.

2.4.7.1. 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-II. 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.

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).

| | Corium R | Corium R' |
|--------------------------------|-------------|-------------|
| UO _{2+x} | 29 % | 26,1 % |
| ZrO ₂ | 12 % | 10,8 % |
| Fe0 | 18 % | 16,2 % |
| Cr ₂ O 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-II : Compositions massiques des deux coriums coulés lors des essais COMAS



Figure 2-54: 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 2-54) 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.

2.4.7.2. 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 ; Cognet 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 zircone 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 2-55).



Figure 2-55 : 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 2-56.

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 2-56 : Thermographie de l'étalement lors de l'essai FARO L32S

2.4.8. Essais d'Interaction Corium-Béton ou Corium-Céramique

2.4.8.1. Interaction Corium-Béton (ICB)

En cas de rupture de la cuve, le corium issu de la fusion du cœur et des structures internes se répand sur le radier du puits de cuve en béton. La mise en contact du corium et du béton conduit à ce que l'on appelle couramment l'interaction corium-béton ou ICB¹. Cette interaction se traduit par une ablation progressive du radier et des parois du puits de cuve pouvant entraîner un percement de ces dernières et, potentiellement, une fuite de produits radioactifs à l'extérieur de l'enceinte. Le percement des parois latérales du puits de cuve peut, par ailleurs, conduire à une mise en contact du corium avec de l'eau présente dans des locaux adjacents, ce qui pourrait contribuer à l'accroissement de la pressurisation de l'enceinte par vaporisation. La production des gaz générés par l'ablation du béton contribue également à la pressurisation de l'enceinte avec une cinétique correspondant à celle de l'ablation du radier, soit de un à plusieurs jours. A noter, enfin, que la production d'aérosols qui accompagne l'ICB influence également l'évolution du comportement des aérosols dans l'enceinte et donc le terme source (cf. §2.4.3.4).

La R&D réalisée dans le domaine de l'ICB a pour objectif d'acquérir les connaissances nécessaires pour prédire avec une précision acceptable les cinétiques d'ablation axiale et radiale des parois du radier et du puits de cuve, et l'évolution des sources de gaz et d'aérosols produits durant l'ICB.

Pour les réacteurs avec récupérateurs de corium (voir § 1.3), le corium pourra interagir avec de la céramique. Dans ce cas la phénoménologie est voisine de celle de l'interaction corium béton, si ce n'est l'absence de dégazage significatif lors de l'échauffement de la céramique.

Compte tenu de la température importante des matériaux fondus en provenance de la cuve $(T_{oxydes} > 2500 \text{ K})$ entretenue par la puissance résiduelle et de la température de fusion du béton (autour de 1600 K pour un béton siliceux), l'ICB se traduit principalement par la fusion des parois du puits de cuve. Le béton étant composé majoritairement de SiO₂, CaCO₃ et H₂O, sa décomposition conduit au relâchement dans le bain de phases condensées (SiO₂, CaO) et gazeuses (H₂O, CO₂). Le bain de corium contient donc les oxydes lourds en provenance du cœur (UO₂, ZrO₂), les oxydes légers en provenance du béton (principalement SiO₂ et CaO) et des métaux (Fe, Cr, Ni, Zr), le tout étant soumis au brassage induit par les gaz de décomposition du béton. Le mélange éventuel des métaux avec les espèces oxydes condensées ou gazeuses peut donner lieu à des réactions d'oxydation potentiellement exothermiques et productrices de nouvelles espèces gazeuses, telles que H₂, CO et SiO(g). Enfin, la mise en contact du corium à haute température avec le béton plus froid peut entraîner sa solidification, des débris étant susceptibles d'être mis en suspension dans le liquide. Le bain de corium est donc un milieu multiconstituant et multiphasique (liquide, solide, gaz) dont la composition et les propriétés physiques évoluent constamment au cours de l'ICB du fait de la décomposition du béton et des réactions chimiques.

Les essais globaux permettent d'avoir une vue d'ensemble de l'interaction, tous les phénomènes impliqués dans l'ICB intervenant de façon couplée. Ces essais sont difficiles à réaliser compte tenu des difficultés technologiques à résoudre : très hautes températures, procédés de chauffage, etc. Leur interprétation est rendue complexe du fait du nombre limité et du manque de précision des mesures, de la délicate évaluation des pertes thermiques et de phénomènes dont l'influence est parfois difficilement quantifiable (éjection de matière, ancrage de croûte, etc.). Malgré ces difficultés, ces essais n'en demeurent pas moins indispensables puisqu'ils mettent souvent en évidence des phénomènes jusqu'alors non identifiés et potentiellement importants (éjection de corium en ICB sous eau lors des essais MACE). L'ensemble des essais globaux d'ICB est résumé dans le Tableau 2-III.

D'un point de vue chronologique, on retiendra que les essais 1D en matériaux oxydes (ACE, MACE, SURC) datent d'une dizaine d'années voire plus. Ils ont permis d'avancer et de conforter des hypothèses sur les modèles de comportement du corium (ablation principalement thermique dont la vitesse est fonction du rapport entre le flux de chaleur et l'enthalpie nécessaire pour porter à la fusion un volume unitaire de béton ; décroissance de la température du bain voisine de celle du liquidus) et de valider partiellement les logiciels de simulation. Les essais 2D (MCCI-OCDE, VULCANO - voir Chapître 8) en matériaux oxydes prototypiques ont été lancés beaucoup plus récemment et apportent des informations sur la distribution 2D du flux de chaleur en ICB. Les résultats de ces essais tendent à montrer que l'érosion se ferait préférentiellement dans la direction radiale dans le cas d'un béton silice-

ⁱ MCCI pour « molten core-concrete interaction » en anglais

calcaire (Farmer et al., 2004 ; Farmer & Lomperski, 2007 ; Journeau et al., 2007b). L'analyse et l'interprétation des résultats de ces essais sont en cours.

| Programme | Caractéristiques | Masse de corium | Géométrie | Paramètres |
|--|--|--------------------|--|---|
| SURC (1D) (Copus et al., 1989, 1990, 1992 ; Copus, 1992) Figure 2-57 | matériaux réacteurs + produits de fission | 200 kg | cylindre diamètre 0,4 m | Béton siliceux ou calcaire, composition, puissance |
| ACE (1D) (Thompson et al., 1997) Figure 2-58 | matériaux réacteurs + produits de fission | 250/450 kg | parallélépipède 0,5mx0,5mx0,4m | composition béton (siliceux, calcaire, silico-calcaire), puissance |
| MACE (1D) (Farmer et al., 1999) Figure 2-59 | matériaux réacteurs injection d'eau | 100/1800 kg | parallélépipède (0,5 à 1,2m)x(0,5 à 1,2m) x 0,4m | composition béton (siliceux, silico- calcaire), puissance, débit d'eau jusqu'à 7h45 d'ablation |
| COTELS (Maruyama et al., 2006) Figure 2-60 | Matériaux prototypiques oxyde+métal | ~ 50 kg | Cylindrique (2D) | Béton siliceux/Mortier siliceux renoyage |
| CCI (2D) (Farmer et al., 2004, 2005, 2006) Figure 2-61 | matériaux réacteurs | 350 kg | parallélépipède 0,5mx0,5mx0,6m | composition béton silice, silico-calcaire, puissance, refroidissement par eau |

Tableau 2-III : Synthèse des essais globaux d'ICB (Tenaud et al., 2006)

Il n'existait pas avant les essais VBS-U (voir Chapître 6) de résultats d'essais en matériaux prototypiques, notamment pour lesquels le chauffage est représentatif du cas réacteur pour l'étude des configurations stratifiées oxyde/métal. Les essais BETA (Alsmeyer, 1987) et COMET-L (Doubleva et al., 2006) ont été réalisés en matériaux simulants (alumine + fer) et leur mode de chauffage, par un inducteur placé sous le bain, implique que la puissance est injectée dans la phase métallique alors qu'elle se trouve dans la phase oxyde dans le cas réacteur. Les essais BETA indiquent une ablation privilégiée du béton dans la direction axiale, cependant ce comportement n'est pas extrapolable au cas réacteur car il est probablement dû au mode de chauffage via la phase métallique (Spindler et al., 2006).







Figure 2-58 : Schéma et photographie de l'installation ACE







Figure 2-60 : COTELS gauche : schéma de l'installation - droite : coupe du creuset en béton après essai.



Figure 2-61: Essais CCI

gauche : schéma de l'essai CCI-2 avec un béton riche en calcaire - ablation isotrope droite : photographie lors du démontage de l'essai CCI-3, avec un béton riche en silice - ablation préférentiellement latérale -.

2.4.8.2. Essais d'interaction corium-céramique

Bechta et al. (2000) ont étudié la tenue au corium d'un réfractaire à base de zircone stabilisée à l'yttrie liée avec du monoaluminate de baryum hydraté. Les essais ont eu lieu dans le four RASPLAV-2 à l'Institut A .P. Aleksandrov de Recherche Technologique (NITI, Sosnovy Bor). Lors de ces 10 essais, de 90 à 218 cm³ de corium de compositions variables ont été mis en contact avec un bloc de composite. L'observation principale est que l'ablation s'arrête lorsque le bain acquiert une composition chimique telle qu'il soit à la température de liquidus.



Figure 2-62 : Schéma du four RASPLAV-2 1 : hublot ; 2 : piquage ; 3 : couvercle ; 4 : tube de quartz ; 5 : creuset froid ; 6 : bain ; 7 : autocreuset ; 8 : échantillon de céramique avec thermocouple ; 9 : inducteur ; 10 : sole refroidie

Cette installation a aussi servi à la sélection des céramiques sacrificielles pour les VVER-1000 (Asmolov et al., 2002). Lors de l'interaction entre un bain de corium chaud et une céramique initialement plus froide, une vitesse de dissolution de l'ordre de $0,01 \text{ g/(s.cm^2)}$ a été obtenue, sauf

pour des compositions riches en zirconium, pour lesquelles la réaction exothermique avec l'oxyde de fer crée une source de chaleur qui augmente la température et donc la vitesse de dissolution. L'installation SICOPS (Fischer et al., 2005) d'AREVA NP Erlangen est un four à induction avec creuset froid permettant d'étudier l'interaction d'un corium oxyde avec des céramiques et des bétons. Dans ces essais, une brique de zircone est disposée dans un creuset en béton (Figure 2-63) contenant environ 1 L de corium. Les analyse micrographiques n'ont pas montré de croûte à l'interface corium-céramique ni d'ablation significative, alors que pendant le même temps 23 mm de béton ont été ablatés.



Figure 2-63 : (à gauche) Schéma du dispositif SICOPS - (à droite) coupe après l'essai
Chapître 3 La plate-forme PLINIUS

Du fait de l'importance des essais en matériaux prototypiques pour les études relatives aux accidents graves de réacteurs nucléaires, le CEA s'est doté depuis le milieu des années 1990 d'une plate-forme expérimentale dédiée aux expérimentations à hautes températures avec des mélanges prototypiques contenant de l'uranium appauvri. Cette plate-forme est dénommée PLINIUS (*PLatform for Improvements in Nuclear Industry and Utility Safety*) en l'honneur de Caius Plinius Caecilius Secundus (Pline le Jeune) qui a rédigé la première description scientifique connue d'une éruption volcanique, celle du Vésuve le 24 août 79.

Cette plate-forme comprend quatre installations d'essai :

- L'installation VULCANO qui permet de réaliser des essais mettant en œuvre des masses de corium de 20 à 70 kg. Elle est constituée d'un four rotatif à arc plasma et de sections d'essais permettant, si nécessaire, de simuler la puissance radiologique résiduelle par un chauffage inductif ;
- L'installation COLIMA permettant d'étudier le comportement de quelques kilogrammes de corium dans une enceinte de 1,5 m³ permettant de varier l'atmosphère et la pression (jusqu'à 0,45 MPa). Cette installation est dédiée à l'étude des aérosols, des interactions Corium-Matériaux et des propriétés physiques ;
- L'installation VITI dédiée à la réalisation d'essais avec quelques grammes de corium dans une atmosphère contrôlée. Elle permet entre autres de réaliser des mesures de propriétés physiques (viscosité, tension de surface,...) par lévitation aérodynamique ainsi que des essais dans des creusets de petite dimension;
- L'installation KROTOS (§ 2.4.6.5) remontée dans la plate-forme PLINIUS après son transfert du Centre Commun de Recherches d'Ispra. Elle permet l'étude de l'interaction entre quelques kilogrammes de corium et de l'eau.

3.1. L'INSTALLATION VULCANO

L'installation VULCANO (<u>V</u>ersatile <u>UO</u>₂ <u>L</u>aboratory for <u>C</u>orium <u>AN</u>alysis and <u>O</u>bservation) est constituée principalement d'un four de fusion, de sections d'essais et d'une instrumentation dédiée. Plusieurs types d'essais ont été réalisés à ce jour dans l'installation VULCANO :

- Des essais d'étalement du corium (Chapître 6)
- Des essais de physico-chimie (Chapître 7)
- Des essais d'interaction corium-béton (Chapître 8)
- Des essais de refroidissement du corium (Chapître 9)

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 UO₂, ZrO₂, SiO₂, 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 Al+ 3 Fe₃O₄ \rightarrow 9 Fe + 4 Al₂O₃ + 3.7 MJ/kg) sert à produire des coulées d'environ 300 kg d'alumine et de fer. Des réactions telles que 3U + 2 MoO₃ \rightarrow 3UO₂ + 2Mo + 1.9 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 le four VULCANO 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 ; Piluso et al., 2007).

Le principe du chauffage par arc plasma a été retenu pour le four VULCANO (Cognet et al., 1999), 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 qui 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 zircone 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 (Etalement), la section d'essai est une surface d'étalement, soit en briques réfractaires (zircone ou magnésie), en acier ou en béton (cf. Chapître 6). 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





Dans la configuration VULCANO-P (Physicochimie), le corium est versé dans un creuset de zircone entouré d'un inducteur solénoïdal permettant la réalisation d'essais de longue durée dédiés à l'étude du refroidissement lent du corium (Chapître 7).

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 (Chapître 8). La Figure 3-3 présente une de ces sections d'essais. 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 (Chapître 9).





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 mesuré 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 - UO₂, ZrO₂, ZrSiO₄, Fe₂O₃, Fe₂SiO₄, Al₂O₃ - 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 µm utilisés par nos pyromètres, varie entre 0,93 et 1,01 ce qui correspond à une incertitude de l'ordre de \pm 75°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 pyromètrique 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 3-4) 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 3-4 : 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 (De Palma, 1998 ; Journeau et al. , 1999).

A titre d'exemple, la Figure 3-5 montre la réponse d'un thermocouple de type C (W-5%Re / W-26%Re) plongé dans le corium prototypic de l'essai VE-U1 (§ 6.1.1).



Figure 3-5 : Réponse d'un thermocouple immerge dans du corium

Il faut une quinzaine de secondes pour que le capteur atteigne l'équilibre thermique avec le bain. Une modélisation analytique (Journeau et al., 1999) de l'échauffement d'une bande fine de métal, initialement à T_s plongée à l'instant t=0 dans un corium à la température T_c montre que le temps nécessaire pour approcher la température du bain de telle sorte que $(T-T_s)/(T_c-T_s)=T^*$ est donnée par :

$$t \approx \frac{e^2}{\pi} \cdot \left(\frac{\rho_s \cdot c_s}{b_c}\right)^2 \cdot \frac{1}{\left(1 - T^*\right)^2}$$

où e est l'épaisseur du capteur, $\rho_s c_s$ la chaleur sensible du capteur et b_c l'effusivité du corium.

On suit la progression de l'étalement et on mesure la vitesse de progression du front de coulée par la montée brutale en température des thermocouples positionnés à la surface de la veine d'étalement, ainsi qu'à l'aide de caméras pour lesquelles on a effectué un calibrage géométrique (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 3-6, 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 3-6 : Calibrage géométrique à l'aide de damiers.

3.2. L'INSTALLATION COLIMA

Dans l'installation COLIMA (COrium Llquide et MAteriaux), le corium est fondu dans un creuset grâce à une technique de chauffage par induction. Il est ensuite maintenu en température afin d'obtenir un état stationnaire. Le creuset a une capacité de quelques kilogrammes de corium. Il est installé dans une enceinte étanche (Figure 3-7) de 1,5 m³. Les parois de cette enceinte sont thermostatées grâce à une circulation de Gilotherm[®] pouvant atteindre 160°C, afin de pouvoir simuler les conditions accidentelles dans l'enceinte de confinement d'une centrale nucléaire (150°C, 5 bars, présence de vapeur d'eau). Une section d'essai tubulaire étanche en hafnie (Ferrier et al., 2006) est en cours de qualification afin de pouvoir utiliser un suscepteur en tungstène tout en réalisant des essais en atmosphère oxydante.



Figure 3-7: Schéma de l'installation COLIMA

Cette installation peut servir à étudier différents types de corium (en cuve ou hors cuve). Suivant les objectifs de l'essai, plusieurs configurations sont envisageables : interaction corium-matériaux (béton, céramique,...), relâchement d'aérosols (cf. § 5.2.1), estimation de propriétés du corium.

L'instrumentation de l'installation COLIMA comprend des thermocouples, des mesures pyromètriques, une visualisation par caméras vidéos et/ou thermométrie infrarouge(Figure 3-8), des prélèvements d'aérosols par impacteurs et filtres, etc. Lors d'essais relatifs aux aérosols, des mesures d'atténuation d'un faisceau laser par le nuage d'aérosols ont été développées avec UNIMECA Marseille (Figure 3-9).

Chapître 3



Figure 3-8 : Vue typique d'un creuset lors d'un essai COLIMA (AC-02) gauche : vidéo - droite : infrarouge



Figure 3-9 : Dispositif laser utilisé pour mesurer l'atténuation par le nuage d'aérosols

3.3. L'INSTALLATION VITI

L'installation VITI (Viscosité - Température Installation) a été conçue pour effectuer des mesures de viscosité et de tension de surface du corium par lévitation aérodynamique (Piluso et al., 2002). Une goutte de corium est mise en lévitation sur un film de gaz de moins de 100 µm arrivant à travers une membrane poreuse (diffuseur) qui sert aussi de suscepteur pour le chauffage par induction (Figure 3-10).



Figure 3-10: (gauche) VITI: Vue de l'installation (droite) Une goutte (d'AR Glass) en lévitation aérodynamique à 1215°C.

Suivant la valeur du nombre d'Ohnesorge :

$$Oh = \frac{\eta}{(\sigma \rho R)^{0.5}}$$

la mesure de la viscosité (Perez et al., 2000) s'effectue dans le mode apériodique (Oh >0.77) ou dans le mode périodique (Oh < 0.77). Dans le mode apériodique, la goutte est déformée en approchant un second diffuseur de la face supérieure de la goutte. Le diffuseur est relâché et le temps de relaxation de la goutte est inversement proportionnel à sa viscosité.

$$\eta_{\rm apériodique} = \frac{1}{3} \cdot R_{\rm po}^2 \cdot \omega_{\rm o}^2 \rho \cdot \tau$$

La forme au repos de la goutte est liée à la tension de surface et à la densité du fluide (Figure 3-11) par l'équation de Laplace :

$$\frac{\mathrm{d}\theta}{\mathrm{d}s} = -\frac{\sin(\theta)}{x} + \frac{\rho \cdot g}{\sigma} \times z + \frac{2}{\mathrm{R}_{c}}$$

qui est résolue numériquement afin d'estimer la tension de surface.

Dans le cas périodique, on excite le diffuseur avec un pot vibrant et on mesure, par traitement d'image, les déformations de la goutte. La viscosité est reliée à la largeur du pic de la première résonance par :

$$\eta_{\text{périodique}} = \frac{2\pi}{3} \cdot R_{\text{po}}^{2} \cdot \rho \cdot \Delta f$$



Figure 3-11 : Comparaison entre la forme de la goutte expérimentale (en blanc) et celle issue du calcul (en rouge) permettant d'identifier la tension de surface

Pour obtenir des hautes températures, on chauffe par induction les deux diffuseurs (en graphite). L'échantillon d'oxydes est chauffé par rayonnement depuis les deux diffuseurs et, à hautes températures, comme il devient conducteur, il y a aussi couplage électromagnétique. L'utilisation de ces deux modes de chauffage réduit les gradients de températures dans l'échantillon. De plus, une cloche en graphite entoure le dispositif d'essai et limite les pertes thermiques. Un pyromètre bi-chromatique est utilisé² pour mesurer la température de surface de la goutte. Deux caméras vidéos permettent de mesurer les rayons polaires et équatoriaux de la goutte après analyse d'image.

L'installation VITI a aussi servi à réaliser des mesures électrochimiques dans un creuset à haute température (Frolov et al., 2005). Le dispositif expérimental intègre la cellule électrochimique (trois électrodes en métaux précieux¹ et un thermocouple en tungstène-rhénium) disposés dans des gaines en céramique sur le support d'une part (Figure 3-12 gauche) et le creuset contenant le mélange d'essai disposé sur un support dans le suscepteur d'autre part. L'ensemble suscepteur-creuset est posé sur le support bas et il est recouvert d'une cloche en graphite qui assure l'homogénéisation du champ de température.





Figure 3-12 : Dispositif pour les mesures électrochimiques dans VITI

ⁱ platine ou iridium selon la gamme de température

Ce dispositif permet de réaliser des mesures électrochimiques dans des bains d'oxydes à hautes températures.

Finalement, l'installation VITI permet de réaliser toute sorte d'essais de petite échelle en atmosphère contrôlée et mettant en oeuvre des matériaux prototypiques. En particulier, c'est dans VITI que l'on a mis au point la technique de fusion thermitique du corium (Mwamba et al., 2006 ; Piluso et al., 2007) dans des creusets de zircone installés dans l'enceinte VITI.

La technique de chauffage thermitique utilise pour chauffer et fondre le corium des réactions d'oxydoréductions exothermiques telles que :

 $U_{3}O_{8} + 2.77Zr + 1.18CrO_{3} \rightarrow 3UO_{2} + 2.77ZrO_{2} + 1.18Cr$

Chapître 4 Propriétés Thermophysiques du corium

Afin de déterminer les propriétés physiques d'un corium, il est nécessaire (Journeau et al., 2004) d'estimer les phases en présence, leurs compositions et leurs concentrations relatives, ainsi que la répartition spatiale de ces phases (ségrégation macroscopique ou microscopique).

La première étape consiste à déterminer à la température d'intérêt les phases en présences et leur proportion. En faisant l'hypothèse d'un équilibre thermodynamique, ceci peut être obtenu à partir d'un diagramme de phase pour des mélanges simples - comme des (pseudo) binaires ou ternaires) - ou en se servant d'un logiciel de minimisation de l'énergie de Gibbs et d'une base de donnée, telle que NUCLEA (de Bremaecker, 2001). Ce type de calcul fournit :

- Les proportions des phases à l'équilibre pour un triplet composition, température, pression donné ;
- La composition de chaque phase (Certaines phases sont des composes définis, tels que, par exemple la zircone monoclinique, dont la composition est invariante. D'autres sont des solutions, soit liquides, soit solides dont la concentration peut varier continûment, à l'intérieur d'un intervalle. Dans ce cas, les concentrations molaires y_i de chaque constituant de la solution sont déterminées.)

La deuxième étape a pour but de déterminer la répartition spatiale de ces phases. Plusieurs configurations ont été identifiées :

- Une suspension de cristaux solides dans un bain de liquide, comme, entre autres durant l'étalement (Ramacciotti et al., 2001) ou tout transitoire rapide ne permettant pas la macroségrégation;
- Une macroségrégation entre un bain liquide et un solide déposé en régime de front plan, comme lors des phénomènes en quasi-équilibre observés lors des phases tardives (Seiler & Froment, 2000 et Chapître 6) ;
- Une "zone pâteuse" où un liquide résiduel percole à travers des dendrites de solide ;
- Un bain stratifié où deux liquides non miscibles existent, l'un au-dessus de l'autre. Cette configuration est par exemple celle des couches de corium oxyde et métal dans les configurations en cuve et dans certaines configurations hors cuve. Des lacunes de miscibilité ont aussi été trouvées entre phases oxydes (Petrov et al., 2004);
- Une émulsion de (deux) liquides non miscibles ; cette configuration est par exemple attendue dans les situations hors cuve pour lesquelles les densités des phases métalliques et oxydes seraient assez voisines pour que les gaz de décomposition du béton puisse mélanger les deux liquides ;
- Une émulsion de gaz dans une ou plusieurs phases condensées.

La procédure pratique d'estimation des propriétés physiques est alors la suivante:

- 1. Estimation de la propriété physique recherchée pour toutes les phases présentes dans le corium considéré. Ces phases peuvent être soit des corps purs soit des solutions. Dans ce cas la propriété est estimée en prenant en compte la contribution de chacun des constituants de la solution.
- 2. Estimation de la propriété apparente pour le corium en appliquant des lois de mélange adaptées à la configuration des phases du corium.

4.1. MASSE VOLUMIQUE

4.1.1. Masse volumique des corps purs

Nous avons mené une revue des données publiées sur les masses volumiques des constituants: UO_2 , U, ZrO_2 , Zr, Fe, Cr, Ni, SiO_2 , Al_2O_3 , MgO, CaO, Fe_2O_3 , FeO, Fe_3O_4 , $ZrSiO_4$, $USiO_4$, $FeSiO_3$. La Figure 4-1 présente les données sur la masse volumique du dioxyde d'uranium d'après Christensen (1963), Krzhizhanovsky et Stern (1973), Fink et al. (1981), Strizhov et al. (1995), Ahrens (1995), Chu et al. (1996), Fink et Pietri (1997), et Espinosa et al. (2000), ainsi que les valeurs prises dans le code MAAP (Wang et al., 1996). Les valeurs recommandées par Fink et Pietri (1997) sont en bon accord avec les données plus récentes d'Espinosa et al. (2000) et sont donc retenue.



Figure 4-1: Masse volumique de l'UO₂

Pour certains constituants, les données sont souvent rares et parfois incohérentes. Par exemple, il y a uniquement deux séries de données dans la littérature pour la masse volumique de la zircone liquide, l'une (Hohorst, 1990) donnant un liquide plus dense (5990 \pm 100 kg.m⁻³) que le solide au point de fusion, l'autre (Strizhov et al., 1995) donnant un liquide moins dense (5700 kg.m⁻³). De ce fait, il y a un besoin patent de mesure de densité de la zircone liquide (au-delà de 2983 K). Or la connaissance précise de la densité de la phase oxyde est primordiale pour apprécier la stratification observée lors des essais MASCA (Asmolov & Strizhov, 2004 et § 2.4.4.1). En effet l'addition d'acier à un mélange U-Zr-O pouvait donner lieu à une phase métallique plus dense que la phase oxyde. Afin de modéliser correctement cet effet, des mesures complémentaires de masse volumique sont nécessaires dans les sous-systèmes (U,Zr,Fe)O_x et (Fe, Cr, Ni, U, Zr).

4.1.2. Masse volumique des solutions et mélanges

Pour ce qui est des solutions (tant liquides que solides), nous avons fait l'hypothèse d'une indépendance des volumes molaires partiels de chaque constituant du corium par rapport à la composition de la solution et d'un mélange idéal, en l'absence de données expérimentales permettant une approche plus fine. Pour les oxydes composés à l'état solide, Kamigato (2000) a montré que l'hypothèse de mélange idéal des oxydes simples qui les constituent permet généralement une bonne estimation de leur masse volumique. Harmathy (1970) a aussi adopté cette approche pour le béton solide. Cette hypothèse a aussi été appliquée aux alliages métalliques solides avec des erreurs inférieures à 4% (Hull, 1969). Par contre, pour certains alliages métalliques à l'état liquide, Crawley (1974) a mis en évidence des écarts significatifs à l'idéalité, correspondant généralement aux compositions de solides intermétalliques.

En négligeant les volumes d'excès, le volume d'une mole de solution est donné par :

$$V = \sum_{i} y_{i} \cdot V_{i} \tag{4-1}$$

La masse volumique de la solution vaut alors :

$$\rho = \frac{\sum_{i} y_i . M_i}{\sum_{i} y_i . V_i}$$
(4-2)

Une des caractéristiques du corium est sa proportion significative en réfractaires tels que l' UO_2 qui peuvent faire part de solutions liquides à des températures aussi basses que 1500 K, alors que le point de fusion de l' UO_2 est de 3120 \pm 30 K (Fink et Pietri, 1997). Nous avons donc dû définir un volume molaire partiel pour des constituants bien en dessous de leur point de fusion en tant que corps pur. Deux approches ont été proposées : soit on considère que le coefficient de dilatation thermique reste constant (et égal à sa valeur au point de fusion) en dessous du point de fusion, soit on considère une masse volumique constante en dessous du point de fusion. Pour l' UO_2 , ces deux approches diffèrent de 1500 kg.m⁻³ à 1500 K !

Nous avons retenu la première approche (coefficient de dilatation constant) en l'absence de données expérimentales permettant une meilleure identification des volumes molaires partiels. Elle est confirmée par des mesures de densité d'oxydes (Glorieux et al., 1999) et de métaux (Paradis & Rhim, 1999) surfondus. Nous l'avons validée partiellement sur les mesures par Gardie (1992) de la densité d'alliages fondus U-Fe. La Figure 4-2 montre un bon accord entre les valeurs expérimentales à 1300 et 1900 K et la loi de mélange, bien qu'il y ait plus de 500 K entre le point de fusion du fer (1809 K) et la température la plus froide.



Figure 4-2: Masse volumique d'alliages U-Fe à 1300 et 1900 K.

Pour ce qui est des mélanges de plusieurs phases (émulsions, zones pâteuses), nous proposons d'utiliser la même loi de mélange (sans volume d'excès) que pour les solutions.

4.2. LA RHEOLOGIE DU CORIUM

L'étalement et la convection sont pilotés en grande partie par les changements de rhéologie du corium dus à son refroidissement. C'est pourquoi, l'étude de la rhéologie du corium a constitué un élément important de ce travail de recherche (cf. Ramacciotti, 1999, Ramacciotti et al. 2001, Jeulain, 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. En effet, la silice joue un rôle singulier pour la rhéologie de ces bains, à cause de la formation de réseaux. 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.

4.2.1. Rhéologie des phases liquides

4.2.1.1. 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 :

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

où K est un préfacteur multiplicatif, Q_n est une énergie d'ctivation (en J/mol), M est la masse molaire (en kg/mol) et V le volume molaire (en m³/mol) qui sont calculés, dans le cas de mélanges, à l'aide des relations:

$$M = \Sigma_i y_i M_i$$
(4-4)

$$V = \Sigma_i y_i V_i = \Sigma_i y_i M_i / \rho_i$$
(4-5)

Dans lesquelles y_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 (4-3). 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 :

$$\eta = K. (M.T_m)^{1/2} V^{-2/3}$$

(4-6)

Notons aussi 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) :

$$Q_n (J/mol) = 2,65.T_m (K)^{1,27}$$
 (4-7)

Dans le cas des mélanges d'oxydes, il a été montré par Sudreau & Cognet(1997) que ni la formule proposée par Hirai et al. (1993), 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 :

 $Q_n = \Sigma_i y(i) Q(i)$ (4-8)

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. (4-7) pour les espèces métalliques et pour la chaux et la magnésie, ou sont prises égales à 36,36 kJ.mol⁻¹ pour la wüstite (Mills & Keene, 1997) et, par extension, pour l'hématite, à 514,4 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 4-3, le préfacteur K proposé par Hirai et al. (1993), dans le cas des alliages métalliques, $0,171.10^{-6} \text{ kg}^{\frac{17}{2}}.\text{m.K}^{-\frac{17}{2}}.\text{s}^{-1}$.

Sinon, pour les mélanges liquides de type oxyde, on recommande celui de Nazaré et al. (1976) : $0,194.10^{-6} \text{ g}^{\frac{17}{2}}.\text{m.K}^{-\frac{17}{2}}.\text{s}^{-1}.$

Ces corrélations ont été validées sur les données expérimentales réalisées sur des mélanges UO_2 - ZrO_2 -Zr(O) par Abalin et al. (2000).

4.2.1.2. 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 ions complexes tels que $Si_3O_9^{6-}$, $Si_4O_{12}^{8-}$, $Si_6O_{15}^{6-}$, etc. (Figure 4-3). Urbain (1972) en a déduit qu'il existe des équilibres du type :

 $SiO_4^{4-} + Si_nO_{3n+1}^{2(n+1)-} \leftrightarrow Si_{n+1}O_{3n+4}^{2(n+2)-} + O^{2-}$ (4-9) 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

viscosité élevée que l'on observe pour les bains riches en silice. Par contre, après cristallisatio n'a pas observé ces structures lors de l'analyse des échantillons de corium.



Figure 4-3 : Représentation spatiale des anions silicium (point 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 4-4 : Rôle des ions alcalino-terreux (M²⁺) 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 (SiO₄⁴⁻ dans notre cas) qui forment des structures tridimensionnelles ;
- Les modificateurs (tels que Na⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, Fe²⁺, Cr³⁺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) :

$$\equiv Si - O - Si \equiv + M_2 O \iff \equiv Si - O^{-} M^{+} + M^{+} O^{-} Si \equiv$$
(4-10)

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 4-4) selon les deux mécanismes suivants :

$$\equiv Si - O - Si \equiv + MO \leftrightarrow \equiv Si - O - M - O - Si \equiv$$

et
$$\equiv$$
Si-O-Si \equiv + MO \leftrightarrow 2(=Si-O⁻) + M²⁺ (4-11)

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 (Al³⁺, Fe³⁺) 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 coriumbéton 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 U⁴⁺ et Zr⁴⁺, éléments constitutifs du corium pour lesquels on dispose de peu de données, car ils 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) :

$$\eta = 0, 1.AT \exp(1000B / T)$$

(4-12)

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 :

Pour le paramètre B, Urbain (1987) a proposé l'abaque de la Figure 4-5, que l'on peut approcher par :

 $B = B_0 + B_1 \cdot N + B_2 \cdot N^2 + B_3 \cdot N^3$ Où
N est la somme des fractions molaires de formateursⁱ,
(4-14)

 X_{M} celle des modificateurs et X_{A} des amphotères.

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

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

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

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

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



Figure 4-5 : Abaque d'Urbain (1987) pour le paramètre B de la formule (4-14) SiO_2 représente les formateurs, CaO les modificateurs et Al_2O_3 les amphotères.

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



Figure 4-6 : Validation de la loi empirique d'Urbain (1987)

Nous avons vérifié (Richardson, 1999, Journeau et al., 2000, Figure 4-6) la validité de la corrélation (4-13) 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, 0,1 à 0,6% Fe₂O₃, 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 vérifient la corrélation (4-13) mais ne suivent pas l'abaque de la Figure 4-5.

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 - UO_2 dont Leibowitz et al. (1974) ont mesuré la viscosité, cette modélisation permet de la recalculer d'une manière satisfaisante en supposant que l' UO_2 est un modificateur de réseau (Figure 4-7). Ceci est conforme à la classification de Hudon & Baker (2002), puisque le rayon ionique d' U^{4+} est de 89 pm en coordination 6 et 100 pm en coordination 8.



Figure 4-7 : Comparaison mesure- estimation pour des mélanges basalte -UO₂

Pour ce qui est de Zr^{4+} , en l'absence de données sur des silicates avec des teneurs significatives en zircone, nous avons choisi de le classer comme modificateur, en suivant Urbain et al. (1981) - bien que la plus grande concentration en zircone 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 zircone. 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(§ 4.2.1.2) 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 Sichem (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 :

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

(4-15)

où ρ est la masse volumique du mélange M est la masse moléculaire du mélange N est la constante d'Avogadro, $N = 6,02.10^{23}$ mole⁻¹ h est la constante de Planck, $h = 6,6265.10^{-34}$ N.m.s T représente la température en K R est la constante des gaz parfaits, R = 8,31 J.K⁻¹.mol⁻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 étendu par Ramacciotti.

4.2.2. Rhéologie des mélanges 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. Cette approche ne n'applique évidemment pas dans le cas de la macroségrégation entre phase liquide et solide (cf. Chapître 7 et Seiler & Froment, 2000) pour lequel le liquide ne contient pas de solide en suspension.

La viscosité des suspensions de sphères peut servir de modèle simplifié à la base de notre étude. Depuis Einstein (1911), de nombreux auteurs ont proposé 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 4-1 récapitule ces différentes lois. Certaines ont été dérivées théoriquement alors que d'autres ne sont que des corrélations.

| Auteur(s) | Expression | |
|-----------------------------|---|--------|
| Einstein (1911) | η _{rel} ≈ 1 + 2,5 φ | (4-16) |
| Arrhenius (1917) | $\eta_{rel} \approx e^{2.5\phi}$ | (4-17) |
| Roscoe (1952) | $\eta_{rel} \approx (1 - \phi / \phi_{emp})^{-2.5}$ | (4-18) |
| Mooney (1951) | $\eta_{rel} \approx e^{rac{2.5\phi}{1-\phi/\phi_{emp}}}$ | (4-19) |
| Krieger & Doughearty (1959) | $\eta_{rel} \approx (1 - \phi / \phi_{emp})^{-2.5\phi_{emp}}$ | (4-20) |
| Thomas (1965) | $\eta_{rel} \approx 1+2,75\phi+10,05\phi^2+0,00273e^{16.6\phi}$ | (4-21) |
| Chong et al. (1971) | $\eta_{rel} \approx \left(1 + \frac{0.75 \cdot \phi / \phi_{emp}}{1 - \phi / \phi_{emp}}\right)^2; \phi_{emp} = 0.55$ | (4-22) |
| Batchelor (1977) | | (4-23) |
| | $\eta_{rel} \approx 1+2.5\phi +6.2\phi^{-2}$ | |
| Brady (1993) | $\eta_{rel} \approx 1.3 \ (1 - \phi / \phi_{emp})^{-2}$ | (4-24) |

4.2.2.1. Synthèse bibliographique

 $\begin{array}{l} \mbox{Tableau 4-l: Lois de viscosités pour des suspensions de sphères dures;} \\ \phi : fraction volumique de solide, \\ \eta_{rel}: viscosité relative (\eta/\eta_{liquide}) \end{array}$

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. 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 4-8).

Deux configurations académiques sont étudiées généralement pour les semi-solides : soit le semisolide 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 constante) 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.



SHEAR RATE, s1

Figure 4-8 : 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:

$$\eta = 0.34 e^{13,08\phi} \dot{\gamma}^{-0.6} \tag{4-25}.$$

Turng & Wang (1989) ont indiqué la relation :

 $\eta_{rel} = e^{16\phi}$

(4-26)pour des semi-solides (Sn-15%massePb et Zn-27%masseAl-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 4-1.

4.2.2.2. Modèle de Rammacciotti.

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

(4-27)

 $\eta_{rel} = e^{2.5.C.\phi}$ 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 (Journeau, 2006) 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 facon 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 tholeïtique 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 4-I) ne peuvent pas représenter la viscosité d'un tel système, contrairement à la relation de Ramacciotti, avec C= 7,5 dans ce cas.



Figure 4-9 : Viscosité relative de basaltes tholéitiques. 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 (Mg₃Al₂Si₃O₁₂) 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 (4-18) reproduit bien les données expérimentales (Figure 4-10). Ceci est une indication de l'importance de la façon dont les solides sont formés pour la viscosité de la suspension semi-solide.



Figure 4-10 : Comparaison des mesures de viscosité relative de Lejeune & Richet (1995) pour une suspension d'enstatite 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 4-11 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.





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% UO₂, 19,95\% ZrO₂, 21,51% SiO₂, 4,2% CaO, 1,26% Al₂O₃, 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 dans Journeau et al., 2001) a permis d'obtenir la composition de la phase liquide, et donc sa viscosité selon le modèle d'Urbain étendu décrit dans le paragraphe 4.2.1.2, et la fraction volumique de solide.



Figure 4-12 : 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 approchée par la corrélation de Ramacciotti (4-27) avec un coefficient de corrélation supérieur à 0,8. La Figure 4-12 montre l'évolution du coefficient C de cette corrélation en fonction du taux de cisaillement.

Ramacciotti et al. (2001) ont 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.

4.2.2.3. 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 4-13 (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 4-11.

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 (650 s⁻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 4-13: 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 4-12). 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 aux limites et des données expérimentales, nous avons cherché, par optimisation au sens des moindres carrés, une expression de la forme :

$$C = 1 + \left(\frac{\dot{\gamma}_c}{\dot{\gamma}}\right)^n \tag{4-28}$$

On obtient alors :

$$C = 1 + \left(\frac{942}{\dot{\gamma}}\right)^{0.77}$$
(4-29)

Le cisaillement critique de l'expression (4-29) 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 4-13. 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 4-12) suit la corrélation :

$$C = 1 + \left(\frac{325}{\dot{\gamma}}\right)^{0.31}$$
(4-30)

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

4.2.2.4. 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 ?).

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 cisaillé au cours du refroidissement (Jeulain, 2001b). Le bain fondu est maintenu par capillarité entre deux disques tournants. Les particules solides sont mises en évidences grâce à une lumière polarisée (Figure 4-14). La vitesse de refroidissement est fixée à 1.8° C/min et les cisaillements sont compris entre 0 et 70 s⁻¹, pour le rayon correspondant à la fenêtre de visualisation.



Figure 4-14 : Dispositif permettant l'observation des nitrates lors de leur solidification sous cisaillement (Université du Maine)

En l'absence de tout cisaillement, l'apparition de la phase solide entraîne la croissance de dendrites colonnaires (unidirectionnelles). Cette microstructure (Figure 4-15 gauche) 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 4-15 droite). 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 4-15: 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. 4.16 a et c). Au cours du refroidissement, le nombre de particules (notamment des petites, inférieures à 100 microns) augmente avec le cisaillement (Figure 4-16b et d), ce qui permet de confirmer les résultats de Wang & Shu (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 4-16d). 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 4-16b). 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 4-16 : 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 quelles que 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.

4.2.3. Méthodologie pour l'estimation de la viscosité

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 4-17 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 § 4.2.1.1, s'il y a moins de $5\%_{masse}$ de silice, ou du modèle d'Urbain étendu au §4.2.1.2, 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 §4.2.2.2 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) :

$$\boldsymbol{\eta}_r = \frac{\boldsymbol{\eta}}{\boldsymbol{\eta}_c} = 1 + \frac{5K+2}{2(K+1)}\boldsymbol{\phi}$$
(4-31)

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 (Journeau et al., 2003) 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 Llewellin et al. (2002) :

$$\boldsymbol{\eta} = \boldsymbol{\eta}_0 \left(1 + 9 \boldsymbol{\phi} \right) \tag{4-32}$$

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



Figure 4-17 : Méthodologie d'estimation de la viscosité apparente du corium

Chapître 5 Relâchement et Transport des Aérosols

5.1. CONTEXTE

La singularité d'un accident grave, susceptible de survenir sur un réacteur nucléaire, par rapport à toute autre installation industrielle non nucléaire tient à la potentialité d'émission massive de produits radioactifs dans l'environnement et aux conséquences radiologiques associées. Les produits de fission (*PF*) en constituent la source principale et leur relâchement en cuve, souvent appelé terme source, est la première étape à appréhender.

Les PF sont créés pendant l'irradiation selon un rendement spécifique à chacun d'entre eux et dépendant au second ordreⁱ du type de fission (thermique sur ²³⁵U ou ²³⁹Pu, rapide sur ²³⁸U ...). Porté par les PF stables et les PF radioactifs de période longue, leur inventaire s'accroît de façon quasilinéaire en fonction du taux de combustion, à raison d'environ 75 kg/(GWj/t), soit 2 tonnes de PF créés dans un cœur de REP-900 à l'équilibre. Le Tableau 5-I fournit de façon synthétique le détail de cet inventaire pour chaque PF et chaque noyau lourd, ainsi que l'évolution de l'activité totale du cœur, depuis l'arrêt du réacteur jusqu'à un mois.

Dans les conditions nominales d'irradiation en REP, les PF vont se retrouver dans la matrice combustible selon des états chimiques divers (Kleykamp, 1985):

- sous forme <u>d'oxydes dissous</u>, pour près de la moitié d'entre eux, en particulier pour Sr, Y, Zr, La, Ce, Nd;
- sous forme de <u>précipités de PF oxydes</u> : Ba et Nb principalement ;
- sous forme de <u>précipités de PF métalliques</u> : Mo, Tc, Ru, Rh, Pd ;
- l'état chimique des <u>PF volatils</u> (Br, Rb, Te, I, Cs) n'est pas complètement clarifié à ce jour. La majorité se trouve probablement sous forme d'atomes dissous et, au-delà d'une certaine température, peut migrer radialement pour aller se condenser dans les zones plus froides. L'hypothèse de formation de composés définis, tels que CsI, Cs₂MoO₄ ou des uranates de césium, a été souvent formulée, mais n'a pas été confirmée expérimentalement ;
- sous forme d'atomes dissous ou de bulles de gaz localisées en positions inter ou intra granulaires pour les gaz de fission, xénon et krypton. A noter que la fraction accumulée sous forme de gaz aux joints de grains est la plus accessible au relâchement en situation accidentelle.

ⁱ A noter cependant que pour certains PF, par exemple le ruthénium, le rendement de fission peut varier d'un facteur 2 (¹⁰³Ru) à 10 (¹⁰⁶Ru) selon que les fissions ont lieu sur ²³⁵U ou ²³⁹Pu.

| | | Activités en fraction de l'activité totale | | | |
|-----------------|----------------|--|------------|------------|-----------|
| Produits de | Masse totale à | l à l'All à 1 heure à 1 iour à 1 mois | | | |
| fission | l'AU en kg (2) | aiAo | arneure | a i joui | a 1 11013 |
| As | 7,39E-03 | 0,20% | 0,01% | 0,00% | 0,00% |
| Se | 3,14E+00 | 0,58% | 0,02% | 0,00% | 0,00% |
| Br | 1,16E+00 | 1,17% | 0,20% | 0,00% | 0,00% |
| Kr | 2,21E+01 | 2,32% | 1,46% | 0,03% | 0,06% |
| Rb | 2,03E+01 | 3,22% | 0,84% | 0,01% | 0,00% |
| Sr | 5,51E+01 | 4,50% | 3,85% | 2,57% | 6,10% |
| Y | 2,89E+01 | 5,84% | 5,11% | 3,40% | 8,16% |
| Zr | 2,10E+02 | 4,73% | 3,83% | 4,63% | 10,30% |
| Nb | 3,24E+00 | 7,09% | 5,68% | 5,93% | 13,18% |
| Мо | 1,84E+02 | 4,28% | 2,28% | 2,90% | 0,01% |
| Tc | 4,52E+01 | 4,82% | 2,50% | 2,77% | 0,01% |
| Ru | 1,37E+02 | 1,85% | 3,11% | 3,67% | 10,27% |
| Rh | 2,36E+01 | 2,30% | 3,42% | 4,96% | 10,26% |
| Pd | 5,93E+01 | 0,19% | 0,33% | 0,18% | 0,00% |
| Ag | 3,97E+00 | 0,14% | 0,11% | 0,12% | 0,05% |
| Cd | 4,00E+00 | 0,03% | 0,02% | 0,01% | 0,00% |
| In | 8,20E-02 | 0,13% | 0,03% | 0,01% | 0,00% |
| Sn | 2,65E+00 | 0,66% | 0,15% | 0,02% | 0,01% |
| Sb | 8,98E-01 | 1,76% | 0,68% | 0,17% | 0,06% |
| Те | 2,62E+01 | 3,85% | 4,16% | 2,88% | 0,69% |
| I | 1,27E+01 | 5,70% | 8,94% | 6,39% | 0,65% |
| Xe | 3,07E+02 | 4,33% | 3,60% | 5,12% | 0,41% |
| Cs | 1,61E+02 | 3,82% | 1,27% | 0,46% | 1,61% |
| Ba | 8,21E+01 | 4,67% | 3,75% | 3,46% | 3,45% |
| La | 6,99E+01 | 4,71% | 5,22% | 3,57% | 3,25% |
| Ce | 1,63E+02 | 3,61% | 5,04% | 7,41% | 16,01% |
| Pr | 6,21E+01 | 3,10% | 4,63% | 5,49% | 11,76% |
| Nd | 2,07E+02 | 0,68% | 1,07% | 1,25% | 0,82% |
| Pm | 1,24E+01 | 0,65% | 1,22% | 1,65% | 1,48% |
| Sm | 3,57E+01 | 0,21% | 0,46% | 0,54% | 0,00% |
| Eu | 8,90E+00 | 0,08% | 0,19% | 0,29% | 0,36% |
| Actinides | | | | | |
| U | 6,99E+04 | 9,37% | 3,91% | 0,00% | 0,00% |
| Np | 3,15E+01 | 9,37% | 22,76% | 29,86% | 0,02% |
| Pu | 5,89E+02 | 0,05% | 0,11% | 0,19% | 0,80% |
| Am | 6,18E+00 | 0,00% | 0,00% | 0,00% | 0,00% |
| Cm | 2,09E+00 | 0,01% | 0,03% | 0,06% | 0,21% |
| | | 5 01E 120 | 2 425 - 20 | 1 20E 1 20 | 2 20E 10 |
| i otal activite | (Þq) | 5,91⊏+20 | ∠,4∠⊏+20 | 1,39⊑+20 | 3,30⊑+19 |

Evolution de l'activité des produits de fission et actinides dans un REP 900 MWe (1) après l'arrêt

 (1) : REP UO2 900 MWe à 3,70% de 235U - 72,5 tonnes d'U intitial Chargement par quart de cœur en fin de vie : 10,5 - 21 - 31,5 - 42 GWJ/tU Tous PF et actinides présents dans le cœur (pas d'hypothèse de relâchement)
 (2) : Eléments stables et radioactifs

Tableau 5-I : Evolution de l'activité des produits de fission et actinides dans un REP 900 MWe(1) après l'arrêt. (Tenaud et al, 2006)

En situation d'accident grave, les PF vont jouer plusieurs rôles :

- les PF radioactifs et, en particulier, ceux de période courte, sont minoritaires en masse mais porteurs de l'essentiel de la radioactivité et de la puissance résiduelle :
 - les plus volatils d'entre eux sont relâchés de la cuve, transportés et partiellement déposés dans le circuit primaire puis dans l'enceinte, d'où ils peuvent atteindre l'extérieur par les chemins de fuite et ainsi contaminer l'environnement. Les isotopes les plus radiotoxiques sont, dans ce cas, ¹³³Xe, ¹³²Te, ¹³²I, ¹³¹I dans le court terme, et ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs dans le long terme et potentiellement le ruthénium (¹⁰³Ru à moyen terme et ¹⁰⁶Ru à plus long terme) pour des scénarios particuliers d'accident avec entrée d'air dans le cœur,
 - les PF non volatils restent liés au corium (²³⁹Np, ¹⁴⁰La dans le court terme, ⁹⁵Zr, ⁹⁵Nb, ¹⁴⁴Ce dans le moyen et long terme) et provoquent l'échauffement et la fusion du cœur, si celui-ci n'est pas suffisamment refroidi,

les PF stables, majoritaires en masse, ont un effet pénalisant vis-à-vis de la dégradation du cœur parce que, d'une part, la formation d'eutectiques UO₂-PF a tendance à abaisser la température de fusion (Pontillon et al., 2005), la concentration en PF dans le combustible n'étant pas négligeable à fort taux de combustion (supérieure à 10% atomique au-delà de 50 GWj/t) et, d'autre part, l'action de la pression exercée par les gaz de fission peut provoquer la rupture des joints de grains et causer la formation de débris de combustible.

La majorité des essais relatifs au relâchement et au transport des aérosols ont lieu soit en pile (§ 2.2), soit en cellule blindée avec du combustible irradié (§ 2.3). Néanmoins, des essais en matériaux prototypiques (pour lesquels on conserve la composition chimique du corium, mais pas la composition isotopique) ont tout leur intérêt pour étudier le relâchement d'aérosols par un bain et pour l'étude du transport de ces derniers.

5.2. RELACHEMENT DES AEROSOLS AU-DESSUS D'UN BAIN DE CORIUM

5.2.1. Description de l'essai CA-U3

L'essai COLIMA CA-U3 (Piluso et al., 2005b ; Godin-Jacqmin et al., 2006) a été réalisé pour étudier le relâchement et le transport d'aérosols au-dessus d'un bain de corium oxyde, représentatif d'un réacteur VVER-440 à 35 MWj/kgU, 24 heures après le début d'un accident grave. Cet essai a été réalisé avec des visiteurs scientifiques bulgares (Université Technologique de Sofia, Institut de Recherche Nucléaire et d'Energie Nucléaire de l'Académie des Sciences Bulgares et Centrale Nucléaire de Kozloduy) dans le cadre du projet européen d'accès transnational à la plate-forme PLINIUS (Journeau, 2006b).

Le Tableau 5-II présente la composition du corium, qui inclut des prototypes des produits de fission peu volatils ou non volatils présents dans la phase oxyde du corium. Des calculs thermodynamiques réalisés avec le logiciel de minimisation de l'énergie de Gibbs GEMINI2 et la base de données NUCLEAiv061 (de Bremaecker et al., 2001) indiquent que la température de liquidus de ce corium est voisine de 2620°C. La charge a été introduite dans un creuset en tungstène sous la forme de pastilles d'UO₂ et de poudres, pour les autres oxydes (Figure 5-1).

| Formule chimique | Masse | Fraction massique | Fraction molaire |
|---|----------|-------------------|------------------|
| | (g) | (%) | (%) |
| Fe ₂ O ₃ | 21.02 | 1.2% | 3.3% |
| Cr ₂ O ₃ | 0.57 | 0.03% | 0.09% |
| ZrO ₂ | 260.00 | 14.7% | 26.5% |
| Nb ₂ O ₅ | 2.78 | 0.16% | 0.3% |
| UO ₂ (pastilles) | 1 485.55 | 83.9% | 68.0% |
| SrO 97% | 1.85 | 0.10% | 0.2% |
| BaO | 3.01 | 0.17% | 0.2% |
| TeO ₂ | 1.19 | 0.07% | 0.1% |
| Nd ₂ O ₃ | 6.17 | 0.35% | 0.5% |
| CeZrO ₄ | 9.64 | 0.54% | 0.4% |
| Pr ₂ O ₃ | 2.34 | 0.13% | 0.2% |
| Y ₂ O ₃ | 1.06 | 0.06% | 0.1% |
| Rh ₂ O ₃ | 0.96 | 0.05% | 0.1% |
| La ₂ O ₃ | 2.56 | 0.14% | 0.2% |
| Rapport UO ₂ /ZrO ₂ | 5.71 | | |
| Masse totale | 1798.70 | | |

| Tableau 5-II : | Composition d | lu bain de | corium initial | lors de l'es | ssai CA-U3 |
|----------------|---------------|------------|----------------|--------------|------------|
|----------------|---------------|------------|----------------|--------------|------------|



Figure 5-1 : Charge CA-U3 dans son creuset, avant l'essai

La charge est chauffée par induction selon la technique du creuset chaud. Dans un premier temps, la charge est chauffée jusqu'à dépasser le liquidus. Ensuite, un plateau de température a été maintenu afin d'analyser les aérosols émis au-dessus du bain. La température du corium est mesurée par pyrométrie (Figure 5-2) visant soit le creuset soit la surface du corium. Ce dernier pyromètre a été fortement perturbé par les relâchements d'aérosols.

La phase de montée en température a duré 3h30 et a été suivie par un plateau de 50 minutes à 2760°C.

Un débit de gaz (Ar, $2\%H_2$) de 10 NL/minutes (sous 4 bars absolus) a été maintenu lors de la plus grande partie de l'essai. Les aérosols transportés par les gaz se sont déposés sur un tube métallique à gradient thermique (Figure 5-3) placé au-dessus du creuset puis ont été recueillis par deux filtres dédiés respectivement à la phase de montée en température et aux 45 premières minutes du plateau. Lors des cinq dernières minutes de l'essai, les aérosols ont été collectés en fonction de leur taille dans des impacteurs en cascade (Figure 5-4). Le débit de gaz avait été augmenté à 24 NL/min sous 3 bars.



Figure 5-2 : Evolution du chauffage lors de l'essai CA-U3





Figure 5-3 : Tube à Gradient Thermique gauche : vue d'ensemble - droite : coupe après l'essai de la partie inférieure en tungstène

5.2.2. Les impacteurs



Figure 5-4 : Impacteurs gauche : diffuseur, centre : cascade d'impacteurs, droite : collecteurs pour des diamètres aérodynamiques de 1,1-2,1, 0,7-1,1 et 0,4-0,7 μm

Le principe des impacteurs utilise l'inertie des particules pour les classer en fonction de leur taille. L'écoulement contourne un obstacle et les particules avec suffisamment d'inertie ne vont pas suivre les lignes de courant tandis que les plus petites resteront dans l'écoulement ^{(Boulaud} et al., 1980, Nichols & Mitchel, 1983, Marples et al., 1993). Le nombre de Stockes St permet de discriminer les particules qui vont impacter le collecteur de celles qui suivront les lignes de courant :

$$St = \frac{\rho_p C d_p^2 U}{9nD}$$

| | כווינ | | |
|------|----------|---|---------------------------------|
| avec | ρ_p | = | masse volumique de la particule |
| | C | = | facteur de glissement |
| | dp | = | diamètre de la particule |
| | U | = | vitesse moyenne du gaz |
| | η | = | viscosité du gaz |
| | D | = | diamètre du diffuseur |
| | | | |

La racine carrée du nombre de Stockes peut être considérée comme un diamètre adimensionné. Pour un impacteur donné, les paramètres du gaz (C, U, η , W) étant fixés, ont définit le diamètre

aérodynamique comme $d(\rho_p/\rho_0)^{-1/2}$, de telle sorte que les particules de même diamètre aérodynamique auront le même nombre de Stockes et impacteront le même étage de la cascade d'inducteurs.

Le gain de masse de chaque étage d'impacteur a été mesuré et la composition des particules recueillies sur les collecteurs de 5 étages d'impacteurs a pu être analysée par spectrométrie à dispersion d'énergie (Figure 5-5). A partir de ces compositions, on a pu estimer la masse volumique des aérosols et convertir les diamètres aérodynamiques en diamètres géométriques¹. Le diamètre moyen est inférieur à 1 µm. Seuls certains éléments ont atteint l'impacteur : de l'uranium, du fer, du baryum et du tellure, ainsi que des traces de strontium, rhodium et praséodyme.



Figure 5-5 : Analyse des aérosols recueillis par les impacteurs

5.2.3. Filtres

Durant les trois phases de l'essai, des filtres ont permis de collecter les aérosols sortant du tube à gradient thermique. Le Tableau 5-III présente les gains de masse pour les trois filtres correspondant aux trois phases de montée en température, de plateau à 2760°C et lors de la collecte dans les impacteurs (5 minutes).

| Filtre | Masse initiale | Masse finale | Dépôt |
|------------------------------|----------------|--------------|-------|
| 1 (Impacteur ⁱⁱ) | 93 mg | 97 mg | 4 mg |
| 2 (chauffage) | 95 mg | 149 mg | 54 mg |
| 3 (plateau) | 95 mg | 143 mg | 48 mg |

Tableau 5-III : Pesée des filtres de CA-U3

Des analyses par spectrométrie de dispersion d'énergie ont été réalisées sur les filtres 2 et 3. Lors de la phase de chauffage (filtre 2, Figure 5-6 gauche), on observe des objets lamellaires de relativement grande taille (typiquement 600 x 200 μ m). Le corps de ces objets est riche en tellure (et en praséodyme) alors que les cotés sont enrichis en tungstène, fer, rhodium, lanthane, cérium et néodyme. Pour le filtre 3 (Figure 5-6 droite), correspondant au plateau à haute température, la taille des particules est plus fine. Les principaux éléments sont le tungstène et l'oxygène, avec comme mineurs, le fer et le tellure, ainsi que des traces de rhodium, néodyme, chrome, strontium, yttrium et baryum.

ⁱ En supposant les particules sphériques... ce qui est une hypothèse forte, comme le montre la Figure 5-6

ⁱⁱ Ce filtre ne recevait que la partie de l'écoulement ne passant pas vers l'impacteur.



Figure 5-6 : Micrographies au MEB des particules recueillies par les filtres 2(g.) et 3 (dr.)

5.2.4. Tube à Gradient Thermique

Les tubes à gradient thermiques ont été tronçonnés (Figure 5-3) et une attaque chimique a été réalisée pour dissoudre les produits de fission. La composition élémentaire a été obtenue par spectroscopie d'émission atomique couplée à un plasma inductif (ICP-AES). Seuls trois éléments de la charge (l'uranium, le fer, le chrome et le nickel) ont été retrouvés. Il n'a été possible que d'obtenir des données semi-quantitatives. La Figure 5-7 présente l'évolution des dépôts sur la partie basse en tungstène du tube à gradient thermique, entre la zone 1 (en bas, autour de 700°C) et la partie haute (autour de 500°C) on note une évolution de la nature des aérosols déposés. L'uranium s'est déposé principalement dans la zone 3 autour de 600°C, alors que les vapeurs de fer se sont déposées principalement dans partie la plus chaude du tube. Il faut noter qu'aucun produit de fission n'a été détecté sur ces tubes.







5.2.5. Analyse du corium après l'essai

Deux échantillons représentatifs du bain de corium ont été analysés par spectrométrie de dispersion d'énergie. On a trouvé dans le corium solidifié, deux familles de solutions solides :

- Une phase riche en uranium (U_{0.8}Zr_{0.2}O₂) dans laquelle on trouve du lanthane et du cérium en solution solide occupant environ 95% en volume des échantillons ;
- Une phase riche en zirconium $(U_{0.4}Zr_{0.6}O_2)$ dans laquelle sont dissous de l'yttrium, du fer et du strontium (environ 5% volume).

D'après les analyses effectuées, il n'y a pas eu de recondensation significative au niveau de la croûte froide du corium ni sur le creuset en tungstène.
En comparant les compositions initiales et finales, on en déduit que :

- Tout le chrome, le praséodyme, le rhodium, le strontium et le tellure ont été relâchés (aux incertitudes de mesures près) lors de l'essai ;
- A peu près 50% du fer présent dans le corium(et issu de l'oxydation partielle de l'acier de structure) a été évaporé ;
- On n'a pas observé de relâchements significatifs de baryum, cérium, lanthane, néodyme, niobium ni d'yttrium.
- Un faible pourcentage d'uranium (et potentiellement de zirconium) a pu être relâché. Même si ce pourcentage est faible, vu la forte proportion d'uranium dans le bain de corium, cela peut correspondre à une masse importante d'aérosols.

5.2.6. Synthèse des analyses

Les analyses nous permettent d'établir le comportement des différents éléments de la charge :

- Le tellure a été totalement évaporé, principalement durant la phase de chauffage ;
- Le rhodium a été totalement relâché, contrairement à la volatilité limitée indiquée par Baïchi (2001);
- Le chrome a été totalement relâché et a été collecté sur les tubes à gradients thermiques ;
- 50% du fer a été relâché. Du fer a été trouvé dans tous les échantillons analysés.
- La plupart du strontium a été relâché du bain (contrairement au taux de 10% cité par Baïchi, 2001) et a été collecté sous forme d'aérosols de l'ordre de 0,3 μm. L'écart avec le taux de relâchement plus faible obtenu lors de l'essai Phébus FPT1 met en exergue le rôle du molybdène, absent de CA-U3, comme stabilisateur des oxydes de strontium (Dubourg et al., 2005);
- Il n'y a pas eu de relâchements de baryum, lanthane ni cérium (semi-volatils) ;
- Il n'y a pas eu de relâchements significatifs d'yttrium ni de néodyme (peu volatils) ;
- Il n'y a eu aucun relâchement de zirconium ni de niobium (aucune trace détectée hors du bain) ;
- Une faible proportion d'uranium a été relâchée. C'est néanmoins l'élément le plus présent avec le fer dans les aérosols, vu sa grande concentration dans le corium.

5.2.7. Comparaison expérience-calcul

Le code ELSA (Plumecocq & Guillard, 2004) est un module de l'ensemble de code accidents graves ASTEC (Allelein et al., 2005), dédié à la modélisation du relâchement des produits de fission et des éléments structuraux à partir de crayons de combustible, de lits de débris et de bains de corium. Dans la version 2.1 d'ELSA, le relâchement de 42 produits de fission et de 5 actinides est modélisé. Ils peuvent être répartis en 3 classes :

- Volatils : Xe, Kr, I, Br, Cs, Rb, Cu, Se, Te, Sb, Ag,
- Semi-volatils: Ba, Ru, Sr, La, Y, Eu, Ce, Mo,
- Peu volatils : Rh, Pd, Tc, Nb, Zr, Np, Pu, Nd, Pm, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Pr, Am, Cm, Sm, U, Zn, As, Cd, Sn, Ga, Ge, In.

Le calcul a été réalisé (Godin-Jacqmin et al., 2006) en prenant comme distribution des aérosols celle obtenue expérimentalement sur l'impacteur : loi de répartition log-normale avec une moyenne à 1,12 µm et un écart type de 1,96.

A titre d'exemple, la Figure 5-8 présente les relâchements calculés de tellure, baryum et strontium. Le relâchement de tellure débute lors de la phase de chauffage (40% relâchés à 12000s) alors que pour les semi-volatils tels que le baryum et le strontium, il y avait moins de 10% de relâchés au début du plateau. La présence de quantités significatives de tellure dans le filtre recueillant les aérosols lors de la rampe de température a été observée expérimentalement, alors que ni le strontium ni le baryum n'ont été détectés.

Un autre calcul a été réalisé en faisant l'hypothèse d'un équilibre thermodynamique entre le corium et le gaz qui a circulé dans le circuit. A l'aide du code GEMINI2 et de la base NUCLEAiv051, il a été possible de calculer la fraction de chaque élément qui est vaporisée à la température du bain. La Figure 5-9 compare les relâchements finaux estimés par ELSA et GEMINI2 aux résultats qualitatifs expérimentaux.



Figure 5-8 : Relâchements de tellure, strontium et baryum (calcul ELSA, Godin-Jacqmin et al., 2006)



Figure 5-9 : Comparaison des calculs de relâchements ELSA - GEMINI2

On peut conclure que :

- Les relâchements importants de tellure sont bien pris en compte par les deux approches ;
- Le relâchement important de strontium est bien prédit par ELSA mais est sous-estimé à partir de la base NUCLEAiv051 ;
- Inversement, le relâchement faible de baryum est bien calculé par GEMINI2 + NUCLEAiv051 alors qu'il est largement surestimé par ELSA;
- Les relâchements de fer sont bien modélisés par GEMINI2 + NUCLEAiv051 et sont par contre largement sous-estimés par ELSA.
- ELSA calcule un taux de relâchement de l'uranium très faible par rapport aux données expérimentales et au calcul thermodynamique GEMINI2 + NUCLEAiv051.
- Les faibles relâchement de cérium, néodyme, yttrium, lanthane et zirconium montrent un bon accord entre les deux calculs et l'expérience.

Ces résultats confirment l'intérêt de réaliser des essais de relâchement de produits de fission à partir de corium prototypique. Par rapport à des essais en pile ou en matériau irradié, ce type d'essai est d'une part plus aisé et d'autre part, permet d'ôter certains éléments afin de mettre en évidence leur effet (par exemple, le fort relâchement de strontium en l'absence de molybdène).

Par contre, les analyses sont paradoxalement plus délicates à réaliser du fait de l'impossibilité d'utiliser des méthodes nucléaires pour quantifier laproportion de protypes de produits de fission.

5.3. TRANSPORT DES AEROSOLS A TRAVERS LES FISSURES DE L'ENCEINTE DE CONFINEMENT

Un autre intérêt des essais de relâchement par un bain de corium est qu'il s'agit d'une source d'aérosols de produits de fission prototypique, alors que la majorité des essais relatifs au transport des aérosols s'effectue avec des simulants calibrés dont on peut craindre qu'ils n'aient pas le même comportement que les vrais aérosols de produits de fission. C'est pourquoi on envisage la réalisation dans COLIMA d'essais sur le transport d'aérosols prototypiques dans des fissures de béton (Parozzi et al., 2005).

L'enceinte de confinement en béton constituant la dernière barrière de confinement, de nombreuses études ont été menées pour modéliser le transport des aérosols à travers des fuites pouvant traverser le béton et en particulier pour quantifier la filtration à travers ces fissures. La plupart des études expérimentales ont été réalisées dans des capillaires de quelques microns à quelques millimètres de diamètre avec des pressions différentielles jusqu'à plusieurs bars (Nelson & Johnson, 1975 ; Sutter, 1979 ; Morton & Mitchell, 1995). Des essais à grande échelle ont été réalisées dans les années 1960 sous financement de la Commission à l'Energie Atomique des Etats Unis sur une maquette au cinquième d'un bâtiment réacteur, donnant un facteur de décontamination de 15 pour l'iode et de 100 pour le césium ainsi qu'une rétention quasi-totale en atmosphère humique (Hilliard & Postma, 1985). Des essais japonais à l'échelle 1 ont indiqué des facteurs de décontamination compris entre 10 et 1000 (Watanabe et al., 1986).

Des modélisations en vue de proposer un code de calcul du transport des aérosols sont actuellement en cours au CESI à Milan et à l'Institut Demokritos d'Athènes. Ces modèles nécessitent des validations expérimentales.

L'installation COLIMA permettrait de réaliser, dans le cadre du projet européen PLINIUS FP6 et en partenariat avec le cercle d'experts « CRACKS » du réseau d'excellence SARNET, un essai au cours duquel on produirait un nuage d'aérosols prototypique au-dessus d'un bain de corium qui serait transporté à travers un réseau de fissures simulées. Les caractéristiques de COLIMA permettent d'envisager une différence de pression de l'ordre de 4 bars entre les deux extrémités des fissures. La température de l'enceinte COLIMA peut être maintenue au-dessus de la température de condensation de l'eau afin de disposer, si nécessaire, d'une atmosphère humide. Les aérosols seront collectés soit directement depuis le nuage soit à travers les fissures. Ensuite, la section d'essai sera tronçonnée et les dépôts à travers les différentes fissures seront caractérisés.

Cet essai est actuellement en cours de discussion entre les partenaires européens.



Figure 5-10 : Schéma de principe d'un essai de transport à travers des fissures

5.4. LOCALISATION ACOUSTIQUE DE FUITES DANS L'ESPACE ENTRE ENCEINTES

Les réacteurs EDF de 1300 MWe et l'EPR sont confinés par une double enceinte constituée d'une paroi en béton précontraint et d'une paroi en béton armé séparées d'un *Espace Entre Enceintes* (Figure 5-11) placé en légère dépression tant par rapport au bâtiment réacteur qu'à l'ambiante.



Figure 5-11 : Coupes de l'espace entre enceintes d'un réacteur du palier N4 (d'après Thomann, 1996)

Le taux de fuite maximal admis pour l'enceinte de confinement est de 1,5% du volume d'air intérieur (80 000 m³ pour le palier N4, Thomann, 1996) par jour. Il est vérifié lors d'épreuves périodiques d'étanchéité. Lors de ces épreuves, les intervenants localisent la majorité des fuites par leur bruit.

En cas d'accident grave, la présence de produits de fission dans l'espace entre enceinte serait signalée par des détecteurs de radioactivités. Par contre, il serait souhaitable de savoir si la fuite se produit dans la partie courante du béton (on parle de fuite générique) ou au niveau de l'une des deux cent cinquante traversées de parois - sas, traversées mécaniques et électriques- (on parle alors de fuite singulière), afin de prendre certaines mesures d'isolations.

Des techniques acoustiques pourraient permettre de localiser une éventuelle fuite en cours d'accident. L'espace entre enceintes est un milieu mieux protégé et de conditions d'ambiance (température, hygrométrie, bruit de fond) beaucoup plus stables que le bâtiment réacteur. Sa géométrie particulière lui permet de plus de jouer le rôle d'un guide d'onde acoustique. Il a été retenu (Journeau et Thomann, 1993) pour y installer un dispositif de localisation de fuite, dont l'objectif est de permettre de localiser une zone de 10 x 10 m alors que la surface développée de l'enceinte interne est de plus de 10 $000m^2$.

5.4.1. Son généré par une fuite

Le son généré par un écoulement de gaz à travers une fissure est principalement dû aux variations de pression dues à l'instationnarité de l'écoulement. Goldstein (1976) décrit un jet subsonique en 3

Chapître 5

zones (Figure 5-12) : une zone de mélange, sur une distance de 3 à 5 fois le diamètre de l'évent, composée d'un cône laminaire entouré d'une zone de mélange turbulent, une zone de transition et une zone développée. Le son va être perçu comme provenant d'une source sonore de faible dimension au niveau de la zone de mélange (Morse & Ingard, 1968).



Figure 5-12 : Géométrie d'un jet subsonique froid à nombre de Reynold élevé (d'après Goldstein, 1976)

La puissance acoustique totale est donnée par (Goldstein, 1976) :

$$P = 2.10^{-5} \cdot K \cdot \rho_0 \cdot \frac{U_j^8 D^2}{c_0^5}$$

où K est une constante sans dimension de l'ordre de 1,5,

 ρ_0 est la masse volumique du milieu non perturbé,

 U_i est la vitesse du jet à la sortie de l'ouverture (voisine de la vitesse du son c_0)

D'est l'ouverture de la fissure

Pour un diamètre de 1 mm (caractéristique des fuites singulières dans les conditions d'accidents graves), on trouve une puissance totale de 1,5 mW, soit 92 dB pour une vitesse sonique.

Le spectre de pression est large bande avec un maximum correspondant à un nombre de Strouhal $(St = vD/U_j)$ égal à un. Pour la fuite considérée ci-dessus, le maximum se situe aux alentours de 100 kHz.

5.4.2. Caractérisation acoustique de l'espace entre enceintes

L'espace entre enceintes peut être considéré comme étant formé de deux guides d'ondes de révolution séparés par une ceinture torique à la transition entre parties cylindriques et hémisphériques. La théorie des rayons permet théoriquement de déterminer l'amplitude et la phase de chaque rayon issu d'une source et donc le champ acoustique dans l'espace entre enceintes. Le logiciel PRINCE (Thomann, 1996) a permis de tracer les rayons dans cet espace. La Figure 5-13 présente quelques exemples de tracés pour une source située sous la ceinture torique à proximité d'un renflement correspondant à des passages de câbles. On a pu déterminer que la partie courante et le dôme étaient pratiquement indépendants et que les passages de câbles consistaient un obstacle moins gênant à la propagation du son que la ceinture torique.



Figure 2.1 : Le programme Prince, coupe verticale, exemple de tracé



Figure 5-13 : Exemples de tracés de rayons dans l'Espace Entre Enceintes (d'après Thomann, 1996)

Une caractérisation expérimentale de la propagation acoustique a eu lieu dans les espaces entre enceinte de Chooz B et de Civaux. Les temps de réverbération mesurés à Chooz B sont compris entre les deux courbes empiriques :

 $-1.8 \log(f) + 8 < T_{60dB} < -5.9 \log(f) + 25.5$

La bande de fréquence entre 2 et 10 kHZ est la mieux adapté pour une localisation. En effet, les plus basses fréquences, avec des temps de réverbération très élevés (jusqu'à 10 s, soit 3 km de

propagation en air), ne permettent pas de localisation précise tandis que l'atténuation aux hautes fréquences est trop importante pour garantir un bon rapport signal sur bruit.

5.4.3. Méthode de localisation acoustique

Différentes méthodes de localisation acoustiques ont été testées sur la maquette SAFE constituée de 2 parois incurvées en béton, fabriquées sur le chantier de construction de la centrale de Civaux avec du béton prototypique puis dans l'espace entre enceintes de la centrale de Civaux. Il est apparu (Thomman, 1996) que les techniques classiques d'antennerie ne donnaient pas de bons résultats du fait de la très forte réverbération.

Par contre, de bons résultats ont été obtenus avec l'estimateur linéaire dit de « Barlett » (Tolstoy, 1993) :

$$P_{Bartlett}(\hat{A}, f) = F^{+}(\hat{A}, f) \cdot C(A, f) \cdot F(\hat{A}, f)$$

où C est la matrice interspectrale des signaux reçus sur l'antenne,

A la position de la source,

 \widehat{A} l'estimation de cette position,

f la fréquence et F est la fonction de transfert entre source et antenne, obtenue à partir d'un calcul de propagation, éventuellement recalé sur des mesures.

Le maximum de l'estimateur correspond à la position estimée de la source sonore.

Les causes d'erreurs sont regroupées en trois catégories : les erreurs de modélisation, dues soit à une mauvaise connaissance du milieu de propagation, soit à la présence de lobes secondaires du fait de la petite taille des antennes, les erreurs de calcul numérique et les effets d'un mauvais rapport signal sur bruit. Les antennes utilisées pour ces essais étaient composées de 4 microphones Bruel & Kjaer 1/2" espacés de 5 cm.

Alors que, lors des essais dans la maquette SAFE, une méthode géométrique simple a permis de localiser une source de bruit aérodynamique (buse reliée à une bouteille de gaz), il a été nécessaire d'utiliser l'estimateur de Bartlett pour obtenir une bonne localisation dans l'espace entre enceintes de Civaux.

Nous avons retenu une bande de fréquences utile entre 2600 et 3600 Hz, car en dessous de 2600 Hz, la matrice interspectrale est mal conditionnée, ce qui est dû au caractère modal de la propagation dans l'espace entre enceinte à basse fréquence, et que la limite de 3600 Hz correspond à la limite de Shanon de notre antenne (1/2 longueur d'onde entre deux capteurs voisins).

La matrice des répliques F a été estimée expérimentalement en enregistrant le bruit d'une trentaine de pétards (réponses impulsionnelles)disposés dans l'espace entre enceinte. La Figure 5-14 présente la fonction d'ambiguïté entre deux répliques estimées sur les 31 premières millisecondes (10,5 m de parcours, pour un espacement de 3,6 m):





ⁱ Le gon ou grade est l'unité d'angle plan correspondant à $\pi/200$ radian.

Chapître 5

Entre 2600 et 3000 Hz, la fonction d'ambiguïté est comprise entre 0,1 et 0,7 permettant la localisation. La Figure 5-15 montre l'estimation de la position d'une buse relâchant du gaz à partir des répliques mesurées expérimentalement. On observe une très bonne estimation. Une amélioration de l'estimateur (obtenue par suppression du deuxième vecteur propre de l'estimateur de Bartlett, qui est associé à des échos parasites) a été validée sur ces résultats expérimentaux tant que l'espacement entre source et antenne reste inférieur à 40 gons avec une incertitude de 10 gons (3,6 m d'arc) et 2 m verticalement. La Figure 5-16 présente une implantation possible des antennes qui a été préconisée à la fin de cette étude.



Figure 5-15 : Estimation de la position d'une buse à 185 gons.



Figure 5-16 : Positionnement des antennes dans l'espace entre enceinte (vue déroulée)

Chapître 6 L'étalement du corium

Le récupérateur de l'EPR (§ 1.3) est basé sur le principe de l'étalement du corium, ce qui a pour objectif de réduire la hauteur du bain de corium et donc le flux de chaleur issu de la puissance radiologique résiduelle. Pour les réacteurs actuels, si l'interaction corium-béton entraîne le percement latéral du puits de cuve (ou du mur de la salle d'instrumentation) on se trouvera dans une situation d'étalement du mélange corium-béton.

Pour étudier ce phénomène, le CEA a entrepris un programme de recherche sur l'étalement autour de la campagne d'essais VULCANO-Etalement (Cognet et al., 1997; Journeau et al., 2003). Dans un premier temps, nous décrirons ces essais en matériaux prototypiques, puis la validation des modèles et codes de calcul d'étalement. Enfin, nous montrerons quelques applications au cas du réacteur.

6.1. ESSAIS VULCANO-ETALEMENT 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 6-1.

| Essai | Composition | Masse | Débit | Temp. de | Liquidus - | Principales observations |
|-------|---|-------|----------|-----------|------------|-----------------------------|
| | (en % masse) | (kg) | (L/s) | versement | Solidus | |
| | | | | (°C) | (°C) | |
| VE-U1 | 44% UO ₂ , 23% ZrO ₂ , 21% | 38.8 | 0.6 | 1820 | 1975 | Etalement sur 1,2 m |
| | SiO ₂ , 12% FeOx | | | | 1030 | Plusieurs langues. |
| | | | | | | Grande porosité |
| VE-U3 | 63 % UO ₂ , 22% ZrO ₂ , 8% | 15.6 | 0.3 | 2130 | 2375 | Etalement de 33 cm |
| | SiO ₂ , 7% FeO | | | | 1050 | Porosité faible |
| VE-U5 | 46% UO ₂ , 10 % ZrO ₂ , 24% | 36 | 0.5 | 1830 | 1940 | Etalements successifs pour |
| | FeO, 20% SiO ₂ + | | | | 1100 | une longueur de 1 m |
| | zirconium métal | | | | | |
| VE-U7 | 61% UO ₂ , 30% ZrO ₂ , | 26 | 0.7 L/s | 2175 | 2375 | Etalements en parallèle |
| | 3% FeO, 2% Fe, 2% SiO ₂ , | | répartis | | 1000 | sur des veines en |
| | 2% CaSiO3, 0.6% CaO, | | en 2 | | | céramique et béton |
| | 0.4 % Al ₂ O ₃ | | veines. | | | siliceux (très peu ablaté). |
| | | | | | | Longueurs (45/36 cm) |
| | | | | | | et porosités similaires sur |
| | | | | | | les deux substrats. |
| VE-U8 | 80% UO ₂ 20% ZrO ₂ | 30 | 1 L/s | 2660 | 2650 | Etalement de 40 cm. |
| | | | | | 2610 | Croûtes solides en |
| | | | | | | surface. |
| | | | | | | 2cm d'ablation du béton |
| | | | | | | 80%silice-20%calcaire. |

Tableau 6-I : Caractéristiques des essais d'étalement en corium prototypique (campagne VE-U)

6.1.1. VE-U1

La composition du premier essai VULCANO en matériaux prototypiques était la suivante (en masse) : 44% UO₂, 23% ZrO₂, 21% SiO₂, 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 ferrosiliceux. 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 6-1 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 6-2). 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 6-1 : Vue de face de la coulée VE-U1, prise avec la caméra calibrée selon la Figure 3-6 .



Etalement du corium - Essai VE-U1

Figure 6-2 : Longueur moyenne de la coulée (valeurs moyennes issues du traitement des images, instants de montée en température des thermocouples placés sur l'axe). 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 6-3). 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 6-4. 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 6-3 : 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.





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 zircone.

6.1.2. 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 6-I). 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 \pm 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 porosité de cette coulée était très faible, correspondant au retreint 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.

65-70 60-65 VE-U3 TEST 55-60 Topography after spreading 50-55 70 45-50 40-45 65 35-40 60 30-35 55 25-30 96 **X (mm)** 224 20-25 253 15-20 Z (mm) 35 281 **10-15** 30 25 310 5-10 □0-5 331 95 6 82 8 15 40 25 9 Ö8 32 35 ġ 25 22 20 50 20 ပု Y(mm)

La Figure 6-5 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 (Huppert, 1982).

Figure 6-5 : Forme de la coulée VE-U3 - Issue de 481 points de mesure

6.1.3. 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 6-6) pendant que la partie restante était retenue temporairement dans un creuset, où une réaction exothermique avec du zirconium assurait un maintien en température.



Figure 6-6 : Thermographie infrarouge de la première coulée de corium lors de l'essai VE-U5



Figure 6-7 : 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 6-7).

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

6.1.4. VE-U7

L'essai VE-U7 a été dédié à l'étude de l'effet du substrat sur l'étalement. Un corium (voir Tableau 6-I), de composition 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 zircone 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 \pm 75 °C, pour un liquidus de 2375 °C et un solidus de 1000 °C. 12 kg se sont écoulé sur le béton et 14 kg sur la céramique, le reste demeurant dans le déversoir (Figure 6-8). Cet essai a servi pour un exercice de comparaison européen des codes de calcul d'étalement THEMA, CORFLOW et LAVA (Journeau et al., 2006, § 6.2.2).

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 6-9). 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 COMAS EU 2b (Steinwarz et al., 1999 et § 2.4.1). 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) 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 6-8 : Vue de face et de dessus des coulées VE-U7. Le béton est à droite, la céramique à gauche de l'image.



Figure 6-9 : 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 6-10) 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 proximités 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 denses que la phase oxyde. Nous n'avons observé aucune différence quant à leur répartition entre les deux coulées.

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 6-11).



Figure 6-10 : Coupes de la coulée VE-U7 au-dessus de la zircone dense (à gauche) et du béton siliceux (à droite)



Figure 6-11 : Echantillon de béton prélevé après l'essai VE-U7

6.1.5. 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 6-12 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 6-12 : 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 6-13). Les thermocouples installés dans le béton (Figure 6-14) 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 cette 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 a permis de noter les points suivants :

• Le corium pénètre de façon préférentielle dans le mortier par rapport aux agrégats.

Chapître 6

- 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 6-13 : 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 6-14 : Evolution des températures dans le béton lors des essais VE-U7 et VE-U8

6.1.6. Récapitulation

Cinq essais d'étalements ont été réalisés dans l'installation VULCANO en matériaux prototypiques, représentatifs, soit du mélange qui s'écoulerait de la cuve, soit d'un corium mélangé avec un béton sacrificiel. De plus, sept autres essais ont été réalisés en matériaux simulants. 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 prototypiques 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 SiO₂ qui est vraisemblablement due à la condensation d'oxydes volatils d'uranium (vraisemblablement UO₃) 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 §2.4.7.2), 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 sections suivantes, nous allons étudier plus en détail les différents aspects de l'étalement afin de qualifier nos modèles sur ces essais.

6.2. VALIDATION DES MODELES ET CODES D'ETALEMENT

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 & Veteau, 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 et al., 2004). L'essai VE-U7 (\$6.1.4) 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 (Griffiths & Fink, 1992) qui est celui qui précède l'arrêt de l'étalement. Avec un nombre de Reynolds maximum,

$$\operatorname{Re}_{\max} = \frac{\rho \cdot U_{\max} \cdot d_h}{\eta_{\min}} \approx \frac{5100 \times 0.1 \times 0.2}{20} \approx 5$$

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 conclurons par quelques applications de ces modèles et codes au cas de l'EPR.

6.2.1. Validation des modèles semi-analytiques

Foit (2004) a formalisé une technique d'estimation de la viscosité cinématique v à partir de la progression du front de coulée dans un secteur angulaire en utilisant la formule :

$$\nu = \frac{1}{3n} (\alpha / 2\pi)^{-3} C_f^{\ 8} \text{gG}^3 \sum_{i=1}^n \left[\left(\mathbf{r}_{exp}(\mathbf{t}_i) + \mathbf{r}_0 \right)^4 - \mathbf{r}_0^{\ 4} \right]^{-4} \mathbf{t}_i^{\ 4}, \ \mathbf{t}_i \le t_{vers}$$
(7-1)

où

 α (=0,17 rad, soit 9,5°) est l'ouverture du secteur angulaire,

G (= 3.10^{-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 $t_{i_{\text{i}}}$

 r_0 la position de l'entrée de l'aire d'étalement,

t_{vers} la durée du versement,

C_f (= 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) :

$$r(t) = (\alpha / 2\pi)^{-3/8} C_f \left(\frac{gG^3}{3\nu}\right)^{1/8} (t+t_0)^{\frac{1}{2}}$$

$$t_0 = \left[(\alpha / 2\pi)^3 \left(\frac{r_0}{C_f}\right)^8 \frac{3\nu}{gG^3} \right]^{\frac{1}{4}}$$
(7-2)
(7-3)

où

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 6-15). 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 6-15 : 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_{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 6-16), du fait de l'importance de la chaleur sensible dans l'enthalpie et des écarts de densité entre phases.



Figure 6-16 : Différentes fractions solides estimées pour le corium de VE-U7

Le flux enlevé à la coulée est estimé à 1,5 MW/m² (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. Il s'agit ici de 2360 K. A cette température, il y a $60\%_{vol}$ de solide et χ =36% de l'enthalpie entre liquidus et solidus a été évacuée. La prise en compte d'une solidification à χ =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 χ =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 ± 10 $\%_{vol}$ en surface proposé à partir de l'analyse de la température mesurée au front de coulée lors de l'arrêt de la progression de l'étalement (Journeau et al., 2003 ; Journeau, 2006). En effet, ce 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_{ini} = 2403 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 6-II). 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 6-II 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‰ | Longueur expérimentale | L calculée Semi- | Erreur relative |
|----------------|----------------------|----------------------|---------------------------|-----------------------|--------------------|
| | . inclute | | chpermentate | analytique | calcul |
| | | | | | THEMA |
| VULCANO VE-07 | $2250\pm85~\text{K}$ | 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 [™] | 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 Cu2N1 | 471 K | 412 K ^v | 3,8-4 m | ~4m | 12% |
| CORINE Cu2N10 | 471 K | 412 K | 3,4-3,7 m | 3,9-4,1 m | -6% |
| CORINE Cu2NE1 | 473 K | 465 K | 3,2 - 3,6 m | 3,3-3,5 m | -12 % |

Tableau 6-II : Validation du modèle simplifié de l'Ecole Polytechnique Royale et du code THEMA (avec les lois de viscosité de Ramacciotti)

6.2.2. Benchmark des Codes d'étalement sur VE-U7

6.2.2.1. 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. 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.

Pour calculer l'étalement VE-U7 avec le code LAVA, 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 6-17) 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 6-17 : 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 6-18). 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. 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/m²) est pris en compte pour représenter l'augmentation des échanges de chaleur du fait du fort bullage. La valeur de 500 kW/m² a été optimisée lors des calculs paramétriques des essais KATS sur béton. La Figure 6-19 présente deux calculs de l'étalement sur le béton : le premier (tirets) fait juste l'hypothèse d'une perte thermique supplémentaire de 500 kW/m² 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 cm) en bon accord avec l'expérience (L=36 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 6-19).



Figure 6-18 : LAVA : Propagation et refroidissement de la coulée sur la céramique (Journeau et al. , 2006)



Figure 6-19 : Evolution de longueur d'étalement calculée en 2D par LAVA

Les températures dans les deux substrats (Figure 6-20 et Figure 6-21) 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 6-20 : Températures dans le substrat en céramique mesurées et calculées par LAVA.

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 6-21 : Températures dans le substrat en béton mesurées et calculées par LAVA.

6.2.2.2. THEMA

Le code THEMA est un code de calcul mono ou bidimensionnel développé au CEA Grenoble (Eberlé, 1997; Spindler & Veteau, 2004, 2006, 2006b). 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. La modélisation de la coulée, tout en prenant en compte la présence éventuelle d'une croûte en haut et en bas de la coulée. 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.

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 et al., 2000 ; Journeau et al., 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 : $\eta = 0.0260.e^{-0.0300(T-Tliquidus)}$ (Pa.s)
- Résistance thermique sur le substrat en béton: $R_{th} = 1.2.10^{-3} \text{ K.m}^2 \text{ W}^{-1}$
- Résistance thermique sur le substrat en céramique: $R_{th} = 5.4.10^{-3} \text{ K}.\text{m}^2\text{W}^{-1}$

La loi de viscosité ci-dessus correspond à la corrélation de Ramacciotti (§ 4.2.2.2) 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 obtenus à partir d'une analyse fine des mesures de température dans les substrats (Journeau, 2006).

La Figure 6-22 montre qu'avec ce jeu de données, le calcul THEMA reproduit de façon satisfaisante les données expérimentales.



Figure 6-22 : 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 6-23), 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.

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.

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(Gatt et al., 1995).



THEMA – Substrat Béton à 12 cm de l'Origine



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 \pm 75 K sur la température d'entrée et de \pm 15 % sur le calcul des fractions volumiques.



Figure 6-24 : Calculs THEMA de la longueur d'étalement.

Les résultats de ces calculs sont tracés sur la Figure 6-24. 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.

6.2.2.3. CORFLOW

Le code CORFLOW est un modèle tridimensionnel qui a été développé par FZK et SIEMENS KWU (Wittmaack, 1997). 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. 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.

Ce code a été appliqué uniquement à l'écoulement sur le substrat céramique en considérant une température initiale de 2438 K, une viscosité cinématique initiale de 5.10^{-3} m²/s et une température d'immobilisation de 1750 K - correspondant à une fraction solide de 90%_{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 6-25) 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 6-25 : Calcul par CORFLOW de l'étalement sur le substrat céramique.

6.2.2.4. 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 permettent 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 :

$$\eta^* = 0.6 \left(1 - \frac{\phi_{solide}}{0.7} \right) \rho \phi_{gaz} d_{bulle} U_{gl}$$

De même, une conductivité thermique équivalente prend en compte la turbulence induite par le bullage.

Une résistance thermique de contact de $3.mK.m^2/W$ a été prise en compte dans cette modélisation.



Figure 6-26 : Calcul avec CROCO de la progression des fronts de coulée.

Le calcul de la progression des fronts de coulée sur les deux substrats (Figure 6-26) 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 6-27), 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 6-27 : 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 6-28). 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 6-29 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 6-28 : Evolution de la température de surface de la coulée à 14 cm de l'entrée



Figure 6-29 : 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 6-30) 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 6-30 : Comparaison calcul CROCO - expérience pour les températures dans le substrat béton à x=12 cm.

6.2.2.5. Analyse comparative

La Figure 6-31 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 le calcul pour la viscosité donnant le meilleur résultat (5. $10^{-3} \text{ m}^2/\text{s}$) 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 6-24 pour laquelle on a une dispersion de la longueur d'étalement entre 45 et 80 cm).



Figure 6-31 : Comparaison des calculs de longueur d'étalement effectués sur le substrat en céramique

Quant aux calculs de la longueur d'étalement sur béton (Figure 6-32), 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 6-32 : Comparaison des calculs de longueur d'étalement effectués sur le substrat en béton

La Figure 6-33 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 (Journeau, 2006) ainsi que la non-uniformité de l'ablation du béton et la non-homogénéité de ce matériau (Figure 6-11). 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.



Température dans le béton à x=2 cm

Figure 6-33 : 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 (Steinwarz et al., 1999 ; Spengler et al., 2004) 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.

6.3. APPLICATIONS REACTEURS

Wittmaack (1997) a simulé l'étalement dans le récupérateur de l'EPR à l'aide du code CORFLOW. Il considère 370 t (59 m³) de corium constitué de 250 t d'un mélange corium oxyde - béton sacrificiel et de 120 t de métal dans un récupérateur de 178 m² (10 m de long) modélisé par 27x13x14 nœuds. Le corium est relâché en 8 s à travers une porte de 2,4 m², soit un débit moyen de 7,4 m³/s. L'analyse de l'interaction corium-béton dans le puits de cuve (Nie, 2005) indique que la température initiale du bain

Chapître 6

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 vitesse radiale 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 6-34 montre le bon accord entre les calculs avec CORFLOW de Witmaack (1997) et ceux avec THEMA d'Eddi & Bandini (2002) réalisés pour diverses conditions initiales.



Temps de recouvrement de la surface d'étalement



Nous avons aussi appliqué la méthodologie de l'Ecole Polytechnique Royale de Stockholm (§ 6.2.1) 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 6-35). 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 6-35 : 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 6-35 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 degrés 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.

Chapître 7 Régime de solidification du corium.

7.1. INTRODUCTION

Le comportement à long terme du corium peut s'étudier dans l'hypothèse d'une succession d'équilibres thermohydrauliques. Dans ce cas, Seiler et Froment (2000) ont montré que :

- La solidification s'effectuait en front plan sans zone pâteuse ;
- La croûte déposée lors de la solidification du corium a sa composition fixée par l'équilibre thermodynamique à la température d'interface, ce qui implique généralement le dépôt d'une solution solide riche en UO₂ et ZrO₂;
- La température d'interface est égale à la température de liquidus du bain (qui évolue pour tenir compte de son appauvrissement en constituants de la croûte et éventuellement de son enrichissement en produits de décomposition de son substrat).

Lors d'une solidification non-congruente, la composition du solide déposé est différente de celle du liquide avec lequel il est en équilibre. A l'interface, le liquide va donc s'appauvrir en constituants principaux de la phase solide déposée et corrélativement s'enrichir avec les autres. Cet écart de composition par rapport au volume du bain va engendrer un transfert de masse par diffusion. Les bains de corium étant soumis à une forte convection du fait de la puissance résiduelle, le transfert de masse se produira dans une fine couche limiteⁱ.

Dans un premier temps, nous allons présenter le critère de Tiller et al. (1953) décrivant la condition d'existence d'une solidification en front plan ainsi que ses extensions à des systèmes multicomposants par Rinaldi et al. (1972) et Frolov (2004). Nous présenterons ensuite les essais VULCANO Physico-chimie (VP) ainsi que les essais URAN menés sur l'installation COMETA de l'Institut de Recherches Nucléaires de Řež (Journeau et al., 2003b), puis nous en tirerons des enseignements pour l'interaction coriumbéton dans le cas réacteur (Frolov, 2004).

7.2. CRITERE DE TILLER ET AL. ET EXTENSION AUX SYSTEMES MULTICOMPOSANTS D'OXYDES FONDUS

Le transfert de masse par diffusion chimique est considéré comme le processus pilotant la solidificationⁱⁱ des mélanges multicomposants d'oxydes dont le corium. Dans la géométrie semi-infinie d'un bain liquide limité par l'interface plane avec le solide, les flux unidimensionnels des *n* composants du corium dans la couche limite de diffusion s'écrivent sous forme matricielle :

$$J = [D] \times \nabla C \tag{7-1}$$

avec

- [D] Matrice des coefficients de diffusion chimique ;
- C concentration en composants i = 1..n-1.

La relation (7-1) est une relation phénoménologique macroscopique. Elle relie les flux des composants du liquide aux forces motrices par des coefficients de diffusion en se basant sur les théorèmes de la thermodynamique des processus irréversibles se déroulant dans un système physico-chimique, proche de son état d'équilibre thermodynamique.

Intéressons nous maintenant à une des manifestations du couplage des processus physico-chimiques et hydrodynamiques, notamment au couplage de la diffusion et de la solidification d'un mélange fondu multicomposants. Les hypothèses de ce développement sont les suivantes (Hunziker, 2001) :

ⁱ Pour fixer un ordre de grandeur, elle a été estimée à quelques dixièmes de millimètres d'épaisseur dans le cas de l'essai *VP-U1* décrit dans ce chapitre.

ⁱⁱ OOn considère que les gradients de température dans la couche limite de diffusion ont un effet négligeable sur la diffusion chimique pendant la solidification.

- la diffusion dans les solides est négligée car elle est de plusieurs ordres de grandeurs plus lente que dans les liquides ;
- les lacunes de miscibilité ne sont pas prises en compte dans ce modèle, bien qu'il puisse aisément être aisément étendu aux bains constitués de deux liquides non-miscibles ;
- on se place dans l'hypothèse d'une solidification à vitesse constante (le *régime stationnaire* des métallurgistes¹);
- on suppose l'équilibre thermodynamique local à l'interface solide-liquide, en négligeant les effets de la surfusion ;
- les effets de facettage et les effets cinétiques sont négligés, contrairement à la modélisation de Mullins et Sekerkaⁱⁱ(1964);
- les développements présentés dans ce chapitre sont applicables au cas d'une diffusion sans convection. Ils peuvent être aisément transposés au cas avec convection selon l'approche donnée par Flemmings (1974, p. 41, 60) : la concentration est constante sauf dans une couche limite très fine et la concentration dans le liquide à l'interface avec le solide est très proche de celle-ci.

Décrivons la température de liquidus d'un mélange à l'aide de la formulation suivante :

$$T_L = T_L(C_1, C_2, \dots, C_{n-1})$$
 (7-2)

avec

- *T_L* température du liquidus;
- C_1 concentration du composant i du mélange à l'exception du composant *n* (le composé principal de la phase α solidifiant dans notre cas).

A l'interface solide-liquide (x=0), au cours de la solidification de ce mélange, on peut écrire :

$$\frac{dT_L}{dx} = \frac{\partial T_L}{\partial C_{L1}} \cdot \frac{\partial C_{L1}}{\partial x} + \frac{\partial T_L}{\partial C_{L2}} \cdot \frac{\partial C_{L2}}{\partial x} + \dots + \frac{\partial T_L}{\partial C_{L(n-1)}} \cdot \frac{\partial C_{L(n-1)}}{\partial x}$$
(7-3)

Tiller et al. (1953) ont établi le critère suivant de stabilité de l'interface pendant la solidification :

pour x > 0, le gradient de température du liquidus doit être inférieur ou égal au gradient de température G:

$$G \ge \frac{dT_L}{dx} \tag{7-4}$$

Physiquement, si ce critère est respecté, une protubérance créée par une perturbation de la surface solide se trouvera localement à des températures supérieures à la température du liquidus local (qui varie dans la couche limite de diffusion) et refondra. Dans le cas contraire, cette protubérance sera audessous du liquidus local et restera stable, ce qui permettra le développement de dendrites. Tiller et al. (1953) ont nommé cette situation la *surfusion constitutive*, car elle est due à un effet de composition et non de température. La Figure 7-1 présente sous forme graphique les deux configurations avec ou sans surfusion constitutive. Dans le cas stable, la solidification suivra un front plan et la composition du solide déposé sera celle du solidus. Dans le cas contraire, on aura formation de dendrites. La composition moyenne de la croûte sera dans ce cas égale à celle du bain.

¹ En thermohydraulique, on considère, par contre, que le régime stationnaire est caractérisé par une vitesse de solidification nulle.

ⁱⁱ Ces modèles sont difficilement applicables au cas du corium car ils mettent en oeuvre de nombreux paramètres pour lesquels nous ne disposons d'aucune donnée. De plus, de Chevigné et al. (1988) ont montré que ces effets tendent vers zéro quand les vitesses de solidification et les gradients de température tendent vers zéro.



Figure 7-1 : La surfusion constitutive dans le cas d'une solution binaire (a) diagramme de phase binaire (b) évolution de la concentration dans la couche limite évolution de la température de la couche limite et du liquidus local c) régime stable (d) régime instable avec surfusion constitutive

Afin d'obtenir une expression explicite reliant les paramètres expérimentaux (la vitesse de solidification, le gradient de température dans la couche limite, etc.) avec des propriétés de mélanges (i. e. des coefficients de diffusion), la condition de conservation de matière peut être écrite sous la forme du bilan entre le flux d'une espèce engendrée par la solidification et le flux de cette espèce évacuée dans la couche limite, pour les composants du mélange autres que ceux rentrant dans la phase α (le composant *n* de la série ci-dessous) qui solidifient à l'interface solide-liquide,

$$R \cdot (C_i - C_{\infty i}) = -\sum_{j=1}^{n-1} D_{ij} \cdot \frac{dC_j}{dx}$$
(7-5)

où, pour les i = 1..n-1 équations du système (5-5), on note

R - vitesse de solidification;

- *C_i* concentration en composant *i* à l'interface solide-liquide dans le liquide;
- C_{i} concentration en composant *i* à l'infini dans le liquide.
Prenons l'exemple d'un mélange d'oxydes contenant trois cations A, B, et C et un anion O, qui forment alors trois composantsⁱ AO_2 , BO_2 , CO_2 . On peut obtenir, à l'aide de dérivations algébriques utilisant les relations (7-3), (7-4) et (7-5), le critère général de stabilité de l'interface au cours de la solidification contrôlée. En effet, en éliminant le composant n = 1 (AO_2), les équations deviennent :

$$\begin{cases} R \cdot \Delta C_{BO_2} = -D_{BO_2/BO_2} \cdot \frac{dC_{BO_2}}{dx} - D_{BO_2/CO_2} \cdot \frac{dC_{CO_2}}{dx} \\ R \cdot \Delta C_{CO_3} = -D_{CO_2/BO_2} \cdot \frac{dC_{BO_2}}{dx} - D_{CO_2/CO_2} \cdot \frac{dC_{CO_2}}{dx} \end{cases}$$
(7-5a)

et on obtient

$$R \cdot (\Delta C_{BO_2} + \Delta C_{CO_2}) = -p \cdot (D_{BO_2/BO_2} + D_{CO_2/BO_2}) - s \cdot (D_{BO_2/CO_2} + D_{CO_2/CO_2})$$
(7-5b)

où $p = (\partial T_L / \partial C_{BO2})$ et $s = (\partial T_L / \partial C_{CO2})$ sont les pentes des températures de liquidus relativement aux compositions en oxydes BO_2 et CO_2 .

Or, le transfert de masse par diffusion chimique dans la couche limite est caractérisé par la matrice des coefficients de diffusion chimique :

$$D = \begin{vmatrix} D_{BB} & D_{BC} \\ D_{CB} & D_{CC} \end{vmatrix}$$
(7-5c)

Dans les relations (7-1) à (7-5c), les coefficients de diffusion chimique (e. g., $D_{BB} = D_{BO2/BO2}$, etc.) sont les mesures de l'influence de chacun des composants *j* sur la diffusion du composant *i*. La combinaison des relations (7-3), (7-4) et (7-5b) nous permet d'obtenir la formule de Rinaldi et al. (1972) sous sa formulation générale qui donne le critère de stabilité de l'interface de solidification d'une, deux ou trois phases :

$$\frac{G}{R} \ge -\frac{(p \cdot D_{CC} - s \cdot D_{CB}) \cdot \Delta C_B + (s \cdot D_{BB} - p \cdot D_{BC}) \cdot \Delta C_C}{D_{BB} \cdot D_{CC} - D_{BC} \cdot D_{CB}}$$
(7-6a)

Rinaldi et al. (1972) ont poursuivi leur analyse en supposant que les termes de diffusion croisés étaient négligeables :

$$\frac{G}{R} \ge -\frac{p \cdot \Delta C_B}{D_{BB}} - \frac{s \cdot \Delta C_C}{D_{CC}}$$
(7-6b)

Il faut souligner que cette analyse avait été développée en vue de décrire la solidification dans des systèmes ternaires de métaux avec un composant majeur et des impuretés, cas pour lequel ces hypothèses sont acceptables. Par contre, les coefficients croisés peuvent être importants pour la description des processus de diffusion chimique dans des bains d'oxydes, surtout en présence en quantités non-négligeables de formateurs de réseaux comme la silice. Frolov (2004) a étendu l'analyse de Rinaldi et al.(1972) à des systèmes d'oxydes et au cas général de la solidification d'un mélange multicomposants.

En général, les modèles cités ci-dessus prédisent que dans la limite dite du 'traceur' ($C_j \rightarrow 0$) les coefficients de diffusion chimique sur la diagonale principale de la matrice de diffusion (e. g., (5-5c)) tendent vers les coefficients d'autodiffusion des constituants ($D_{ii} \rightarrow D_i^0$) et les coefficients croisés s'éliminent ($D_{ij} \rightarrow 0$). C'est cette approche qui a été mise en œuvre pour caractériser la diffusion chimique dans le corium prototypique. Pour ce faire, il convient de reconstruire la matrice des

ⁱ Nous avons choisi de manière arbitraire des cations tétravalents par rapport à une application à UO_2 - ZrO_2 - SiO_2 fondus. Ceci n'empêche pas de généraliser aisément ce raisonnement à des cations d'autres valences.

coefficients de diffusion chimique des composants du corium à partir des données expérimentales sur la stabilité de l'interface de solidification et sur les autodiffusivités des constituants ioniques du corium. En se basant sur le modèle de force commune (Liang et al., 1997), Frolov (2004) a considéré que la diffusion chimique vérifiait la formulation générale suivante :

$$D_{ij} = \delta_{ij} \cdot D_i^0 + C_j \cdot \varphi(C_{k=0..n}, Z_{k=0..n}, D_{k=0..n}^0)$$
(7-7)

où, pour *j* = 1..*n*

δ_{ij} - symbole de Kronecker ;
 D_i⁰ - coefficient d'autodiffusion d'un constituant *i* dans un milieu donné.

Il est évident que les coefficients de diffusion chimique rentrant dans la matrice de diffusion sont des fonctions de la composition chimique (C_A ... C_n) aussi bien que des propriétés intrinsèques des constituants ioniques du mélange corium-béton :

Dans la limite 'traceur' particulière ($C_A \rightarrow 0, C_B \rightarrow 0$) à un système ternaire avec un seul composant majeur C, la matrice des coefficients de diffusion chimique peut être simplifiée :

$$D = \begin{vmatrix} D_{A}^{0} & 0 \\ 0 & D_{B}^{0} \end{vmatrix}$$
(7-9)

et on obtient le critère original de Rinaldi et al. (7-6b).

L'intérêt de cette approche est que la solidification d'un oxyde pur est pilotée par l'autodiffusion des impuretés, en l'absence d'influence du couplage des flux et de l'autodiffusivité de l'oxygène. Cependant ce n'est jamais le cas pour d'autres limites 'traceur' qui sont caractéristiques du cas du corium où il y a au moins deux oxydes majeurs. Ainsi, dans la limite $C_B \rightarrow 0$ d'un système ternaire, on a la matrice suivante :

$$D = \begin{vmatrix} D_{A}^{0} + C_{A} \cdot \varphi_{1} & C_{A} \cdot \varphi_{2} \\ 0 & D_{B}^{0} \end{vmatrix}$$
(7-10)

et le critère de stabilité modifié s'écrit :

$$\left\langle \frac{G}{R} \right\rangle_{3} \geq -\frac{p \cdot \Delta C_{A}}{D_{A}^{0} + C_{A} \cdot \varphi_{1}} + \frac{p \cdot C_{A} \cdot \varphi_{2} \cdot \Delta C_{B}}{D_{B}^{0} \cdot (D_{A}^{0} + C_{A} \cdot \varphi_{1})} - \frac{s \cdot \Delta C_{B}}{D_{B}^{0}}$$
(7-11)

Il faut aussi noter que les fonctions φ_1 et φ_2 contiennent d'autres paramètres inconnus que les coefficients d'autodiffusion D_A^0 et D_B^0 , notamment les autodiffusivités D_c^0 et D_0^0 . En étendant le développement précédent, le critère de stabilité peut être écrit pour la solidification

d'un mélange à quatre composants (dont 2 majeurs):

$$\left\langle \frac{G}{R} \right\rangle_{4} \geq \frac{1}{D_{AA}} \cdot \left(\frac{p \cdot D_{AB} - s \cdot D_{AA}}{D_{B}^{0}} \cdot \Delta C_{B} + \frac{p \cdot D_{AD} - t \cdot D_{AA}}{D_{D}^{0}} \cdot \Delta C_{D} - p \cdot \Delta C_{A} \right)$$
(7-12)

ou bien à cinq composants (dont 2 majeurs):

$$\left\langle \frac{G}{R} \right\rangle_{5} \geq \frac{p}{D_{AA}} \cdot \left(\left(\frac{D_{AB}}{D_{AA}} - \frac{s}{p} \right) \cdot \frac{\Delta C_{B}}{D_{B}^{0}} + \left(\frac{D_{AD}}{D_{AA}} - \frac{t}{p} \right) \cdot \frac{\Delta C_{D}}{D_{D}^{0}} + \left(\frac{D_{AE}}{D_{AA}} - \frac{u}{p} \right) \cdot \frac{\Delta C_{E}}{D_{E}^{0}} \right)$$
(7-13)

Dans les relations (5-57a) et (5-57b), les coefficients de diffusion chimique :

$$D_{AA} = D_A^{0} + C_A \phi(C_k, Z_k, D_k^{0})$$
$$D_{AB} = C_A \psi(C_k, Z_k, D_k^{0})$$
$$D_{AD} = C_A \xi(C_k, Z_k, D_k^{0})$$
$$D_{AE} = C_A \zeta(C_k, Z_k, D_k^{0})$$

sont des grandeurs qui varient, pour k=0..n, en fonction des concentrations (C_k) , des charges (Z_k) et des autodiffusivités (D_k^{0}) .

Dans les cas considérés, les relations (7-12) et (7-13) décrivent la solidification des mélanges identiques à celui de la relation (7-11) à l'exception du fait qu'elles font intervenir respectivement une et deux espèces ioniques complémentaires introduites dans le mélange initial (de la relation (7-11)) en quantité de traceur(s). Elles peuvent aisément être étendues à un nombre quelconque de constituants.

7.3. Essais de solidification controlee – campagnes Uran et VP-U

Dans le cadre des campagnes d'essais URAN (Tab. 7-1) et VULCANO VP du projet européen ECOSTAR (Alsmeyer et al.,2005) plusieurs essais ont été réalisés sur la solidification contrôlée des mélanges d'oxydes fondus de type corium (Journeau et al., 2003b). Leurs résultats rendent possible une estimation pratique des seuils définis au paragraphe précédent et donc une prédiction des régimes de solidification attendus lors d'un accident grave.

L'installation COMETA à Řež utilise la technique du chauffage par induction avec creuset froid (Monforte, 1961, Petrov, 1983). La Figure 7-2 présente un schéma de principe de ce four : le creuset froid (3) est constitué d'un réseau de tubes verticaux en cuivre (Figure 7-3 gauche) refroidis à l'eau. Il est transparent au champ électromagnétique créé par l'inducteur (4) qui l'entoure. Le bain est un conducteur électrique¹ et permet la conversion de l'énergie électromagnétique en chaleur. Un autocreuset se forme par frittage au contact du creuset refroidi par eau. Les oxydes sont introduits sous forme de poudre. Lorsqu'un bain d'oxydes fondu est obtenu (Figure 7-3 droite), une solidification lente est obtenue en déplaçant le support (2) du creuset dans le champ de l'inducteur à des vitesses de quelques millimètres par heure, à l'aide du dispositif (6-7). Cette méthode avait déjà servi à obtenir des monocristaux de zircone stabilisée à l'yttrie (Aleksandrov et al., 1978)

Nous avons rassemblé dans le Tableau 7-I les conditions des 6 essais qui peuvent être considérés en vue de cette application.

Pour les essais VULCANO VP, le corium a été fondu et chauffé à l'aide d'un dispositif de chauffage par induction (Jégou et al., 2002). La charge d'oxyde est disposée sous forme de poudre dans un creuset en zircone stabilisée à la magnésie de Ø19 x 21 cm. Un inducteur solénoïdal est connecté à un générateur apériodique à triode (CELES GHMF 250 AP) pouvant délivrer 250 kW dans la gamme de fréquence 25-80 kHz. Le creuset est refroidi par l'inducteur et un solénoïde neutre qui est entouré entre les spires de l'inducteur et n'est pas relié au générateur électrique. Des protections en poudre de silice (non présentées sur la Figure 7-4) sont disposées autour du creuset et des solénoïdes.

ⁱ A froid, les poudres d'oxydes étant généralement isolantes, le chauffage démarre sur des morceaux de magnétite (Fe_3O_4).



Figure 7-2: Schéma du four COMETA 1 : enceinte de fusion ; 2 : support mobile ; 3 : creuset froid ; 4 : inducteur ; 5 : générateur HF; 6 : moteur de déplacement ; 7 : vis-écrou du système de translation du creuset ; 8 : aspiration des effluents gazeux 9: filtre ; 10: refroidissement par eau; 11: prélèvement d'aérosols ; 12: pyromètre ; 13: système d'acquisition.



Figure 7-3 : Le creuset froid COMETA : (gauche) vue avant essai - (droite) vue de dessus lors d'un essai avec un bain d'oxydes

Vu que les poudres d'oxydes ne sont pas conductrices à basses températures, la fusion est initiée en fondant une petite masse de fer qui s'oxyde au contact de l'air. La Figure 7-5 montre l'aspect du creuset rempli d'un bain de corium.



générateur HF Figure 7-4: L'installation VULCANO VP



Figure 7-5 : Vue de la surface du bain de corium VP-U1 avec la présence partielle d'une croûte.

| FSSAL | т * ∘с | | Composition théorique, % mol. / % poids | | | | | | | |
|---------|--------|-------------------|---|--------------------------------|---------------------|--------------------|--|--|--|--|
| LJJAI | Tliq,C | UO ₂ | ZrO ₂ | Fe ₃ O ₄ | CaO | SiO ₂ | | | | |
| Uran-3 | 2170 | $\frac{37,4}{66}$ | $\frac{19,8}{16}$ | $\frac{1,9}{3}$ | $\frac{40,9}{15}$ | - | | | | |
| Uran-7 | 1870 | $\frac{27,8}{56}$ | $\frac{15,2}{14}$ | $\frac{1,7}{3}$ | $\frac{28,6}{15}$ | $\frac{26,7}{12}$ | | | | |
| Uran-11 | 1970 | <u>62</u> 77 | $\frac{35,3}{20}$ | $\frac{2,7}{3}$ | - | - | | | | |
| URAN-13 | 2000 | $\frac{34}{64,2}$ | $\frac{16}{13,76}$ | $\frac{1,6}{2,75}$ | $\frac{35}{13,76}$ | $\frac{13,1}{5,5}$ | | | | |
| URAN-14 | 1950 | $\frac{24,1}{54}$ | $\frac{11,7}{13}$ | $\frac{1,8}{3}$ | $\frac{32,2}{15}$ | $\frac{30,1}{15}$ | | | | |
| VP-U1 | 2060 | $\frac{31,8}{59}$ | $\frac{11,7}{20}$ | $\frac{3,6}{5}$ | $\frac{33,7}{13}$ | $\frac{7,3}{3}$ | | | | |
| VP-U4 | 2120⁺ | $\frac{27}{57,8}$ | $\frac{9,4}{9,2}$ | $\frac{2,8}{5,2}$ | $\frac{34,8}{15,5}$ | $\frac{25}{15,5}$ | | | | |

* - température de liquidus expérimentale ⁺ - température théorique

Tableau 7-I : Essais URAN et VP-U

Lors des essais URAN, la solidification d'environ un kilogramme d'oxydes est obtenue en déplaçant lentement (de 1 à 20 mm/hr) le creuset dans le champ de l'inducteur à partir de la position correspondant au maximum de la puissance injectée. Les variations de flux thermique selon la position verticale imposent une épaisseur de croûte variable (Figure 7-6). De ce fait, un seul essai permet d'étudier toute une gamme de vitesses de solidification. Lors des analyses postérieures de ces essais, les régimes de solidifications dendritiques, cellulaires et en front-plan ont été observés (Figure 7-7). On a pu par ailleurs estimer le gradient de température et la vitesse de solidification de part et d'autre de la transition entre ces régimes.



Figure 7-6: Coupe du bain URAN 13 (l'axe de déplacement du creuset est présenté horizontalement)



Figure 7-7: Micrographies montrant des solidifications observées dans les essais URAN en front plan (a gauche), cellulaires (au centre) et dendritiques (a droite)

Un essai à plus grande dimension (22 kg d'oxydes fondus) a été réalisé dans l'installation VULCANO. Lors de cet essai, la puissance du chauffage par induction a été réduite progressivement de 30 à 15 kW en 2 heures. La Figure 7-8 montre une solidification cellulaire, très proche de la macroségrégation complète attendue lors de la solidification en front plan, obtenue lors de cet essai. D'après les travaux de Caroli et al. (1991), ce type de solidification correspond à un rapport G/R de 2 à 12 fois le rapport seuil de solidification en front-plan.



Figure 7-8 : : Solidification cellulaire obtenue lors de l'essai VP-U1

Lors de l'essai VP-U4, avec une concentration accrue en silice, il n'a pas été possible d'obtenir une solidification en front plan, ni même de type colonnaire (Figure 7-9), bien que l'on ait diminué progressivement la consigne de tension de l'inducteur de 493 à 480 V en 4 heures. La température du bain (mesurée en plongeant un thermocouple de type B) n'a baissé que de 50 K entre le début et la fin de cet essai.



Figure 7-9 : Microstructure typique de l'essai VP-U4

La Figure 7-10 représente les seuils G/R obtenus expérimentalement en fonction de la fraction molaire de silice. On note que plus le bain est riche en silice, plus le seuil G/R est élevé, ce qui est la conséquence d'une diminution de la diffusion des espèces chimiques quand la concentration en formateurs de réseaux augmente.



Seuil expérimental de solidification en front plan

Figure 7-10: SYNTHESE DES ESSAIS URAN ET VP-U1

7.4. APPLICATION AUX SCENARIOS D'ACCIDENTS GRAVES HORS CUVE

Dans l'hypothèse d'un percement de la cuve du réacteur, on aurait alors la formation d'un bain silicaté par la dissolution partielle du béton dans le bain de corium. La configuration attendue lors de l'interaction corium-béton (Seiler et Froment, 2000) consisterait donc en un bain silicaté à haute température (> 2000 K) qui serait entouré de croûtes solides en contact avec le béton. Le mélange entre le corium et le béton (qui va fondre car la température de la croûte de corium sera supérieure au solidus du béton) s'effectue à l'occasion d'instabilités de la croûte de béton (Figure 7-11).



Figure 7-11: Evolution envisagée de l'interface corium béton

Seiler & Froment (2000) ont établi que les conditions aux limites à prendre en compte pour modéliser la convection dans le bain dépendent de la nature de la solidification et donc de la diffusion chimique dans la couche limite au contact de la croûte. Dans le cas d'une solidification en front plan, la température de l'interface liquide-solide est égale à la température du liquidus du bain (dont la composition est modifiée par le dépôt d'une croûte réfractaire et l'apport des produits de décomposition du béton). Par contre, dans le cas d'une solidification dendritique, la température d'interface doit être prise entre le solidus et le liquidus. Or pour ces mélanges, cet intervalle de température peut dépasser 1000 K. La méthodologie proposée par Ng Win Tin (2004) permet d'estimer la température d'interface dans le cas de semisolides dont la viscosité varie avec la température.

Dans un premier temps, nous allons passer en revue des compositions caractéristiques des mélanges corium-béton importants pour la sûreté nucléaire. Puis, nous allons estimer les flux de chaleur et les

vitesses de solidification à prendre en compte, afin d'estimer, connaissant la diffusion chimique, les seuils entre les différents types de solidification. On en déduira les conditions aux limites à prendre en compte lors de l'analyse d'accidents graves.

7.4.1. Composition attendue des mélanges corium - béton

Pour les réacteurs à eau pressurisée (REP), la seule occurrence historique du corium est celle de l'accident de TMI-2 où 62 t de corium ont été fondues. D'après les analyses effectuées par Akers et McCardell (1989), la composition moyenne était la suivante (en % masse) :

```
77%<sub>wt</sub> UO<sub>2</sub>, 17% ZrO<sub>2</sub>, 1% Fe, 1% Cr, 1% Ni, 2% Ag, 1% In
```

Le bain comportait une phase liquide oxyde majoritaire ainsi qu'une phase métallique immiscible, qui a donné lieu à la formation d'inclusions métalliques dans le corium. La présente étude se consacre exclusivement à l'analyse des phénomènes dans la phase oxyde. Il faut noter que les 20 tonnes qui avaient migré en fond de cuve ne contenaient pas d'argent, d'indium, de cadmium produits de la fusion des barres de contrôle).

Une autre approche consiste à effectuer des calculs enveloppes en supposant que toute la matière du cœur (combustible, gainage en zircaloy, barres de contrôle et acier des internes) a fondu. Pour TMI-2, l'inventaire est le suivant :

94 t UO₂, 23,2 t Zrⁱ, 2,2 t Ag, 0,4 t In, 0,1 t Cd, 3,4 t Fe, 1,1 t Cr, 1 t Ni

Pour cette composition, le rapport molaire U/Zr est de 1,37. Farmer et al. (2000) estiment ce rapport U/Zr à 1,64 pour un REP américain standard (centrale de Zion), 0,65 pour les réacteurs à eau bouillante américains ainsi que pour les réacteurs à eau pressurisée type VVER. Pour les réacteurs REP-900 d'*EDF*, le ratio est de 1,52 (Baïchi, 2001) tandis que pour les réacteurs du projet EPR, Nie (2000) a considéré un rapport de 1,24.

Dans les réacteurs à eau légère occidentaux actuels, le puits de cuve est en béton. Roche et al. (1993) ont listé les compositions des 3 bétons typiques (calcaire, silico-calcaire et siliceux). Pour EPR, un béton sacrificiel sera disposé dans le puits de cuve et un béton standard recouvrira le récupérateur de corium. La composition moyenne du béton sacrificiel a pu être estimée d'après les données de Nie (2000).

| Type de béton | Calcaire | Silico-calcaire | Siliceux | Ferro-siliceux |
|--------------------------------|----------|-----------------|----------|----------------|
| Constituant | | | | (EPR) " |
| MgO | 7 | 10 | 1 | 1 |
| CaO | 43 | 26 | 13 | 16 |
| Al ₂ O ₃ | 2 | 3 | 4 | 2 |
| SiO ₂ | 7 | 29 | 70 | 32 |
| Na ₂ O | 0 | 1 | 1 | Traces |
| K ₂ O | 0 | 1 | 1 | Traces |
| TiO ₂ | 0 | 0 | 1 | Traces |
| Fe ₂ O ₃ | 1 | 2 | 1 | 49 |
| CO ₂ | 34 | 22 | 4 | Non estimé |
| H ₂ O | 7 | 6 | 4 | Non estimé |

Tableau 7-II: Compositions typiques de bétons de puits de cuve (en % poids) (d'après Frolov, 2004)

ⁱ Le zirconium sera plus ou moins oxydé selon le scénario. A la fin de l'accident de *TMI-2*, environ 50 % du zirconium était oxydé. On peut par ailleurs montrer qu'au bout de quelques heures d'interaction corium béton, tout le zirconium sera oxydé, principalement par la vapeur d'eau relâchée par le béton. ⁱⁱ Nous ne disposons que de données sur la fraction fondue d'un béton envisagé pour EPR et pas sur sa teneur en volatiles.

En conclusion, il apparaît qu'il n'y a pas de corium standard mais une large gamme de compositions dépendant de la centrale, mais aussi du scénario (oxydation du zirconium, quantité de matériaux de structures fondus, quantité de béton ablaté, potentiel d'oxygène...).

Le seul accident grave ayant donné lieu à une interaction corium-béton est celui de Tchernobyl. Pazukhin (1994) a analysé la composition d'échantillons de ce corium. La plus grande partie des «laves artificielles contenant du combustible» issues de l'interaction avec le béton (et les protections biologiques) est une céramique de couleur « brun-chocolat » que nous avons inclus dans les compositions typiques de corium.

On va néanmoins considérer les configurations suivantes pour pouvoir obtenir des applications numériques :

- Composition A : Corium REP 900 + 20 cm de béton silico-calcaireⁱ ;
- Composition B : Corium REP 900 + 1,5 cm de béton silico-calcaire ;
- Composition C : Corium REP 900 + 3 m de béton silico-calcaire ;
- Composition D : Corium REP 900 + 20 cm de béton siliceux ;
- Composition E : Corium REP 900 + 1,5 m de béton siliceux ;
- Composition F : Mélange corium béton typique d'EPR (Nie, 2000 ; 70% du zirconium oxydé) ;
- Composition G : Tchernobyl corium dit «céramique brun-chocolat» (Pazukhin ,1994)

| Composition, | А | В | С | D | E | F | G |
|--------------------------------|-----------|--------|--------|----------|--------|-----|-----------------|
| % poids | | | | | | | |
| | 20 cm BSC | 150 cm | 300 cm | 20 cm BS | 150 cm | EPR | TCHERNOBYL |
| | | BSC | BSC | | BS | | «brun-chocolat» |
| UO ₂ | 73 | 46 | 33 | 71 | 41 | 46 | 8 |
| ZrO ₂ | 18 | 12 | 8 | 18 | 10 | 17 | 6 |
| SiO ₂ | 4 | 17 | 24 | 8 | 37 | 21 | 57 |
| CaO | 3 | 15 | 21 | 2 | 7 | 6 | 6 |
| MgO | 1 | 6 | 8 | - | 1 | - | 6 |
| Al ₂ O ₃ | - | 2 | 2 | - | 2 | 1 | 11 |
| Fe ₂ O ₃ | - | 1 | 2 | - | - | 20 | 1 |
| Na ₂ O | - | 1 | 1 | - | 1 | - | 5 |

Tableau 7-III: Fractions massiques des oxydes pour les configurations types

| Composition, | А | В | C | D | E | F | G |
|--------------------|-----------|--------|--------|----------|--------|-----|-----------------|
| % mol | | | | | | | |
| | 20 cm BSC | 150 cm | 300 cm | 20 cm BS | 150 cm | EPR | TCHERNOBYL |
| | | BSC | BSC | | BS | | «brun-chocolat» |
| UO ₂ | 47 | 17 | 10 | 44 | 15 | 20 | 2 |
| ZrO ₂ | 26 | 9 | 5 | 24 | 8 | 16 | 3 |
| SiO ₂ | 10 | 28 | 32 | 23 | 59 | 21 | 62 |
| CaO | 10 | 27 | 31 | 5 | 12 | 12 | 7 |
| MgO | 5 | 14 | 17 | - | 1 | 1 | 9 |
| AlO _{1.5} | 1 | 2 | 2 | 2 | 2 | 1 | 7 |
| FeO _{1.5} | 1 | 1 | 2 | - | 1 | 29 | - |
| Na ₂ O | - | 1 | 1 | - | 1 | - | 10 |

Tableau 7-IV: Fractions molaires des oxydes pour les configurations types

Pour ces compositions, on a estimé la température de liquidus à l'aide du logiciel de minimisation de l'énergie de Gibbs Gemini-2 et de la base de données thermodynamique NUCLEA (de Bremaecker et al., 2001). A partir des calculs thermodynamiques, on peut calculer la viscosité à l'aide de la méthode proposée par Ramacciotti et al. (2001) pour les bains de corium contenant des silicates (cf § 4.2.3).

ⁱ On considère que le corium issu de la cuve s'est étalé sur un puits de 6 m de diamètre.

On peut alors estimer, à l'aide du modèle empirique de Mungall (2002), des coefficients d'autodiffusion dans le corium des principales espèces. On note sur le Tableau 7-V que, pour les ions à forte intensité de champ (Fe³⁺, Zr⁴⁺, U⁴⁺), les coefficients sont de l'ordre de 10⁻⁹ m²/s, excepté pour le corium de Tchernobyl, très riche en silice (2×10^{-10} m²/s).

| Composition | А | В | C | D | E | F | G |
|---|--------------------|--------------------|---------------------|--------------------|--------------------|---------------------|---------------------|
| | 20 cm | 150 cm | 300 cm | 20 cm | 150 cm | EPR | TCHERNOBYL |
| | BSC | BSC | BSC | BS | BS | | «brun-chocolat» |
| SiO ₂ , % mol. | 10 | 28 | 32 | 23 | 59 | 21 | 62 |
| T liquidus, K | 2700 | 2300 | 2200 | 2700 | 2300 | 2100 | 2200 |
| Viscosité à T liquidus, mPa¤s | 7 | 22 | 34 | 8 | 40 | 70 | 300 |
| Viscosité à T liquidus + 100 K, <i>mPa</i> ¤s | 6 | 17 | 25 | 7 | 30 | 50 | 200 |
| Proportion de formateurs ⁱ , % mol. | 7 | 22 | 29 | 13 | 49 | 28 | 65 |
| Proportion de modificateurs, % mol. | 93 | 76 | 69 | 87 | 49 | 64 | 28 |
| Proportion d'amphotères, % <i>mol</i> . | - | 2 | 2 | - | 2 | 8 | 7 |
| Coefficient d'autodiffusion des ions de forte intensité de champ ⁱⁱ (Fe^{3+} , Zr^{4+} , U^{4+}) m^2/s | 4 10 ⁻⁹ | 1 10 ⁻⁹ | 6 10 ⁻¹⁰ | 5 10 ⁻⁹ | 3 10 ⁻⁹ | 9 10 ⁻¹⁰ | 2 10 ⁻¹⁰ |

Tableau 7-V: Propriétés des diverses compositions de corium

7.4.2. Thermohydraulique du bain et vitesses de solidification attendues

Une des principales particularités d'un bain de corium est la présence d'une puissance résiduelle volumique due à la radioactivité des produits de fission et des actinides. La corrélation suivante (Seiler et al., 2001) permet d'estimer la puissance en fonction du rapport entre la fraction molaireⁱⁱⁱ y d'UO₂ au temps t (en secondes) depuis le début de l'interaction, pris ici 3 heures après le début de l'accident pour un REP de 1000 MWe, et la fraction molaire y_0 d'UO₂ au début de l'interaction (Figure 7-12) :

$$q(W/m^3) = \frac{y}{y_0} \cdot \left(-1.0122 \cdot 10^6 + \frac{1.6273 \cdot 10^7}{(t+10800)^{0.1742}} \right)$$
(7-14)

Dans les configurations en puits de cuve, on devrait avoir au maximum pour un réacteur de 900 à 1000 MWe, environ 13 m³ de corium dans un cylindre de 6 m de diamètre (28 m²), soit une épaisseur moyenne égale au maximum à 45 cm. En supposant que, du fait du brassage du bain par les gaz issus du chauffage du béton, la répartition des flux entre les faces inférieures et supérieures sera approximativement isotrope, on trouve que le flux à long terme sera de l'ordre de 150 kW/m² (Seiler

ⁱ Les fractions molaires de silice et de formateurs sont différentes bien que la silice soit le seul formateur de réseau présent dans le bain car, pour la représentation en formateur, modificateurs et amphotères retenue par Ramacciotti (1999), on considère des moles de formule M_xO (ou M est un métal pouvant être mono-, bi- ou tétra-valent).

ⁱⁱ Le coefficient de diffusion et la viscosité varient beaucoup selon le degré d'oxydation du fer dans ce mélange riche en *Fe*.

ⁱⁱⁱ Vu que l'on considère dans la formule (7-14) un rapport de fractions d'UO₂, celles-ci peuvent aussi bien être massiques ou volumiques sans affecter la validité de la formule.

et Froment, 2000). Le gradient de température dans la couche limite suit en régime permanent la relation :

$$G \equiv gradT = \frac{q}{\lambda} \tag{7-15}$$

où λ est la conductivité thermique, de l'ordre de 3 W/(m × K) et q le flux de chaleur, ce qui donne un gradient de température de l'ordre de 5 ×10⁴ K/m.



Figure 7-12 : Evolution de la puissance résiduelle dans le corium

Estimation de G/R pour 45 cm de corium



Figure 7-13 : Rapport G/R pour la solidification de croûtes due à l'évolution de la puissance résiduelle

Seiler et Froment (2000) ont montré que le taux d'accroissement des croûtes dû à la décroissance du flux thermique s'écrivait :

$$R = -\frac{\lambda_{cr} \cdot \Delta T_{sol}}{\varphi^2} \cdot \frac{\partial \varphi}{\partial t}$$
(7-16)

où ΔT_{sol} est la différence de température entre les deux faces de la croûte (de l'ordre de 1000 K) et λ_{cr} est la conductivité thermique de la croûte [~ 3 kW/(m × K)]. La Figure 7-13 montre que le rapport G/R contrôlant le régime de solidification reste entre 1 et 3 × 10¹² SI pendant la majorité de la séquence accidentelle.

7.4.3. Modes de solidification prévus lors d'un accident grave

Les essais URAN ET VP décrits dans le paragraphe 7.3 nous ont permis d'établir une corrélation entre la fraction de silice dans le bain et le seuil de solidification, pour des températures comprises entre 2100 et 2450 K, correspondant aux températures attenduesⁱ pour tous les bains de corium, excepté les compositions A et D.

$$\frac{G}{R}\Big|_{seuil} \approx 7 \cdot 10^{10} \cdot e^{22.3 \cdot y_{SiO_2}}$$
(7-17)

Pour les coriums A et D à plus haute température, le coefficient de diffusion sera plus élevé et le seuil sera donc plus bas. Les seuils estimés à partir de la corrélation (7-4) sont indiqués dans le *Tab. 7-VI* cidessous. Il apparaît qu'excepté les premières phases de l'interaction corium-béton (c'est à dire pour les compositions de type A ou D), la solidification engendrée par la décroissance de la puissance résiduelle est, malgré sa faible vitesse (< 10^{-7} m/s), supérieure au seuil de solidification en front-plan. Pour la configuration F (EPR), la solidification sera vraisemblablement de type cellulaire, selon les critères de Caroli et al. (1991) - entre 1 et 12 fois le seuil de front-plan, ce qui ne devrait pas influer grandement sur la condition aux limites thermohydrauliques (la température d'interface sera quasi égale à la température de liquidus du bain résiduel).

Lors de transitoires plus rapides (lors de la mise en contact du corium avec le béton ou lors d'une rupture locale de la croûte), le taux de solidification sera de plusieurs ordres de grandeur supérieur à la valeur utilisée pour tracer la *Fig. 7-13*. De ce fait, on s'attend à ce que la solidification ne soit pas de type front-plan dans ces phases.

Par contre, le corium «en cuve» sans silice aura un seuil assez bas ($G/R_{seuil} < 10^{11}$ SI). De ce fait, on se trouvera dans une configuration de solidification en front-plan dès lors qu'il n'y aura pas de silice dans le corium (solidification en cuve ou dans un récupérateur céramique, par exemple).

| Composition | А | | В | | С | | D | E | | F | G |
|------------------|----------------------|---|--------------------|----|--------------------|----|--------------------|--------------------|----|--------------------|----------------------|
| | 20 c | m | 150 | cm | 300 | cm | 20 cm BS | 150 | cm | EPR | TCHERNOBYL |
| | BSC | | BSC | | BSC | | | BS | | | «brun-chocolat» |
| SiO ₂ | 10% _{mol} | | 28% m | ol | 32% _{mo} | ι | 23% _{mol} | 59% _{mol} | L | 21% _{mol} | 62 % _{mol.} |
| T liquidus, K | 2700 | | 2300 | | 2200 | | 2700 | 2300 | | 2100 | 2200 |
| G/R | < 7.10 ¹¹ | | 3.10 ¹³ | 5 | 9.10 ¹³ | | < 10 ¹³ | 4.10 ¹⁶ | | 6.10 ¹² | 7.10 ¹⁶ |

| Tableau 7-VI: Estimat | tion des seuils de so | lidification en fonc | tion de la composition |
|-----------------------|-----------------------|----------------------|------------------------|
|-----------------------|-----------------------|----------------------|------------------------|

En conclusion, pour la solidification à long terme liée à la décroissance de la puissance résiduelle, les hypothèses du modèle couplé physicochimie-thermohydraulique (Seiler & Froment, 2000) sont rigoureusement vérifiées dans tous les cas avec solidification en front-plan (corium sans silice ou très peu de silice) et sont pratiquement atteintes dans les cas avec solidification cellulaire proche du front-plan (mélange corium béton contenant au plus $25\%_{mol}$ de silice, ce qui inclue le corium sortant du puits de cuve d'EPR et le corium au début de l'interaction corium-béton). Pour des mélanges contenant plus $25\%_{mol}$ de silice (ce qui correspond environ à 1,2 m de béton silico-calcaire ou plus de 75 cm de béton siliceux) le critère ne sera jamais respecté. Pour ce qui est des transitoires, on ne respectera les critères de solidification que pour des compositions sans silice ou avec quelques pour-cent de silice. Il conviendra néanmoins de s'assurer que le bullage des gaz de décomposition du béton n'influe pas trop sur ces seuils.

ⁱ On s'attend à une faible différence de température (< 50 K) entre l'interface (à la température de liquidus) et le bain de corium.

Chapître 8 L'interaction Corium-Béton

Dans le cas hypothétique d'un accident grave de réacteur nucléaire, on peut avoir une Interaction entre le Corium et le Béton (ICB) du puits de cuve, en cas de percement de la cuve. Lors de l'accident de Tchernobyl, un corium s'est étalé dans les pièces situées sous le réacteur, a interagi avec des parois en béton et s'est stabilisé sans intervention extérieure. Dans le cadre de l'étude de la sûreté de réacteurs nucléaires, le CEA a entrepris un programme de R&D expérimentale sur cette interaction.

Dans un premier temps, nous présenterons plus en détail le matériau *béton* que nous avons étudié, puis nous décrirons son comportement en température, grâce à des études thermiques, calorimétriques et des analyses matériaux. Nous présenterons ensuite les essais réalisés dans l'installation VULCANO avec un corium oxyde puis avec de l'oxyde et du métal et, enfin les études relatives à l'interprétation et à la modélisation de ces essais.

8.1. TENUE DU BETON A HAUTE TEMPERATURE

Le béton est un matériau de structure présent dans la plupart des constructions modernes. Il s'agit d'un mélange, précisément dosé, d'agrégats et d'une phase liante composée de ciment, d'eau, et éventuellement d'adjuvants. Il possède des avantages face au feu, comme le fait qu'il soit incombustible, et qu'il ait une faible diffusivité thermique, à la différence des constructions métalliques. Par contre, un béton soumis à de hautes températures va subir des transformations physico-chimiques qui vont altérer sa tenue et peuvent amener à sa dégradation. C'est ce qui s'est passé dans certains incendies de tunnels tels que celui sous la Manche en 1996 ou celui du Mont-Blanc en 1999.

Le béton est un matériau hétérogène constitué d'un mélange précisément dosé de ciment, de sable, de graviers et d'eau. Les utilisations principales du béton dans les centrales nucléaires sont l'enceinte de confinement et son radier, les protections biologiques et les parois de certains types de réacteurs (Vodak et al., 1997). L'enceinte de confinement en béton englobe le réacteur et le circuit primaire et sert de barrière ultime contre le relâchement de radioéléments. De ce fait, elle doit résister à tous les chargements envisageables, y compris dans un scénario d'accident grave.

Nous avons étudié en détail (Malaval, 2006 ; Journeau & Malaval, 2006 ; Journeau et al., 2007b) deux bétons typiques des centrales nucléaires françaises: Ils sont composés d'un ciment CEM I 52,5N et d'agrégats de 0 à 16 mm (Tableau 8-I), soit riches en silice soit riches en calcaires. La composition chimique moyenne des deux bétons typiques considérés dans cette étude est donnée dans le Tableau 8-II.

| Constituants | Sable | Sable | Gravier | Gravier | Gravier | Ciment | Fau |
|--------------------------|--------|--------|---------|---------|----------|--------------|-----|
| Constituants | 0-2 mm | 0-6 mm | 5-8 mm | 8-11 mm | 11-16 mm | CEM I 52,5 N | Edu |
| Fraction Massique (%) | 12,2 | 18,4 | 16,6 | 20,4 | 10,4 | 15,3 | 6,7 |

Tableau 8-I: Composition des bétons étudiés.

| | SiO ₂ | CaO | CO ₂ | Al_2O_3 | H_2O |
|-------------------------|------------------|------|-----------------|-----------|--------|
| Béton riche en silice | 63 % | 16 % | 9 % | 5 % | 3 % |
| Béton riche en calcaire | 25% | 41% | 25% | 2% | 3% |

Tableau 8-II : Composition massique des deux bétons considérés (constituants principaux)

Le comportement de ce béton soumis à de hautes températures à été analysé à partir d'échantillons cylindriques placés dans un four.

De nombreux auteurs ont décrit le comportement du béton en température et les transformations qui s'y produisent (Noumowe, 1995 ; Khoury, 2000 ; Alarcon-Ruiz et al., 2005) :

- 30 105 °C: évaporation de l'eau libre.
- 110 170 °C: décomposition endothermique du gypse, décomposition de l'ettringite et évaporation de l'eau physiquement liée.
- 180 300 °C: relâchement de l'eau liée des hydrates carboalumineux et silicocalcaires.

- Au-delà de 300°C: augmentation de la porosité et microfissures
- 374 °C: point critique de l'eau
- 450 550 °C: déshydroxylation de la portlandite
- 573 °C: transformation $\alpha \rightarrow \beta$ du quartz présent dans les graviers et le sable
- 700 900 °C: décarbonatation du carbonate de calcium issu de la pâte de ciment et des agrégats calcaires.
- 720 °C: deuxième phase de la déshydroxylation des hydrates silico-calcaires
- A partir de 1050 °C: début de la fusion.

Lorsque le béton riche en silice est soumis à un palier de température, on observe (Figure 8-1) l'apparition de micro-fissures à partir de 300°C et une perte totale de tenue mécanique autour de 800°C. Les variations de couleur du béton sont aussi un bon indicateur de la température maximale atteinte. Plusieurs auteurs (Erlin et al., 1972; St John, 1998; Georgali & Tsakiridis, 2005) ont indiqué que le béton soumis à une température entre 300 et 600°C rosissait, puis virait au gris blanc de 600 à 900°C et tendait vers une couleur chamois après avoir été entre 900 et 1000°C. Nous avons réalisé des observations voisines (Tableau 8-III) qui nous ont servi de « thermomètre à maximum » pour l'analyse du béton après interaction avec le corium. Le béton riche en calcaire a un comportement voisin aux températures comprises entre l'ambiante et 800°C.



Figure 8-1: Echantillons de béton soumis à 400 et 800°C

| Température (°C) | Ambiante | 400 | 500 | | 600 | | 800 |
|------------------|----------|-----|-----|-----------|-------|------|--------|
| Couleur du Béton | Normale | Rou | ıge | Rouge - C | range | Brun | orangé |

Tableau 8-III: Corrélation entre la teinte du béton riche en silice et la température maximale à laquelle il a été soumis

L'analyse thermogravimétrique permet de suivre les pertes de masse (par vaporisation) d'un échantillon. Le gaz émis a été analysé par spectrométrie de masse, ce qui a confirmé les plages de température correspondant à la déshydratation/déshydroxylation et à la décarbonatation. Le béton riche en silice (Figure 8-2) perd environ 13% de sa masse en deux grandes phases (déshydratation autour de 100°C et décarbonatation entre 700 et 800°C). On a aussi mis en évidence les différences de comportement entre le béton et ses constituants (pâte de ciment, sable et gravier). Ces résultats ont été confirmés par des mesures réalisées sur des échantillons de plus grande dimension (quelques hg). Pour sa part, le béton riche en calcaire relâche plus de gaz (28% masse). Du fait de la masse molaire plus élevée du dioxyde de carbone (44 g) comparé à la vapeur d'eau (18g), les débits volumiques de gaz émis par les deux bétons ne sont que dans un rapport 2, pour une vitesse de d'échauffement identique.



Figure 8-2 : ATG du béton, des graviers et de la pâte de ciment (compositions riches en silice)

Nous avons réalisé des analyses thermiques différentielles (ATD) sur des échantillons de béton riche en silice broyés (de l'ordre de 0,1 g), soumis à des rampes de températures de 5°C/min. Ces analyses mettent en évidence les flux de chaleurs dus aux réactions endothermiques ou exothermiques se produisant dans le béton. On observe (Figure 8-3) les transformations suivantes : déshydratation et déshydroxylaxion entre 100 et 450°C, changement de phase du quartz vers 550°C, décarbonatation du calcaire vers 800°C.



Figure 8-3: ATD du béton riche en silice

Les propriétés thermiques du béton doivent se comprendre comme des grandeurs moyennées à une échelle supérieure à celle des constituants du béton. Elles sont de plus affectées par la dégradation (effritement, fissures, changements de phases).

Khoury et al. (1984) ont proposé une technique simple de détermination de la diffusivité thermique d'un échantillon cylindrique de béton. Cet échantillon de rayon a est soumis à une rampe linéaire de température T(t, r=a) = Rt si t>0. En supposant la diffusivité constante, on trouve la solution analytique :

$$T(t,r) = R\left(t - \frac{a^2 - r^2}{4D}\right) + \frac{2R}{aD}\sum_{n=0}^{+\infty} e^{-Dta_n^2} \frac{J_0(ra_n)}{a_n^3 J_1(aa_n)}$$

où a_n est la n^{ième} racine de $J_0(ax)=0$

Lorsque Dt/x² est grand, on peut négliger la somme des fonctions de Bessel ; pour R et D constants, l'écart entre les températures en deux points quelconques du cylindre reste alors constant. En pratique, pour déterminer D, on positionne des thermocouples au centre et proche de la surface du cylindre, ainsi qu'un thermocouple à $\sqrt{3}/3a$, position correspondant à la température moyenne dans le cylindre. A partir des mesures des thermocouples lors de la rampe de température (Figure 8-4), on a estimé la diffusivité (Figure 8-5) de ce béton riche en silice. Les valeurs en dessous de 100°C et au-delà de 800°C ne sont pas valides, car le régime n'était pas établi. Pour ce béton silico-calcaire, les résultats sont plus proches de la valeur proposée par la norme AFNOR (2001) pour les bétons calcaires (0,56.10⁻⁶ m²/s), que celle pour les bétons siliceux (0,69.10⁻⁶ m²/s), même si les agrégats calcaires sont

significativement moins nombreux que les siliceux dans ce béton. Les diffusivités que nous avons obtenues pour ce béton sont proches de celles que Shin et al. (2002) ont trouvé avec une autre technique de mesure, pour le béton de la centrale de coréenne de Yongwang, de composition voisine. Pour le béton riche en calcaire, on considèrera les valeurs issues de la norme calcaires (0,56.10⁻⁶ m^2/s).



Figure 8-4: Thermogrammes acquis dans un cylindre de béton riche en silice



Figure 8-5: Diffusivité thermique mesurée

Fusion des Bétons



Figure 8-6 : Calculs thermodynamiques de l'intervalle de solidification des 2 bétons étudiés

La fusion de ces bétons a été estimée à l'aide du logiciel GEMINI2 et de la base de données NUCLEA041. La Figure 8-6 présente l'évolution de la fraction massique de liquide, à l'équilibre thermodynamique, en fonction de la température. On remarque que les températures de solidus sont voisines (1450 \pm 50 K) alors que les liquidus sont respectivement à 2000 et 2300 K. Le béton riche en calcaire fond donc à une température plus élevée que celui riche en silice. De plus, on a remarqué que les agrégats de silice fondent vers 2000 K alors que le mortier (mélange de ciment, de sable et d'eau) a un liquidus moins élevé (1660 K). Dans le cas du béton riche en calcaire, le mortier et le béton sont de compositions très proches et ont donc des propriétés thermodynamiques voisines.

8.2. Les essais avec un corium oxyde

Pour les essais VULCANO consacrés à l'Interaction Corium Béton (Journeau et al., 2005 ; Malaval et al., 2005 ; Malaval, 2006 ; Journeau et al., 2007b), on a utilisé des sections d'essais (Figure 8-7) en béton de 600x300x400 mm dans lesquelles une cavité hémicylindrique de \emptyset 300 × 250 mm a été aménagée afin de recevoir le corium préalablement fondu dans le four VULCANO. Plus de cent thermocouples (de type K et C) ont été installé dans la section d'essai avant de couler le béton afin de pouvoir suivre la progression de l'ablation du béton par le corium. Trois spires de cuivre refroidies par eau, montées en parallèle autour du bloc de béton (Figure 8-8), permettent de simuler la puissance résiduelle à l'aide d'un chauffage par induction d'une puissance de l'ordre de 15 - 25 kW.

La campagne d'essais relative à l'interaction d'un corium oxyde avec du béton a regroupé trois essais concernant deux compositions de béton et deux compositions de corium (Tableau 8-IV). La première (essai VB-U4) avait un intervalle de solidification s'étendant de 1500 à 2300 K, d'après un calcul thermodynamique effectué avec GEMINI2 et NUCLEA041. Pour les deux essais suivants (VB-U5 et VB-U6), on a fondu une autre composition de corium (avec une fraction de béton plus faible) ayant un solidus estimé à 1500 K et un liquidus à 2450 K. Les deux types de béton décrits au § 8.1 ont été utilisés lors de ces essais.



Figure 8-7 : Une section d'essais en béton gauche: peigne de thermocouples avant la coulée du béton droite : section d'essai avant le versement du corium (Deux thermocouples C dépassent au fond du creuset)



Figure 8-8. Schéma de l'installation

| Essai | VB-U4 | VB-U5 | VB-U6 |
|---------------------------------------|--|-------------------------------------|------------------------------------|
| Composition de la charge de corium | 45 wt.% UO ₂ , | 67 wt.% UO ₂ , | 67 wt.% UO ₂ , |
| | 19 % ZrO ₂ , 20% SiO ₂ , | $17 \% ZrO_2$, $6 \% SiO_2$, | 17 % ZrO ₂ , |
| | 15% Fe ₂ O ₃ | 15% Fe ₂ O ₃ | 6 % SiO ₂ , |
| | | | 15% Fe ₂ O ₃ |
| Masse de corium | 45 kg | 28 kg | 31 kg |
| Composition chimique du béton | 63 wt. % SiO ₂ | 63 wt. % SiO ₂ | 25 wt. % SiO ₂ |
| (fraction massique après séchage) | 25 % CaO | 25 % CaO | 41 % CaO |
| | 5% Al ₂ O ₃ , | 5% Al ₂ O ₃ , | $2\% Al_2O_3$, |
| | 9% CO ₂ | 9% CO ₂ | 25% CO ₂ |
| | 3% H ₂ O | 3% H ₂ O | 3% H ₂ O |
| Température initiale du corium | ~2200 K | ~2400 K | ~2400 K |
| Durée de l'essai | 2 hr | 2 hr 30 | 2 hr |
| Rapport des ablations horizontales et | 2.5 : 1 | 5:1 | 2:1 la première |
| verticales | | | heure |
| | | | 1:1 l'heure |
| | | | suivante |

Tableau 8-IV : Caractéristiques des essais corium oxyde - béton

Ces trois essais ont été réalisés selon des procédures similaires: la charge de corium a été fondue dans le four VULCANO et versée dans la section d'essai (Figure 8-9 gauche). Puis, on relève la goulotte de transfert et on démarre le chauffage par induction, pour au minimum deux heures.

Les thermogrammes (Figure 8-10 présentent des plateaux à 100°C, indiquant la vaporisation de l'eau libre. La déshydroxylation et la décarbonatation se déroulant sur des plages de températures étendues ne sont pas directement visibles sur les thermogrammes. Les effets de ces générations de gaz s'observent à la surface du bain (Figure 8-9 droite) et entraînent une agitation du bain et une convection forcée (Journeau & Haquet, 2007).



Figure 8-9 : Images vidéo de l'essai VB-U4 gauche: versement du corium dans la section d'essai droite : bullage du aux gaz de décomposition du béton





Figure 8-10. Evolution typique des thermocouples lors d'un essai d'interaction corium - béton

L'ablation du béton est indiquée en temps réel par la destruction des thermocouples de type K installés dans le bloc de béton vers 1500-1600 K (Figure 8-10). A cette température, environ un tiers du béton est à l'état fondu (Figure 8-6). L'ablation à la fin de l'essai est aussi mesurée en cartographiant le bloc de béton après retrait du corium (Figure 8-12) à l'aide d'un télémètre laser.

Dans le cas des essais avec du béton riche en silice, cette ablation a été fortement anisotrope : elle a été limitée à quelques centimètres au niveau de la surface inférieure (Figure 8-11) pour l'essai VB-U4 - aucun thermocouple n'a été détruit sous le bain, excepté ceux à 1 mm de profondeur -. Par contre, l'ablation radiale a atteint 10 cm, dont 3,5 cm au bout des 20 premières minutes pour ce même essai (Journeau et al., 2005). Des résultats similaires ont été observés pour l'essai VB-U5 avec le même béton mais une composition différente du corium. Par contre, avec un béton riche en calcaire, l'ablation a été globalement isotrope.

De même, les essais CCI (§ 2.4.8 ; Farmer et al., 2004, 2005, 2006) ont mis en évidence une ablation isotrope d'un béton riche en calcaire et une ablation anisotrope de bétons riches en silice. Il convient aussi de noter que l'ablation du béton granitique (riche en silice) lors de l'accident de Tchernobyl est aussi caractérisée par une ablation préférentielle dans la direction latérale (Figure 1-6).



Figure 8-11 : Cartographie du creuset en béton après l'essai gauche : vue de dessus - droite : 5 profils radiaux



Figure 8-12: Vue de la section d'essais en béton, après démontage partiel du corium. gauche : VB-U4 béton riche en silice - droite : VB-U6 béton riche en calcaire

On a pu aussi mettre en évidence des hétérogénéités spatiales à plus petite échelle, du fait de la nature composite du béton (Figure 8-13). Des agrégats de quartz ont été arrachés de la surface du béton et sont rentrés en suspension dans le corium liquide. Ceci montre que la croûte de corium solidifié à l'interface du corium, si elle existe n'était pas seulement perméable aux gaz et au béton fondu mais laissait passer des graviers solides. Un modèle de la fusion d'un agrégat de silice a été proposé (Carenini, 2006 ; Carenini et al., 2007). Le temps caractéristique de fusion d'un agrégat sphérique de 8mm est de l'ordre d'une minute (dans le corium de VB-U5). Le transfert de chaleur va entraîner la solidification de 12 mm de corium autour du gravier.



Figure 8-13: Echantillon de corium contenant des graviers

Pour les deux essais VB-U4 et U5 avec béton riche en silice, les micrographies réalisées par microscopie électronique à balayage d'échantillons de corium proches de l'interface inférieure ont montré la présence de couches horizontales de compositions différentes : de bas en haut : du mortier fondu (avec quelques pour cents de corium, un mélange corium-béton riche en béton et finalement le bain de corium-béton. La Figure 8-14 montre la microstructure du béton riche en silice sous l'interface horizontale corium-béton. Trois zones sont distinctes : en haut, une zone d'interaction où un peu de corium s'est mélangé à du mortier fondu, puis une zone avec une grande porosité (~20%) et quelques inclusions de corium (silicates d'uranium et de zirconium) et, enfin, une zone moins affectée montrant les agrégats d'origine riches en silice ou en calcaire.



Figure 8-14 : Micrographie composite du béton près de l'interface inférieure corium-béton essai VB-U5: béton riche en silice

La Figure 8-15 montre les compositions de 24 fenêtres déterminées par Spectrométrie de Dispersion d'Energie sur des échantillons de l'essai VB-U5, dans le bain de corium, dans les zones d'interactions axiales et latérales et dans le béton près des interfaces. Il apparaît clairement que ces compositions sont quasi alignées dans le pseudo-ternaire et correspondent à des mélanges, de proportions variables entre l' $(U,Zr)O_2$ et du mortier. Ce résultat, confirmé par l'analyse des échantillons de VB-U4, indique que les graviers ne se sont pas mélangés avec le corium, au moins au niveau de ces échantillons.

Nagasaka et al. (2006), qui ont réalisé des essais d'interaction corium-béton et corium-mortier dans les mêmes conditions ont indiqué que « la vitesse d'ablation d'un béton basaltique (riche en silice) est significativement plus faible que celle du mortier », ce qui est consistant avec les analyses que nous avons réalisées.

Pour ce qui est de l'essai VB-U6 avec un béton riche en calcaire, nous n'avons pas observé de stratification à l'interface inférieure, contrairement aux deux essais sur le béton riche en silice. Deux zones de compositions différentes sont visibles et peuvent être interprétées comme un panache de liquide riche en béton dans le mélange corium-béton (Figure 8-16). Une configuration similaire a été observée sur l'analyse que nous avons réalisée d'un échantillon issu de l'essai CC-2 (Farmer, 2005) réalisé avec un béton américain du type graviers calcaires-sable de silice. Le béton près de l'interface a perdu toute tenue mécanique, vraisemblablement du fait de la décarbonatation du calcaire, ce qui ne nous a pas permis de réaliser de prélèvements.



Figure 8-15 : Diagramme ternaire représentant les compositions massiques obtenues par EDS pour toutes les fenêtres d'analyse des échantillons de VB-U5 (béton riche en silice)





Ces observations sont compatibles avec l'hypothèse selon laquelle une croûte stable était présente en bas du bain de corium au-dessus du béton riche en silice, mais pas du béton riche en calcaire (Carenini et al., 2007 et § 8.4).

8.3. ESSAI AVEC UN CORIUM OXYDE-METAL

La deuxième série d'essais d'interaction corium-béton met en jeu un corium ayant deux phases présentant une lacune de miscibilité (Journeau et al., 2007b) : une phase d'oxydes, similaire à celle de la campagne d'essais précédente et une phase métallique (acier inoxydable représentant le produit de la fusion des internes et de la cuve). La particularité de l'installation VULCANO est de permettre de simuler le chauffage de ce corium oxyde-métal en garantissant que plus de 80% de la puissance ne soit déposée que dans la phase oxyde, ce qui est la répartition prototypique(Nie, 2005).

8.3.1. Adaptation de l'installation VULCANO

Afin de fondre l'acier inoxydable, nous avons développé trois fours à induction (Figure 8-17). Chaque four, d'une capacité de 8 kg est relié à un générateur de 22 kHz afin de pouvoir fondre et surchauffer le métal. Afin de limiter les pertes par rayonnement et l'oxydation, chaque four est recouvert d'un couvercle amovible. Le pilotage de ces fours a été entièrement déporté. Le métal surchauffé est versé dans la section d'essai en faisant basculer les fours. Cette phase a lieu juste après que le corium oxyde ait été versé dans la section d'essais en béton.



Figure 8-17 : Vue de dessus des trios fours de fusion et de la section d'essai

Pour le premier essai de la campagne oxyde-métal (VBS-U1), on a utilisé le même béton riche en calcaire que pour l'essai VB-U6 (Tableau 8-IV). 4 spires à induction entourent la section d'essai afin de simuler la puissance résiduelle. Des spires de cuivre non connectées au générateur sont utilisées pour écranter le champ magnétique. Des pré-essais ont montré que plus de 80% de la chaleur était générée dans la zone supérieure du creuset en béton, dans laquelle se trouvera la phase oxyde, après stratification. Ceci permet de générer la chaleur simulant la puissance radiologique résiduelle de façon prototypique. En effet, dans le cas réacteur, on estime que 80 à 90% de la puissance sera générée dans la phase oxyde (Seiler & Froment, 2000).



Figure 8-18: Schéma de la section d'essai en béton

Durant la phase initiale de l'essai, on s'attend à ce que les deux phases de densités voisines forment une émulsion sous l'influence de l'écoulement des gaz de décomposition du béton. La chaleur sera alors communiquée à la phase continue. Dans cette configuration, la phase où est générée la chaleur n'a pas d'importance pour la thermohydraulique du bain qui est mélangé. Ensuite, du fait de l'incorporation de béton fondu dans la phase oxyde et de la réduction de la vitesse superficielle de gaz, on va avoir stratification : le métal au fond et les oxydes au-dessus.

Le temps de stratification est estimé à l'aide du critère BALISE (Tourniaire & Bonnet, 2003) :

$$j_{g,\text{lim}} = 0.054 \frac{\rho_{lourd} - \rho_{léger}}{\rho_{léger}} \text{ (m/s)}$$

On s'attend à une démixtion au bout d'une dizaine de minutes (Journeau et al., 2007b) dans les conditions de ces essais.

8.3.2. Déroulement de l'essai VBS-U1

Au jour où ce chapitre est rédigé, un seul essai de cette campagne oxyde-métal a été réalisé : VBS-U1. Lors de cet essai, on a fondu et versé environ 35 kg d'oxydes (composition massique de la charge, identique à VB-U6 : 70% UO₂, 16% ZrO₂, 14% produits de décomposition du béton) et 15kg d'acier inoxydable. Les oxydes ont été versés à une température d'environ 2000°C et l'acier à 1700°C. Le chauffage par induction a été maintenu pendant 4 heures à environ 32 kW.

Durant l'interaction, on a observé un relâchement continu de gaz à la surface du bain (Figure 8-19) ainsi que des flammes, attribuées à la combustion dans l'air de l'hydrogène et du monoxyde de carbone issus de la réduction de la vapeur d'eau et du dioxyde de carbone par la phase métallique. Ce fort débit de gaz a entraîné l'éjection de particules de corium (Tourniaire et al., 2002). Ceci a causé la formation de « volcans » à la surface du corium. On a observé fréquemment des écoulements à travers ces orifices « volcaniques » durant toute la durée de l'essai, ce qui prouve qu'à ces instants, le niveau gonflé du bain multiphasique dépassait l'altitude de ces « volcans ».



Figure 8-19. Vue de la surface du bain Durant l'essai VBS-U1

L'impédance équivalente du bain de corium, estimée à partir des paramètres électriques de l'inducteur, a varié significativement durant la période comprise entre 22 et 33 minutes après le début de l'essai. Ceci a été interprété comme le signe de la stratification des phases liquides, qui change les propriétés électromagnétiques du bain dans la zone en regard des spires actives de l'inducteur. Ce temps est du même ordre de grandeur que celui qui a été estimé à l'aide de la corrélation BALISE. La différence peut être due aux soit incertitudes sur la composition précise (et donc la densité) du corium qui est sorti du four, soit à celles sur la corrélation.

L'ablation du béton, suivie à l'aide des thermocouples installés dans le béton, a été anisotrope (plus efficace latéralement que verticalement) la première heure, puis est devenue globalement isotrope pendant les trois heures suivantes. La Figure 8-20 montre le profil final d'ablation et le champ de température dans le béton restant.



Figure 8-20. Forme du profil d'ablation et champ de températures dans le béton au bout des 4 heures de chauffage (Echelles arbitraires).



8.3.3. Observations lors du démontage

Figure 8-21. Un des volcans observés à la surface du bain de corium

A la fin de l'essai, 6 "volcans" (Figure 8-21) étaient visibles à la surface du corium. Il s'agit d'une structure constituée d'une fine couche de corium solidifié (de l'ordre du centimètre d'épaisseur) et d'une cavité occupant plus de la moitié de l'espace qui était rempli par le bain multiphasique (Figure 8-22).

Sous cette cavité, on a trouvé une couche de corium dense, vraisemblablement oxyde, recouverte d'une poudre (Figure 8-22). Dans l'attente des analyses matériaux, on ne peut que conjecturer l'origine de cette poudre et de cette grande cavité. (condensation de vapeurs (SiO, UO, UO₃)?, dégradation d'U₃O₈?). Sous cette couche dense, on a observé une couche de corium plus friable et une autre couche dense, puis la couche de métal et une couche d'oxyde friable au-dessus du béton. Il y a donc eu 7 couches distinctes.

Le résultat le plus surprenant de cet essai est la présence de seulement 1,2 kg de métal (Figure 8-23), soit significativement moins que ce qui avait été calculé : Plus de 10 kg de métal ont été oxydés, et un calcul thermodynamique à l'équilibre indique qu'il faut considérer la totalité des gaz oxydants issus du béton (l'eau libre au-dessus de l'isotherme 100°C, l'eau liée au-dessus de l'isotherme 350°C et le dioxyde de carbone au-dessus de l'isotherme 750°C) pour oxyder une telle masse d'acier. Pour l'instant, les codes d'ICB tels que TOLBIAC-ICB ou MEDICIS ne considèrent que le gaz issu du béton ablaté (au-dessus de 1600°C). Néanmoins, il est peu crédible que tous ces gaz aient été en contact direct avec la couche de métal liquide au fond du creuset en béton et une analyse plus poussée sera nécessaire dès que nous aurons les résultats des analyses matériaux.

Plusieurs échantillons ont été pris et seront analysés sous peu, ce qui devrait permettre d'avoir une meilleure compréhension des phénomènes qui se sont produits dans ce bain. En particulier, la détermination des compositions initiales et finales des oxydes et des métaux devrait permettre de formuler des hypothèses sur les phénomènes d'oxydoréductions qui ont effectivement eu lieu. On peut

rapprocher le profil de couches denses et friables avec les couches enrichies en FeO et Fe_2O_3 qui ont été observées par Bechta et al. (2006) entre de l'acier et un corium en-cuve, dans le cadre des essais METCOR.

Le prochain essai de la campagne « oxyde-métal » permettra d'étudier l'interaction du même corium oxyde-métal avec un béton riche en silice.



Figure 8-22. Coupe schématique des couches trouvées lors du démontage du corium VBS-U1



Figure 8-23. Echantillons de métal et d'oxyde.

8.4. MODELISATION

8.4.1. Modèles phénoménologiques

L'analyse des essais 1D a permis de mettre au point un modèle couplant la thermohydraulique et la physico-chimie, basé sur l'hypothèse de ségrégation de phase impliquant une interface à la température de liquidus du bain (Seiler & Froment, 2000, Spindler et al., 2006c). Néanmoins aucun modèle ne permet à ce jour de rendre compte, de manière prédictive, des résultats obtenus lors des essais en 2D et en particulier de l'anisotropie de l'ablation des bétons riches en silice.

La vitesse d'ablation est, en première approximation proportionnelle au flux de chaleur convectif à l'interface corium béton :

$$V_{abl} = \frac{h(T_{bain} - T_{int\,erface})}{\rho_s \{H_s + c_p (T_{bain} - T_s)\}}$$

où h est le coefficient d'échange convectif dans le corium et $H_s + c_p(T_{bain}-T_s)$ est l'enthalpie nécessaire pour porter une unité de masse de béton de la température initiale à la température du bain de corium.

L'anisotropie peut donc provenir soit d'une anisotropie des coefficients d'échange convectif, soit d'une anisotropie des températures d'interfaces.

8.4.1.1. Convection avec bullage

Des essais (Journeau & Haquet, 2007) ont été réalisés récemment dans la maquette ECLAIR (15x15x13 cm) en utilisant des matériaux simulants (solutions de sucrose à diverses concentrations) respectant une similitude relative au modèle de Deckwer (1992) pour la convection dans un bain avec bullage. En l'absence de bullage, la convection dans un bain soumis à un chauffage interne crée une stratification et le flux de chaleur vers le bas est très faible. La Figure 8-24 montre qu'une faible vitesse superficielle de gaz suffit à déstabiliser la stratification thermique.



Figure 8-24 : Champs de température dû à une source interne de chaleur dans de l'eau. à gauche : sans bullage - à droite : avec une vitesse superficielle de gaz de 1 mm/s

Nous avons pu montrer qu'au-delà d'un nombre de Reynolds de l'ordre de 2, calculé avec la vitesse superficielle de gaz et le diamètre moyen des bulles issus de la corrélation de Mersmann (1978)

$$d_B = 1.8 \sqrt{\frac{\sigma_l}{\Delta \rho.g}}$$

le flux vers la paroi inférieure est indépendant de la vitesse superficielle de gaz (Figure 8-25).



Figure 8-25 : Puissance transmise vers la paroi inférieure (adimensionné à la valeur pour des grandes vitesses superficielles de gaz) lors des essais ECLAIR en fonction du nombre de Reynolds pour différentes solutions de sucrose.

Pour les essais VB-U4 à VB-U6, le nombre de Reynolds a toujours été supérieur à 5, de même que pour les cas réacteurs. La répartition des coefficients d'échanges convectifs en fonction de l'orientation des parois ne doit donc pas varier fondamentalement en fonction du type de béton. De ce fait, nous sommes amenés à faire l'hypothèse que la température d'interface est différente entre les parois verticales et horizontales dans le cas des bétons riches en silice.

8.4.1.2. Modèle de formation de la croûte de corium

Nous avons supposé que la croûte de corium n'était pas stable mécaniquement sur les parois verticales alors qu'elle l'était sur la paroi inférieure du bain de corium. Carenini (2006) et Carenini et al. (2007) ont étudié la solidification et la refusion du corium à cet interface en faisant une hypothèse de régime quasistationnaire. La géométrie et les notations sont indiquées sur la Figure 8-26.



Figure 8-26. Interface inférieure béton solide- béton fondu - croûte et bain de corium

Dans l'hypothèse de quasi-stationnarité, on peut considérer que les flux aux différentes interfaces sont égaux. Le flux net au front de solidification est donné par :

$$F = V_c \ \rho_0 \left\{ H_0 + c_p (T_0 - T_{liq}) \right\} + F_a$$
(1)

où $V_c = h_c / \tau_c$ est la vitesse de solidification de la croûte et F_a est le flux convectif provenant du bain. Le flux conductif à travers la croûte est alors de :

$$F = k_c \frac{T_{liq} - T_{cm}}{h_c}$$
(2)

A travers la couche de béton fondu, chauffé par le haut, on considère uniquement les transferts conductifs, en négligeant une éventuelle convection due au bullage:

$$F = \frac{k_m (T_{cm} - T_m)}{h_m}$$
(3)

La fusion du béton suit :

$$F = V_m \rho_s \left\{ H_s + c_p \left(T_m - T_s \right) \right\}$$
(4)

Le béton sous le front de fusion est réchauffé sur une épaisseur h_s qui peut être estimée par :

$$h_{s} = -\frac{\pi\kappa_{s}}{2V_{m}} + \frac{1}{2}\sqrt{\left(\frac{\pi\kappa_{s}}{V_{m}}\right)^{2} + 4\pi\kappa_{s}\tau_{c}}$$
(5)

On peut alors estimer le temps caractéristique de solidification de la croûte :

$$\tau_{c} = \frac{\rho_{0} \{H_{0} + c_{p} (T_{0} - T_{liq})\} k_{c} (T_{liq} - T_{cm})}{F_{c}^{2}}$$
(6)

Ces 6 équations correspondent à 6 inconnues : les trois épaisseurs h_c , h_m et h_s , le flux F, la température d'interface T_{cm} et le temps caractéristique τ_c et peuvent être résolues numériquement.

| Essai | VB-U5 | VB-U6 |
|--|----------|----------|
| Temps de solidification $\tau_{\rm c}$ | 2210 s | 1330 s |
| Vitesse de solidification V _m | 1.8 cm/h | 1,7 cm/h |
| Épaisseur maximale de croûte h _{c,max} | 6.6 cm | 4.8 cm |
| Température de la face froide de la croûte $T_{c,m}$ | 1736 K | 1893 K |

Tableau 8-V : Temps caractéristiques de solidification de la croûte de corium

Les temps caractéristiques sont de l'ordre de la demi-heure et on a une épaisseur plus faible pour l'essai avec le béton riche en calcaire, a priori du fait de la température plus élevée du béton fondu. Par ailleurs, dans le béton siliceux, les agrégats de quartz ont un point de fusion (2000 K) beaucoup plus élevé que celui du mortier (autour de 1600 K), on va alors avoir un déchaussement de graviers qui vont servir de point froid pour la solidification du corium.

Un modèle de la fusion de ces graviers et du refroidissement du fluide environnant (Kerr, 1994) a été appliqué (Carenini et al., 2007) et montre que cet effet pourrait entraîner la solidification rapide d'environ un centimètre de corium.

8.4.1.3. Modèle de refusion de la croûte de corium

La présence de la chaleur résiduelle entraîne un apport continu de chaleur au niveau de la croûte qui va donc pouvoir fondre après avoir atteint son épaisseur maximale. A l'instant $\tau_{c+}\tau$, on a le flux suivant à l'interface supérieure de la croûte:

$$F = -V_{c1} \rho_0 \left[H_0 + c_p \left(T_{liq} - T_{cm} \right) \frac{h_{c1}}{2h_c} \right] + F_a$$
(7)

où $h_{c1}=V_{c1}$, τ est l'épaisseur refondue et le terme $h_{c1}/2h_c$ ($T_{liq}-T_{cm}$) prend en compte un profil linéaire de température dans la croûte. Le flux conductif dans l'épaisseur de croûte restante est donné par :

$$F = k_c \frac{T_{liq} - T_{cm1}}{h_c - h_{c1}}$$
(8)

Le flux conductif dans le béton fondu vaut:

$$F = \frac{k_m (T_{cm1} - T_m)}{h_m + h_{m1}}$$
(9)

où h_{m1} est l'épaisseur de béton fondu durant la phase de refusion de la croûte. Finalement,

$$F = V_m \ \rho_s \left[H_s + c_p (T_m - T_s) \frac{h_{m1}}{2h_s} \right]$$
(10)

Ces 4 équations correspondent à 4 inconnues : h_{c1} , h_{m1} , F et T_{cm1} et peuvent être résolues numériquement. Le Tableau 8-VI présente l'évolution de la refusion de la croûte une heure après la fin de la phase de solidification. Les vitesses de refusion sont semblables pour les deux essais, mais l'épaisseur initiale était plus forte lors des essais en béton riche en silice.

| Essai | VB-U5 | VB-U6 |
|---|----------|--------|
| Temps τ _c + 1 h | 5810 s | 5130 s |
| Epaisseur résiduelle de croûte h _c | 4 cm | 2 cm |
| Vitesse de refusion V _m | 1.7 cm/h | 2 cm/h |
| Température de la face froide de la croûte T _{c,m} | 1920 K | 2220 K |

Tableau 8-VI : Refusion de la croûte

8.4.1.4. Dissolution des croûtes de corium

Nous allons maintenant étudier la dissolution de la croûte de corium par le béton fondu. Les diagrammes de phase pseudobinaires corium-béton établis à l'aide du logiciel GEMINI2 et de la base NUCLEA051 (Figure 8-27) indiquent que le mélange de corium et de béton va diminuer la température de liquidus et permettre la dissolution de la croûte. Le corium étant plus dense que le béton, la configuration est favorable à la convection (Figure 8-28).







Figure 8-28. Dissolution de la croûte de corium par le béton fondu en bleu: températures - en vert: concentration de béton

La conservation des espèces chimiques à l'interface corium- béton implique :

$$D\frac{C_{m}-C_{i}}{h_{d}} = (C_{i}-C_{0})V_{i}$$
(11)

où C_0 , C_i et C_m sont les concentrations en béton respectivement dans la croûte de corium, à l'interface et dans le bain de béton fondu. La convection solutale va démarrer, en négligeant ici l'effet du bullage de gaz, quand le nombre de Rayleigh solutal,

$$Ra = \frac{g(\rho_i - \rho_m)h_d^3}{D\mu_m} \quad (12)$$

dépasse une valeur critique. Selon Kerr (1994b), ce nombre de Rayleigh critique est de l'ordre de $(0.32 \pm 0.04)^{-3}$. La vitesse moyenne de dissolution vaut alors :

$$V_{i} = \frac{C_{m} - C_{i}}{C_{i} - C_{0}} \left(\frac{g(\rho_{i} - \rho_{m})D^{2}}{Ra_{c}\mu_{m}}\right)^{1/3}$$
(13)

La concentration à l'interface est déterminée à l'aide du pseudo-binaire comme la concentration de liquidus à la température fixée par la résolution des équations de thermique.

$$V_{i} = \frac{(1 - C_{i})^{4/3}}{C_{i}} \left(\frac{g(\rho_{0} - \rho_{m})D^{2}}{Ra_{c}\mu_{m}}\right)^{1/3}$$
(14)

Le coefficient de diffusion peut être estimé à l'aide du modèle empirique de Mungall (2002), recommandé par Frolov (2004) pour les mélanges corium béton. La formule ci-dessous nous donne le coefficient de diffusion des ions U^{4+} dans le bain de béton:

$$\log\left(\frac{D\mu}{T}\right) = -8.7 - 2.87 \ \chi \quad (15)$$

où χ est le rapport entre les modificateurs de réseau (principalement les oxydes de calcium) sur les oxygènes dans le bain. On trouve un coefficient de diffusion à la température de « fusion » du bétonⁱ de l'ordre de 10⁻¹¹ m²/s pour VB-U5 et de 10⁻¹⁰ m²/s pour VB-U6. La principale différence entre ces deux bétons est due aux températures *de fusion* différentes de ces deux matériaux.

L'évolution de la vitesse de dissolution a été tracée sur la Figure 8-29 pour ces deux essais dans l'intervalle entre la température de contact initial et la température de liquidus du corium. La température de la face inférieure de la croûte évolue entre ces deux températures au cours de la dissolution.

ⁱ On ne peut pas parler stricto sensu de température de fusion pour un matériau comme le béton qui non seulement est hétérogène, mais a un intervalle de fusion important entre ses températures de solidus (de l'ordre de 1400 K) et de liquidus (2200 K pour le béton VB-U4/U5 riche en silice, 2300 K pour le béton riche en calcaire de VB-U6 - cf. Figure 8-6). Dans les codes de calcul, on prend souvent comme température de fusion du béton, une température correspondant à environ 30 % de liquide. Cette fraction liquide correspond, pour les roches magmatiques au début de l'écoulement lors de la chauffe du matériau (Vigneresse et al., 1996). Ce seuil est de l'ordre de 1573 K pour le béton de VB-U4/U5 et de 1700 K pour celui de VB-U6 (Carenini, 2006).



VB-U5

Figure 8-29 Evolution de la vitesse de dissolution avec la température pour VB-U5 et VB-U6.

On voit que pour le béton riche en calcaire (VB-U6) les vitesses de dissolution (2 à 12 cm/s) sont plus grandes que pour le béton riche en silice. De ce fait, avec un béton calcaire, la croûte se dissoudra plus rapidement et sera détruite à la fois par refusion de sa face supérieure et dissolution de sa face inférieure. Pour VB-U6 le temps de formation dissolution de la croûte est de l'ordre d'une heure. Ceci correspond à la période pour laquelle on a observé une ablation anisotrope, avant qu'elle ne devienne isotrope. Par contre pour VB-U5, la croûte inférieure n'est détruite qu'après 4 heures environ, soit après la fin de l'essai.

8.4.1.5. Convection en l'absence de croûte - Fluides à viscosité variable

Dans le cas du béton riche en silice, les conditions d'interface sont différentes entre les deux parois : Croûte avec interface à la température de liquidus (Seiler & Froment, 2000) pour la paroi inférieure et absence de croûte pour la paroi verticale. Si on considérait que la température d'interface était à la « température de fusion » du béton, le rapport des vitesses d'ablation étant proportionnel au rapport des écarts de température bain-interface, on aurait une ablation latérale beaucoup plus élevée qu'en réalité. Nous pouvons considérer qu'en dessous du liquidus, le corium devient de plus en plus visqueux (cf § 4.2.2). L'étude de la convection dans des fluides à viscosité variable (Ng Win Tin, 2004, 2005) pourra donc être étendue au corium.

Lors d'échanges convectifs, la zone la plus froide, qui est la plus visqueuse, ne va pas participer significativement à l'écoulement et donc au transport de la chaleur. L'objectif de cette étude est de déterminer une température d'interface permettant d'utiliser les corrélations classiques de convections avec ce type de fluides.

Les résultats des expériences de convection naturelle du type Rayleigh-Bénard pour des fluides à viscosité variable dues à Richter et al (1983), Chu et Hickox (1990), Davaille & Jaupart (1993) ainsi que de Christensen & Giannandrea (1993) ont été analysés. Ces auteurs ont proposé des corrélations qui ne sont pas applicables pour les autres essais. En général, les propriétés physiques sont évaluées à la température moyenne des conditions aux limites hautes et basses, mais certains auteurs les évaluent sur une des surfaces (Fowler, 1985; Morris & Canwright, 1984). Or en présence d'une couche

stagnante, la température dans la zone soumise aux mouvements convectifs est a priori différente de ces trois températures.

Pour chaque essai, nous avons défini une température équivalente d'interface telle que le flux de chaleur soit égal à celui qu'échangerait un fluide, à la température du bain et de viscosité constante égale à celle du centre du bain, avec des frontières à cette température équivalente d'interface. Nous allons corréler cette température équivalente avec les caractéristiques de la convection dans la partie « non stagnante » du bain. On peut alors modéliser les transferts de chaleur dans un bain multi-constituants soumis à une puissance volumique, avec des parois en dessous de la température de liquidus. L'originalité de cette approche, comparée par exemple aux travaux de Solomatov (1995), est de baser les nombres adimensionnés sur la différence de température entre le bain et une température équivalente d'interface et non sur la différence de température entre les faces froides et chaudes.

Les essais de convection naturelle dans des fluides à viscosité variable (Richter et al., 19983 ; Chu & Hickox, 1990, Davaille & Jaupart, 1993, Christensen & Giannandrea , 1993) ont été réalisés dans des récipients en Plexiglas recouverts d'une paroi conductrice (en aluminium ou cuivre) dans laquelle circule un liquide thermostaté. Les faces latérales sont isolées. Dans les expériences de Davaille et Jaupart (1993), le fond est aussi isolé et la température du bain décroît lentement de la température initiale à celle de la paroi supérieure tandis qu'il est soumis à une température plus élevée que la température de la paroi supérieure dans les autres essais. La Figure 8-30 présente ces deux configurations.



Figure 8-30: Configurations expérimentales À gauche : expériences de Davaille et Jaupart (1993) - A droite : autres configurations

Les fluides utilisés sont aussi bien des sirops de sucres ou des mélasses que des huiles, soit deux lois rhéologiques différentes. On peut considérer, au moins localement, que la viscosité dépend exponentiellement de la température, ce qui permet de définir une température caractéristique par :

$$\Delta T_c = \frac{\eta(Ti)}{\frac{\partial \eta}{\partial T}(Ti)} \tag{1}$$

et d'adimensionner les différences de température par :

$$\theta = \frac{\Delta T}{\Delta T_c} \tag{2}$$

L'écart de température adimensionnée θ peut être considérée, dans le cas d'une loi exponentielle liant viscosité et température, comme le logarithme du rapport des viscosités entre l'interface et la zone mélangée.

Pour chacune des expériences, les mesures de température permettent de déterminer une zone où la température est homogène (Figure 8-31). Du fait de la présence de la couche stagnante près de la paroi froide, la température T_i de cette zone mélangée n'est pas égale à la moyenne des températures aux deux parois, comme pour la convection naturelle avec un fluide à viscosité constante. La distinction entre une couche stagnante et une couche limite est un peu arbitraire et sera précisée ciaprès.

On a indiqué dans le Tableau 8-VII, pour chaque essai considéré, l'épaisseur de la couche stagnante relative à la hauteur totale et le contraste de viscosité entre la zone mélangée et la paroi froide.



température

Figure 8-31: Champ de température lors d'un essai de convection avec viscosité variable

Afin de pouvoir comparer les données provenant de 28 essais différents issus de 4 installations d'essais, nous avons pris les conventions suivantes :

- Les propriétés physiques sont estimées à la température de la zone mélangée.
- A partir de la connaissance du flux de chaleur vers le haut, on a défini itérativement la température équivalente d'interface T_{int} de telle sorte que le flux de chaleur soit égal à celui qu'échangerait un fluide, à la température du bain et de viscosité constante égale à celle de la zone mélangée, avec des frontières à cette température équivalente d'interface. Pour ce faire, on a utilisé la corrélation de Katsaros et al (1977), Nu =0.156 Ra^{0.33} pour la configuration adiabatique à la paroi inférieure et celle de Booker (1976), Nu = 0.18 Ra^{0.281} pour les autres essais. L'épaisseur de la couche limite est donc obtenue à partir de mesures de gradient de température ou de flux de chaleur et de corrélations classiques. L'épaisseur de couche stagnante ainsi obtenue par différence n'est donc pas la même que celle déterminée par chaque expérimentateur, à l'aide de définitions différentes.
- Les nombres de Nusselt $\frac{q d}{\lambda (T_{bain} T_{int})}$ et de Rayleigh $\frac{\alpha g C_p \rho^2 d^3 (T_{bain} T_{int})}{\lambda \eta}$ sont définis à partir

de la différence de température entre la zone mélangée et la température d'interface (T_{bain} - T_{int}), contrairement aux travaux antérieurs où l'on prenait en compte la température de la paroi froide T_1 .

Les nombres adimensionnés calculés selon la procédure exposée ci-dessus ainsi que le contraste de viscosité entre la zone mélangée du bain et l'interface virtuelle et l'épaisseur de la zone stagnante ainsi définie sont indiqués pour chaque essai dans le Tableau 8-VII. Pour certains essais, correspondant au régime à faible contraste de viscosité décrit par Solomatov (1995), la couche stagnante est d'épaisseur négligeable, tandis qu'elle peut dépasser 15 % de la hauteur totale - par exemple pour les essais en mélasse de Richter et al. (1983), correspondant à un régime à couche stagnante au sens de Solomatov (1995).

Nous avons pu corréler θ , la différence de température entre la zone mélangée du bain et l'interface virtuelle, adimensionnée par la température caractéristique de la viscosité et les nombres de Nusselt et de Rayleigh.

| Essai | Fluid e | Contraste total de viscosité | Contraste de viscosité interface/bain | Épaisseur relative de zone stagnante | Nusselt | Rayleigh | ΔTc | θ |
|----------------|---------------|---------------------------------|---|--|----------|----------|----------|----------|
| Davaille 4,19 | mélasse | 3,00E+01 | 1,81E+01 | 0,41% | 1,65E+01 | 1,38E+06 | 1,12E+01 | 2.2E+00 |
| Davaille 4,18 | mélasse | 9,00E+01 | 1,66E+01 | 1,80% | 1,22E+01 | 5,48E+05 | 9,91E+00 | 2.1E+00 |
| Davaille 4,40 | mélasse | 1,00E+02 | 1,68E+01 | 2,35% | 9,78E+00 | 2,85E+05 | 9,09E+00 | 2.1E+00 |
| Davaille 4,15 | mélasse | 7,00E+02 | 1,67E+01 | 3,89% | 1,10E+01 | 4,01E+05 | 9,58E+00 | 2.3E+00 |
| Davaille 4,14 | mélasse | 8,00E+02 | 1,37E+01 | 4,74% | 1,04E+01 | 3,41E+05 | 9,48E+00 | 2.2E+00 |
| Davaille 4,13 | mélasse | 1,00E+03 | 1,12E+01 | 7,98% | 7,20E+00 | 1,13E+05 | 8,40E+00 | 2.0E+00 |
| Davaille 4,44 | mélasse | 8,00E+03 | 1,16E+01 | 8,05% | 9,16E+00 | 2,35E+05 | 9,22E+00 | 2.61E+00 |
| Davaille 4,16 | mélasse | 5,00E+04 | 1,30E+01 | 9,80% | 8,35E+00 | 1,77E+05 | 8,91E+00 | 2.0E+00 |
| Davaille 4,43 | mélasse | 1,00E+05 | 1,46E+01 | 10,36% | 7,84E+00 | 1,47E+05 | 8,67E+00 | 2.1E+00 |
| Davaille 4,41 | mélasse | 8,00E+05 | 1,39E+01 | 12,97% | 7,18E+00 | 1,12E+05 | 8,50E+00 | 2.7E+00 |
| Richter 1 | Huile L100 | 1,20E+01 | 2,26E+00 | 10,85% | 3,14E+00 | 7,66E+02 | 1,11E+01 | 2.3E+00 |
| Richter 2 | Huile L100 | 2,26E+01 | 2,92E+00 | 8,14% | 4,84E+00 | 6,67E+03 | 1,48E+01 | 2.1E+00 |
| Richter 3 | Huile L100 | 1,03E+02 | 5,75E+00 | 11,17% | 2,88E+00 | 1,40E+03 | 1,10E+01 | 1.9E+00 |
| Richter4 | Huile L100 | 8,00E+02 | 3,79E+00 | 10,70% | 7,97E+00 | 3,55E+04 | 2,05E+01 | 2.1E+00 |
| Richter 5 | mélasse | 4,28E+03 | 1,03E+01 | 16,65% | 2,86E+00 | 1,15E+03 | 1,22E+01 | 2.2E+00 |
| Richter 6 | mélasse | 1,04E+05 | 2,23E+01 | 16,50% | 2,86E+00 | 1,62E+03 | 1,24E+01 | 2.7E+00 |
| Christensen 2 | Sirop de maïs | 4,68E+01 | 1,14E+01 | 0,14% | 2,28E+01 | 3,75E+03 | 9,40E+00 | 2.6E+00 |
| Christensen 3 | Sirop de maïs | 4,73E+01 | 9,93E+00 | 1,48% | 2,45E+01 | 3,90E+03 | 9,58E+00 | 2.2E+00 |
| Christensen 4 | Sirop de maïs | 4,81E+01 | 1,10E+01 | 1,15% | 2,84E+01 | 8,69E+03 | 1,08E+01 | 2.0E+00 |
| Christensen 5 | Sirop de maïs | 5,00E+01 | 1,15E+01 | négligeable | 1,39E+01 | 7,50E+02 | 7,57E+00 | 2.2E+00 |
| Christensen 6 | Sirop de maïs | 5,05E+01 | 9,90E+00 | 2,01% | 1,55E+01 | 7,59E+02 | 7,70E+00 | 2 3E+00 |
| Christensen 7 | Sirop de maïs | 9,29E+01 | 1,44E+01 | 1,61% | 2,15E+01 | 4,02E+03 | 9,45E+00 | 2.6E+00 |
| Christensen 8 | Sirop de maïs | 9,50E+01 | 1,38E+01 | 2,64% | 2,82E+01 | 1,12E+04 | 1,12E+01 | 2.3E+00 |
| Christensen 9 | Sirop de maïs | 9,74E+01 | 1,35E+01 | 2,49% | 2,27E+01 | 4,38E+03 | 9,65E+00 | 2.3E+00 |
| Christensen 10 | Sirop de maïs | 1,02E+02 | 1,35E+01 | 2,79% | 1,37E+01 | 8,25E+02 | 7,70E+00 | 1.5E+00 |
| Christensen 11 | Sirop de maïs | 3,27E+02 | 2,25E+01 | 3,58% | 1,02E+01 | 8,14E+02 | 7,56E+00 | 1 9E+00 |
| Christensen 12 | Sirop de maïs | 1,08E+03 | 3,17E+01 | 5,70% | 8,84E+00 | 9,19E+02 | 7,66E+00 | 1.0E+00 |
| Christensen 13 | Sirop de maïs | 2,15E+03 | 3,08E+01 | 4,97% | 2,37E+01 | 1,57E+04 | 1,16E+01 | 1.1E+00 |
| Christensen 14 | Sirop de maïs | 5,50E+03 | 3,28E+01 | 6,01% | 2,48E+01 | 2,00E+04 | 1,22E+01 | 8 7E-01 |
| Christensen 15 | Sirop de maïs | 1,13E+04 | 3,70E+01 | 6,18% | 2,38E+01 | 2,00E+04 | 1,21E+01 | 4.6E-01 |
| Christensen 16 | Sirop de maïs | 3,18E+04 | 3,99E+01 | 6,84% | 2,44E+01 | 2,40E+04 | 1,26E+01 | 2 2E±00 |
| Chu 1 | Sirop de maïs | 9,91E+00 | 1,62E+00 | 9,63% | 7,56E+00 | 4,43E+03 | 9,13E+00 | 2.2L+00 |
| Chu 2 | Sirop de maïs | 1,01E+02 | 2,55E+00 | 12,55% | 6,86E+00 | 6,20E+03 | 8,87E+00 | 2.1L+00 |
| Chu 3 | Sirop de maïs | 1,02E+03 | 4,80E+00 | 12,12% | 6,44E+00 | 1,45E+04 | 9,34E+00 | 2.3E+00 |
| | | | | | | | | 2.02100 |

Tableau 8-VII : Expériences de convection dans des fluides à viscosité variable

La Figure 8-32 montre que la relation :

$$\boldsymbol{\theta} = 0.4868 \ \boldsymbol{N}\boldsymbol{u}^{-1.77} \boldsymbol{R} \boldsymbol{a}^{0.44} \tag{3}$$

(trait continue) permet de bien décrire les expériences réalisées par ces 4 auteurs. Comme l'intervalle de température entre le bain et l'interface apparaît à la fois dans la température adimensionnée et dans les nombres de Rayleigh et de Nusselt, la température d'interface équivalente peut être obtenue par :

$$T_{\rm int} = T_{bain} - 1.80 \frac{q^{1.47} d^{0.37} \eta^{0.37}}{\lambda^{1.10} \Delta T_c^{0.83} \rho^{0.74} (\alpha \ g \ C_p)^{0.37}}$$
(4)


Figure 8-32 : Établissement de la corrélation

Le problème de la convection en régime stationnaire ou quasi-stationnaire dans un bain soumis à une puissance volumique et à une solidification dendritique au niveau de ses parois met en jeu 2+2n variables indépendantes, n étant le nombre de parois différentes pour lesquelles on dispose de modèles de flux thermique :

- La température du bain (à laquelle sont évaluées les propriétés physiques du fluide) ;
- Le flux de chaleur vers chacune des n faces ;
- La température d'interface entre zone stagnante et zone mélangée ;
- Les dimensions de la zone mélangée.

On dispose de 2+2n relations indépendantes :

- L'équation de conservation de l'énergie (si on fait l'hypothèse d'isotropie des flux, en présence de bullage par exemple, elle se réduit à spécifier que le flux de chaleur en régime stationnaire est le rapport de la puissance émise dans le bain et de la surface) ;
- Les n corrélations de convection naturelle applicables à la configuration du bain, reliant le nombre de Nusselt aux nombres de Rayleigh interne et de Prandtl ;
- La loi de Fourier dans les couches stagnantes des n faces, reliant l'épaisseur de celles-ci au flux les traversant en régime stationnaire ;
- La corrélation établie dans cette étude qui relie la température d'interface aux nombres de Nusselt et de Rayleigh.

Il est donc possible de résoudre itérativement ce système d'équations. Par contre, pour appliquer cette corrélation à l'interaction corium béton, il faut élargir sa plage de validité. En effet, les essais VB-U5 et VB-U6 correspondent à des valeurs de Nu.Ra^{-1/4} comprises entre 1,5 et 5,5 alors que la corrélation a été établie pour des valeurs inférieures à l'unité de ce nombre adimensionné. Des essais en fluides à viscosité variables sont donc nécessaires si on veut appliquer cette approche au cas réacteur.

8.4.1.6. Synthèse

Une approche de modélisation est en cours d'élaboration. Elle a été partiellement validée sur les essais VULCANO VB et donne une explication cohérente des anisotropies observées sur l'ablation du béton. Un modèle thermohydraulique couplé prenant en compte l'évolution des températures d'interface sur les différentes parois reste néanmoins à développer afin de pouvoir réaliser des prédictions quantitatives d'une ablation bidimensionnelles. L'effet de l'écoulement de gaz et de la présence d'une couche métallique doivent aussi être pris en compte dans ce futur modèle.

En parallèle, on a besoin d'essais à plus grande échelle, ainsi que d'essais analytiques (à basse température pour l'étude de la convection en fluide à viscosité variable, mais aussi en corium prototypique pour confirmer ou infirmer les hypothèses du modèle avec des « bétons » de compositions différentes des deux types déjà étudiés) pour poursuivre ce travail de modélisation et vérifier sa pertinence.

8.4.2. Les logiciels de simulation

Les logiciels développés pour les études relatives à l'ICB (Cole et al., 1984 ; Plys et al., 1992 ; Bradley et al., 1993 ; Foit, 1997 ; Farmer & Spencer, 1999 ; Nie, 2005 ; Cranga et al., 2005 ; Spindler et al., 2006c) reposent sur des hypothèses communes :

- le bain de corium est constitué de différentes couches (oxydes ou métalliques) homogènes en température et composition ;
- le bain de corium peut se trouver en configuration mélangée ou stratifiée ;
- la structure de l'interface est décrite par un modèle de résistances thermiques prenant en compte la formation éventuelle d'une croûte solide et/ou d'une zone de produits de décomposition du béton (*slag layer*). La vitesse d'ablation est évaluée à partir de la discontinuité du flux de chaleur au front d'ablation (relation de Stefan) en traitant l'ablation comme une décomposition thermique.

Ils se distinguent principalement par les modèles de comportement du corium qu'ils considèrent et les sous-modèles (ou corrélations) qu'ils utilisent (taux de vide, corrélation d'échange de chaleur, etc.) et en particulier par leurs hypothèses quant à la température d'interface aux frontières du bain de corium.

Le logiciel TOLBIAC-ICB (Spindler et al., 2006c), développé par le CEA, repose sur le modèle de ségrégation des phases qui suppose le bain liquide et la formation de croûtes de matériaux réfractaires à l'interface : la température d'interface est la température de liquidus (supérieure à 2200 K sur une grande partie de l'ICB). Elle est calculée à partir de la composition du bain grâce à un couplage avec le logiciel de calculs thermodynamiques GEMINI2. On a alors un bain diphasique (corium totalement liquide et gaz) entouré d'une croûte solide poreuse aux gaz et au béton fondu.



Permeable Crust

Figure 8-33 : représentation schématique de la modélisation dans TOLBIAC-ICB

Le logiciel CORCON (Cole et al., 1984) considère, en revanche, que le bain est un mélange de liquide et de débris solides en suspension et suppose l'existence d'une zone « pâteuse » si la température du bain est comprise entre les températures de liquidus et de solidus. Le modèle de « slag layer » est utilisé pour décrire l'interface. Dans cette approche, la température d'interface est la température de fusion du béton (proche de 1600 K pour un béton siliceux).

Le logiciel MEDICIS (Cranga et al., 2005), développé à l'IRSN, utilise une modélisation plus générale pour décrire le comportement des interfaces du bain : on suppose l'existence d'une zone pâteuse à l'interface entre le bain liquide et le béton, comprenant une zone convective et une zone conductive dont les extensions restent à préciser. Dans cette approche, la température d'interface utilisée pour les transferts convectifs du bain vers l'interface est alors la température seuil délimitant la partie convective du bain de la partie conductive dans la zone pâteuse (cf Figure 8-34). Aucun modèle ne permettant actuellement de déterminer cette température d'interface, appelée aussi température de solidification, de manière satisfaisante dans tous les cas, celle-ci est évaluée pour le moment par interpolation linéaire, à l'aide d'un paramètre utilisateur γ , entre la température du liquidus (γ =0) et la température du solidus (γ =1). Les choix extrêmes γ =0 et γ =1 correspondent respectivement à la modélisation de l'interface de TOLBIAC et à celle de CORCON. Le meilleur choix du paramètre γ déduit de la validation de MEDICIS en cours sur les expériences d'ICB est dans le domaine (0 ; 0,3), ce qui correspond à une température d'interface proche du liquidus. La ségrégation de phases du bain vers les croûtes est ignorée, car la croûte à l'interface corium/béton a une épaisseur faible dans la plupart des cas, mais les températures de liquidus et de solidus ainsi que la relation entre la fraction fondue du corium, sa composition et sa température, sont évaluées, préalablement au calcul d'ICB, à partir de calculs GEMINI2. Entre le béton et le bain (avec ou sans croûte), est également supposée l'existence d'un film de béton fondu (slag layer).



partie conductive de la zone pâteuse

Figure 8-34 : Modélisation de l'interface corium/béton dans MEDICIS

Les principales étapes d'un calcul d'ICB sont les suivantes :

- calcul des propriétés physiques du bain ;
- calcul (éventuel) de la fraction solide ;
- détermination de la température d'interface (Ces trois premières étapes sont liées à un calcul d'équilibre thermodynamique dans des codes tels que COSACO (Nie, 2005), MEDICIS (Cranga et all., 2005) ou TOLBIAC-ICB (Spindler et al., 2006c);
- calcul des coefficients d'échange de chaleur ;
- estimation des vitesses d'ablation ;
- bilan de masse prenant en compte les réactions chimiques et bilan d'énergie intégrant le rayonnement en surface permettant d'obtenir la composition et la température de chaque zone du bain ;
- calcul des épaisseurs de croûte et des ablations ;
- mise à jour de la forme de la cavité et des surfaces d'échange.

En raison des incertitudes concernant les modèles de transfert de chaleur et la nature des interfaces, la flexibilité de l'outil de calcul est indispensable pour effectuer des études de sensibilité et des évolutions aisées. Cette exigence est vérifiée en grande partie par TOLBIAC-ICB et MEDICIS, mais non par CORCON.

Les logiciels de simulation sont validés à partir des essais décrits au paragraphe précédent. Cette validation est rendue complexe dans le cas des essais globaux du fait des nombreux phénomènes observés dans ces essais et non systématiquement modélisés dans les logiciels (éjection de corium, dépôt de matière sur les parois des sections d'essais, etc.) et en raison des effets transitoires.

Les trois essais VULCANO d'interaction entre un corium oxyde et du béton ont été recalculés(Journeau et al., 2007b) à l'aide du logiciel TOLBIAC-ICB. En l'absence de modèle prédisant l'anisotropie de l'ablation, le rapport entre les flux latéraux et verticaux est entré par l'utilisateur. Une fois cette donnée fournie, le code peut recalculer la progression de l'ablation du béton.

Par exemple, la Figure 8-35 compare les vitesses d'ablation calculées pour l'essai VB-U5 (béton riche en silice) et les résultats expérimentaux obtenus à partir des thermocouples. L'accord entre les deux est satisfaisant.



Time (s)



L'évolution de la forme de la cavité est aussi bien calculée par ce modèle. La Figure 8-36 compare, pour l'essai VB-U6 avec un béton riche en calcaire, les formes calculées et mesurées. On observe encore un bon accord, étant donné que la principale source d'incertitude est due au fait que les thermocouples sont détruits à une température légèrement inférieure à la température de « fusion » du béton.



Figure 8-36: Progression de l'ablation du béton lors de l'essai VB-U6 Les points indiquent les positions des thermocouples Les traits pointillés délimitent la zone pour laquelle aucun thermocouple n'a dépassé 1200°C

8.4.3. bilan et perspectives

8.4.3.1. Besoins de connaissances et incertitudes

Les résultats des expériences récentes et les calculs réacteur réalisés avec les codes MEDICIS et TOLBIAC-ICB en particulier mettent en évidence les principales incertitudes suivantes (Tenaud et al., 2006) :

- la nature et les propriétés des interfaces du bain de corium : température de solidification et transfert de chaleur et de masse au travers des interfaces corium/béton ;
- la répartition 2D (en axial et en radial) des flux de chaleur en bain homogène ;
- le transfert de chaleur et de masse entre les couches de métal et d'oxydes en configuration stratifiée ;
- l'évolution de la configuration du bain (stratification).

Pour la structure des interfaces, l'analyse des expériences d'ICB en configuration monodimensionnelle disponibles dans le cas d'un bain homogène avec une interface horizontale montre que les résultats sont proches de ceux déduits du modèle de ségrégation de phase : bain liquide, température de solidification voisine de la température de liquidus, formation de croûtes réfractaires à l'interface corium/béton, mais avec une composition moins réfractaire que celle déduite des diagrammes de phase, coefficient d'échange de chaleur diphasique élevé. Des essais de solidification en l'absence de gaz montrent cependant une tendance à la disparition du phénomène d'accumulation de composés réfractaires à l'interface lorsque la concentration en silice devient importante.

Des incertitudes majeures demeurent sur les trois derniers points mentionnés ci-dessus, à savoir la distribution des flux de chaleur aux interfaces du bain, le transfert de chaleur entre les couches de métal et d'oxydes en configuration stratifiée, et l'évolution de la configuration du bain. En particulier l'amélioration des connaissances sur le transfert de chaleur entre les couches de métal et d'oxydes et sur le type de configurations du bain et leur évolution permettra de réduire à un niveau acceptable les incertitudes concernant les cinétiques d'ablation axiale et radiale en configuration de bain stratifiée, qui restent considérables à l'heure actuelle (Cranga et al., 2005).

8.4.3.2. Travaux futurs

La poursuite des programmes expérimentaux en cours (MCCI-OCDE, VULCANO ICB) ainsi que les travaux d'analyse associés (interprétation et exercices de comparaison avec des logiciels) permettront de progresser dans la compréhension des phénomènes physiques régissant la structure des interfaces et de compléter les connaissances sur la répartition 2D des flux de chaleur en configuration de bain homogène. Les différences existant entre les bétons riches en calcaire et en silice et pouvant éventuellement expliquer pourquoi l'interaction avec du corium donne une ablation isotrope dans le premier cas et anisotrope dans le second sont nombreuses :

- Débit de gaz différents ;
- Présence d'agrégats de silice ne fondant que 500 K après le mortier, alors que les agrégats de calcaire sont détruits vers 1000 K ;
- Changement de volume entre le béton froid et le béton fondu en présence de calcaireⁱ ;
- Températures de liquidus et de *fusion* du béton plus faible pour les bétons siliceux que calcaires ;
- Viscosité plus élevée en fonction de la proportion de silice dans le béton fondu.

Nous proposons de réaliser des essais à effets séparés en corium prototypique qui pourraient être réaliser dans la plate-forme VULCANO pour déterminer quel(s) effet(s) a(ont) une importance déterminante sur cette phénoménologie. L'utilisation de corium prototypique est nécessaire pour cette phase d'expérimentation à visée phénoménologique car il est impossible de réaliser une similitude tant que l'on n'a pas pu déterminé quels phénomènes étaient prédominants.

Une qualification sur un essai à grande échelle serait également nécessaire.

Les essais VULCANO-ICB oxyde-métal en configuration de bain stratifiée devraient, en outre, contribuer à réduire les incertitudes restantes en fournissant des résultats sur les transferts de chaleur entre l'oxyde et le métal et l'évolution des configurations de bain.

Par ailleurs, la définition d'un programme d'études complémentaires est en cours pour réduire les incertitudes sur les propriétés thermochimiques du corium (détermination de diagrammes de phases de certains mélanges d'oxydes et de métaux de composition choisie dans un domaine où les données thermochimiques sont insuffisantes ou incertaines). L'analyse de ces résultats expérimentaux permettra de compléter les bases de données thermochimiques (NUCLEA, de Bremaecker et al., 2001) utilisées par les logiciels de calcul thermodynamique (par exemple GEMINI2, Cheynet et al., 2002).

ⁱ Le carbonate de calcium (CaCO₃) et l'oxyde de calcium (CaO) ont des densités voisines mais des masses molaires différentes, ce qui implique une différente significative de volume molaire et donc que le béton calcaire fondu occupe un volume significativement plus faible que celui initialement occupé par le béton à froid.

Chapître 9 Refroidissement du corium – Concept COMET

L'arrêt de la progression du corium nécessite la présence d'une source froide à même de refroidir celui-ci ou, a minima, de permettre d'atteindre un état d'équilibre thermique, avec une vitesse d'ablation nulle. Une première approche consiste à noyer le corium avec de l'eau, mais l'efficacité du refroidissement par eau, limité par l'écoulement à contre courant de la vapeur d'eau, est assez faible. Un refroidissement par le bas permettrait une plus grande efficacité.

Le concept COMET (Almeyer & Tromm, 1994, 1999 ; Alsmeyer et al., 2000, 2000b, 2005, Tromm et al., 2001) est un récupérateur de corium développé par le Centre de Recherches de Karlsruhe (FZK) sur le principe d'une injection passive de fluide de refroidissement par le bas du bain. Ce concept a été mis au point et validé à l'aide d'essais à grande échelle en matériaux simulants à Karlsruhe, ainsi que par un essai en matériaux prototypique, mais sans simulation de la puissance résiduelle au Laboratoire National d'Argonne (Almeyer et al., 1998). L'essai VW-U1 (Journeau & Alsmeyer, 2006) a été réalisé dans l'installation VULCANO pour valider le récupérateur COMET PCA (*Porous Concrete Advanced*) avec du corium prototypique et simulation de la puissance résiduelle. Cet essai s'est déroulé dans le cadre du projet européen d'accès transnational à la plate-forme PLINIUS (Journeau, 2006b).

Dans un premier temps, nous allons présenter le concept de récupérateur COMET, puis nous décrirons la section d'essai pour l'installation VULCANO avant de présenter l'essai VW-U1 et d'en tirer les principaux enseignements.

9.1. LE CONCEPT DE RECUPERATEUR COMET

Le récupérateur COMET a été conçu afin de garantir une solidification rapide du corium à l'aide d'une circulation d'eau par le bas du bain. Plusieurs variantes ont été proposées successivement. Le principe de ces récupérateurs est le suivant : Après érosion d'une couche de béton sacrificiel, le bain est refroidi passivement par l'injection d'eau provenant d'un réservoir disposé à une hauteur garantissant une pression supérieure à la pression hydrostatique du corium. L'eau se volatilise, sous l'effet de la chaleur du bain et l'augmentation de volume qui s'en suit va fragmenter le bain et créer une structure poreuse favorable à l'évacuation de chaleur. Dans le concept PCA (*Porous Concrete Advanced*) décrit sur la Figure 9-1, l'eau est présente dans une couche de béton poreux et traverse le bain grâce à un réseau de canaux en béton poreux, débouchant dans le béton sacrificiel. La porosité du béton et la perte de charge des canaux est ajustée de façon à obtenir un débit d'eau satisfaisant dans le bain de corium.



Figure 9-1 : Récupérateur COMET PCA

Le refroidissement total du corium est prévu en moins d'une heure après le début du noyage et la chaleur résiduelle sera évacuée par ébullition de l'eau. Le refroidissement rapide et le noyage du bain de corium évite les relâchements de produits de fission et protège le radier et les structures de l'enceinte de confinement. Un refroidissement trop rapide pourrait néanmoins entraîner une pressurisation de l'enceinte à une vitesse supérieure aux capacités de condensation.

Deux implantations ont été envisagées pour ce type de récupérateur (Figure 9-2) :

 Soit le récupérateur est situé dans une salle adjacente au puits de cuve, ce qui a été envisagé comme option de repli pour le réacteur EPR. Dans ce cas un récupérateur COMET aurait remplacé l'aire d'étalement; • Soit le récupérateur est disposé dans le puits de cuve. Ceci pourrait, en principe, être mis en place dans des réacteurs en fonctionnement, bien que cela pose des problèmes de radioprotection pour la mise en place.





Figure 9-2 : Localisations du récupérateur COMET dans une pièce dédiée ou dans le puits de cuve.

Le délai entre l'arrivée du corium et le début du refroidissement est défini par l'épaisseur de béton sacrificiel, qui serait de l'ordre de 10 à 20 cm en réacteur. Il a été envisagé d'inclure des absorbants neutroniques (verre borosilicaté) dans ce béton sacrificiel qui se mélange avec le corium. Le concept COMET a été amplement validé en matériaux simulants (thermite d'alumine) lors d'essais à grande échelle (jusqu'à 1,3 t) au Centre de Recherches de Karlsruhe (Widmann et al., 2006). Un essai en transitoire (sans maintien de chauffage) au Laboratoire National d'Argonne (Farmer et al., 1998 ; Alsmeyer et al., 1998) et des essais en simulants à basse température à l'Ecole Polytechnique Royale de Stockholm (Paladino et al., 2001) ont complété cette validation expérimentale. L'essai VULCANO VW-U1 en matériau prototypique et avec maintien de chauffage a permis de conclure ces validations expérimentales.

9.2. *D*ISPOSITIF D'ESSAI

Le concept COMET PCA a été validé expérimentalement les 17 et 18 octobre 2005 sur l'installation VULCANO dans le cadre du projet d'accès transnational à la plate-forme PLINIUS (Journeau et al., 2003c, 2006b).

Une maille élémentaire du dispositif de refroidissement (Figure 9-3) a été installée dans un creuset cylindrique en zircone (60 cm de haut, 25 de diamètre) dans lequel on a versé environ 40 kg de corium fondu. Ce dispositif se compose, de bas en haut :

- D'une couche de béton de structure (étanche);
- De 30 mm de béton poreux connecté au réseau d'alimentation en eau (et donc rempli d'eau lors de l'essai);
- D'une couche de 20 mm de béton sacrificiel assurant l'étanchéité ;
- De deux tubes en béton poreux connectant la couche poreuse au milieu de la couche de béton sacrificiel.

Cet essai était à l'échelle 1 dans la direction verticale et représentait le comportement d'un cylindre de 25 cm au milieu d'un récupérateur de plusieurs mètres de diamètre. L'épaisseur du béton sacrificiel a néanmoins été réduite, pour des raisons pratiques, mais le bain versé comprend une fraction de béton simulant le béton sacrificiel supplémentaire. Il faut noter que le dispositif COMET est relativement fin (10 cm sans le béton sacrificiel) et donc que seulement 20-30 cm seraient nécessaire pour une application en réacteur.

Une section d'essai spécifique a été construite pour cet essai. Un inducteur multispire a été installé autour du creuset cylindrique. L'ensemble a été entouré par un cylindre en béton inséré dans une coque en résine fibrée. Cette section d'essai cylindrique est surmontée d'un cylindre métallique relié au tube d'évacuation des gaz (Figure 9-4). Ce tube mène à un condenseur de vapeur et à un circuit d'analyse du gaz par spectrométrie de masse.



Figure 9-3 : Dispositif d'essai COMET insérée dans la section d'essai VULCANO



Figure 9-4 : Schéma et vue de la section d'essai

Le dispositif d'essai est relié à un réservoir d'eau de 90 litres installé à plus de 2 m au-dessus du niveau du récupérateur COMET, afin d'avoir une surpression de 0,2 bar permettant l'écoulement passif de l'eau dans le corium après que le corium a ablaté le béton sacrificiel.

9.3. L'ESSAI VW-U1

Le corium a été fondu dans le four VULCANO à arc plasma (§ 3.1) et versé dans la section d'essai à une température initiale supérieure à 1700°C (Figure 9-5 gauche). La charge (45 $\%_{masse}$ UO₂, 19.3 % ZrO₂, 19.6 % SiO₂15.3 % FeO_x, 0.7 % CaO, 0.1 % Al₂O₃) est typique d'un mélange entre un corium et un béton ferro-siliceux, comme ce serait le cas après une rétention temporaire en puits de cuve. Sa température de liquidus est estimée à 1900°C (Calculs thermodynamiques GEMINI2).

Le corium a été chauffé par induction dans la section d'essai pendant les 22 minutes de l'essai. La puissance appliquée dans le volume du bain a varié entre 10 et 30 kW. Après le versement du corium, il a érodé le béton sacrificiel. Ceci a déclenché le noyage passif, dès que la couche

CHAPITRE 9

supérieure de béton sacrificiel de 1 cm a été ablatée. L'écoulement d'eau a commencé 57 secondes après l'arrivée du corium. Le processus suivant a été la formation d'une structure poreuse perméable de corium du fait de l'évaporation de l'eau injectée.



Figure 9-5 : Vues lors de l'essai gauche : versement du corium hors du four vers la section d'essai droite : bain de corium agité par l'écoulement de vapeur au-dessus du dispositif COMET



Figure 9-6 : Temps d'érosion (ou d'atteinte de la température maximale) pour les thermocouples implantés dans le béton sacrificiel.

La Figure 9-6 montre la progression de l'érosion du béton, telle qu'on la déduit des mesures des thermocouples implantés dans le béton sacrificiel. Les capteurs à 10 mm de profondeur détectent l'arrivée du corium au bout de 70 s, ce qui est consistant avec le temps de 57 s pour le début de l'écoulement d'eau. Les thermocouples installés à 2 et 10 mm de profondeurs ont été détruits, tandis que ceux à 20 mm de profondeur, soit 10 mm sous le niveau supérieur des tubes poreux, ont été très rapidement refroidis au-dessous de 100° C (Figure 9-7). Ces basses températures montrent la grande stabilité de la couche de béton poreux, qui reste refroidie en permanence par l'écoulement d'eau et constitue donc une barrière efficace.

Le débit d'eau (Figure 9-7) a atteint une valeur de 4,5 L/min (soit 75 g/s) après environ 3 minutes. Ce débit a été arrêté manuellement à plusieurs reprises pour éviter un débordement de la section d'essai.

La température dans la partie supérieure de la section d'essai et dans le tube d'évacuation des gaz est montée jusqu'à 500°C avec un pic vers 800-1200°C (Figure 9-8). Le refroidissement du corium par l'eau a ramené la température du gaz au-dessus de 200°C en fin d'essai.



Figure 9-7 : Températures à 20 mm de profondeur (interface bétons sacrificiels-poreux) et débit d'eau dans le dispositif COMET



Figure 9-8 : Températures du gaz mesurées dans le dôme de la section d'essai (noir), à l'entrée (rouge) et au milieu (bleu) du tube d'évacuation des gaz.

La composition des gaz incondensables a été analysée à l'aide d'un spectromètre de masse, après avoir condensé la vapeur d'eau (Figure 9-9). Un débit constant d'argon (120 NL/min) a été injecté dans la section d'essai afin de pouvoir estimer les débits des autres espèces. Durant la phase initiale d'interaction corium-béton, on a détecté jusqu'à 32% de dioxyde de carbone, provenant de la dissociation des carbonates du béton. Quand le noyage par l'eau s'est enclenché, on a observé un relâchement d'hydrogène, provenant de la réduction de la vapeur par le corium légèrement hypostœchiométrique. Le pic d'hydrogène était de 8 g/min. La diminution marquée des relâchements en CO_2 et H_2 après 4 et 7 minutes respectivement indiquent la fin de l'érosion du béton et le refroidissement du corium.



VW-U1 Mass Spectrometer

Figure 9-9 : Analyse des gaz après condensation de la vapeur d'eau

Le débit de gaz en sortie de la section d'essai a été mesuré par un tube de Pitot et un débimètre à turbine (qui n'a été inséré qu'après quelques instants pour éviter le dépôt de particules de corium ou la surchauffe lors du transitoire initial). Le débit total est toujours très supérieur à celui des incondensables (débit maximum de 4 et 75 L/s respectivement), et nous avons donc considéré que le gaz avait les propriétés de la vapeur d'eau pour estimer des débits massiques (Figure 9-10). Le débit massique de vapeur culmine à 30 g/s soit moins de moitié moins que le débit d'arrivée d'eau (75 g/s). Donc au moins la moitié de l'eau s'est recondensée ou est restée liquide durant la phase de refroidissement. Ceci a permis un refroidissement rapide et efficace du bain de corium par de l'eau circulant dans les porosités du corium. La masse totale de vapeur (14 kg) est légèrement inférieure aux 17 kg d'eau trouvés dans le condenseur après l'essai. Cet écart est attribué au mauvais fonctionnement momentané du tube de Pitot du fait des vibrations induites par le dispositif d'insertion de la turbine dans le tube et est donc dans les marges d'incertitudes de mesure.



Figure 9-10 : Débit de vapeur estimé à partir du tube de Pitot et de la turbine. La masse d'eau évaporée a été intégrée à partir de la mesure du tube de Pitot (rose) ou du choix du débitmètre le plus pertinent selon la phase de l'essai (bleu)

La puissance thermique extraite du bain de corium peut être estimée à partir du débit de vapeur et de la différence d'enthalpie de l'eau entre sa température d'entrée et la température de la vapeur (Figure 9-11). Elle atteint une valeur de 75 kW dans la phase de trempe initiale, soit beaucoup plus que les 10 à 20 kW injectés qui correspondent à des flux de chaleur prototypiques de l'ordre de 100 à 200 KW/m². La puissance maximale extraite correspond à des flux de l'ordre de 1,4 MW/m², valeur typique pour un flux critique en ébullition saturée.

Ensuite, la chaleur évacuée diminue au fur et à mesure que le bain se refroidit jusqu'à atteindre le niveau de la puissance injectée. La Figure 9-11 montre aussi l'évolution de la puissance injectée pendant les 21.3 minutes de l'essai.



Figure 9-11 : Chaleur injectée dans le bain de corium (orange) et extraite par évaporation de l'eau (bleu).

Ces résultats démontrent la capacité du concept de noyage par le bas d'arrêter l'ablation du béton, de refroidir et de solidifier un bain de corium en moins de 20 minutes.

Il convient de noter qu'en débit de l'injection d'eau par le bas du bain, on n'a pas observé d'événement énergétique, en accord avec les observations des précédents essais COMET. Ceci est interprété comme une conséquence du fait qu'avec ces débits modérés, il n'y a jamais de grande masse d'eau liquide pouvant interagir avec le corium.

Lors du démontage, on a observé que 16 kg de corium avaient été projetés sur les parois de la section d'essai. Ceci montre l'importance du phénomène d'entraînement du corium par la vapeur d'eau, qui doit contribuer à son refroidissement.

Le bain solidifié de corium présente plusieurs crevasses sur ses faces supérieures et inférieures. Néanmoins, son aspect n'est pas celui d'une mousse poreuse. On pense plutôt à un réseau de canaux discrets dans le corium. La Figure 9-12 présente par exemple une vue du corium. On remarque aussi que contrairement aux essais VP (§ 7.3) il n'y a pas eu d'attaque du creuset, ce qui confirme l'efficacité du refroidissement.



Figure 9-12 : Vue en coupe du bain solidifié de corium



е

Figure 9-13 : Le récupérateur COMET après l'essai a: Vue avant découpage b: Vue de dessus après qu'une moitié ait été ôtée c: Vue de dessous du béton poreux d: vue de dessus - zoom e: Vue en coupe

La Figure 9-13 montre des vues du dispositif COMET après l'essai. On note que l'ablation du béton sacrificiel a été fortement limitée. Elle est plus marquée au centre (2 cm), soit loin des tubes de refroidissement. Quelques millimètres de béton sacrificiel (dégradé) restaient au-dessus de chaque tube. Le béton poreux n'a pas été attaqué lors de l'essai.

9.4. SYNTHESE

Le concept de récupérateur COMET a été validé avec succès lors de l'essai VW-U1 avec matériaux prototypique et simulation de la puissance résiduelle. Après une brève phase d'interaction coriumbéton, le noyage par le bas a été déclenché passivement, et a permis un refroidissement efficace de la chaleur du bain. Une puissance maximale de 75 kW a été extraite, soit plus de 3 fois la puissance injectée, ce qui a permis une « trempe » du bain de corium. Ensuite, la puissance extraite compensait la puissance injectée.

Les températures mesurées à l'interface de la couche poreuse et les analyses lors du démontage ont montré que celle-ci n'a jamais été attaquée par le corium et restait en dessous de 100°C en présence du débit d'eau. Cet écoulement d'eau fait que la couche poreuse est une barrière efficace pour le corium.

En plus de cet aspect démonstratif, cet essai a fourni des données expérimentales pour la validation du code WABE 2D (Widman et al., 2006). Les premiers calculs (Journeau et al., 2007, Figure 9-14) montrent par exemple une porosité importante dans le bain qui n'est pas conforme aux observations lors du démontage. Des travaux sont en cours pour faire converger le calcul et l'expérience.



Figure 9-14: Calculs WABE 2D à t=200s. (Journeau et al., 2007) gauche : Porosité - droite : température (1500°C: solidus du corium)

Chapître 10 Conclusions

La recherche expérimentale en corium prototypique sur la plate-forme PLINIUS a permis de nombreuses avancées dans la compréhension des phénomènes suivants liés aux accidents graves de réacteurs nucléaires :

- Relâchement et transport d'aérosols au-dessus d'un bain de corium, mettant en particulier en évidence les relâchements importants d'uranium ;
- Etalement et solidification de coulées de corium et en particulier, mise en évidence du bon étalement des coulées de mélange corium-béton en dessous de la température de liquidus, du fait des propriétés rhéologiques dans l'intervalle de solidification ;
- Confirmation expérimentale de la macroségrégation lors de la solidification lente du corium et obtention de seuils quantitatifs de transition vers une solidification dendritique avec micro-ségrégation, ce qui entraîne une modification des conditions d'interfaces aux frontières du bain de corium ;
- Mise en évidence de l'anisotropie de l'ablation des bétons siliceux par du corium et premières analyses en vue d'expliquer ce phénomène qui n'avait pas été anticipé suite aux essais 1D;
- Premiers résultats expérimentaux sur l'ablation du béton par un corium contenant une phase métallique stratifiée, dans la situation prototypique où la grande majorité de la chaleur est fournie à la phase oxyde : on n'a pas observé de concentration de flux vers la phase métallique, prévue par certains modèles (Greene & Irvine, 1988), et on a noté une oxydation très importante de la phase métallique ;
- Validation expérimentale en matériaux prototypique et avec simulation de la puissance résiduelle du concept COMET de récupération du corium grâce à une injection d'eau par le dessous.

Elle a aussi fourni une base de données expérimentales pour la validation des codes de calcul et des modèles, en particulier pour le relâchement des aérosols, la thermodynamique du corium, l'étalement, l'interaction du corium et du béton ainsi que la refroidissabilité des bains de corium.

Une des particularités de ces thématiques est la variété des disciplines scientifiques et techniques mises en oeuvre et leur couplage : thermique, mécanique des fluides, physico-chimie, thermodynamique, science des matériaux, rhéologie, science des aérosols, puis pour les aspects technologiques : électromagnétisme, instrumentation...

Cette pluridisciplinarité fait de notre laboratoire un lieu privilégié pour la formation d'étudiants à et par la recherche : Les nombreux doctorants, diplômés de recherches technologiques, masters ou ingénieurs ayant travaillé autour de la plate-forme PLINIUS dont les travaux sont repris dans ce mémoire ont pu appliquer les connaissances théoriques qu'ils avaient apprises à nos problématiques, ce qui implique généralement une analyse physique préalable afin de déterminer les phénomènes pertinents dans ces conditions fort éloignées des conditions classiques par leur gamme de température et la taille pour lesquels la bibliographie est souvent maigre.

Bien que de nombreuses avancées aient eu lieu, il reste encore plusieurs problématiques non résolues ayant une grande importance pour l'évaluation de sûreté. Le groupe de prioritisation de la recherche sur les accidents graves du réseau d'excellence européen SARNET (Trambauer & Schwinges, 2007) a sélectionné six thématiques ayant la priorité la plus élevée :

- La refroidissabilité des débris en cuve et d'un bain de corium en fond de cuve ;
- L'interaction corium béton et la refroidissabilité du corium dans le puits de cuve ;
- La relocalisation du corium hors de la cuve et l'explosion de vapeur dans le puits de cuve ;
- Le mélange et la combustion de l'hydrogène dans l'enceinte ;
- L'effet des atmosphères oxydantes sur le terme source radiologique et en particulier le relâchement du ruthénium ;
- La chimie de l'iode dans le circuit primaire et dans l'enceinte.

La plate-forme PLINIUS va contribuer à la résolution de ces questions et en particulier des trois premières (Poursuite du programme de recherche sur l'interaction corium-béton ; démarrage des essais d'interaction corium-eau dans l'installation KROTOS et possibilité de programmes expérimentaux sur les lits de débris et en particulier leur refusion par un bain métallique).

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° génération (Lake, 2002) visent, entre autres, à améliorer notablement la sûreté, il est néanmoins impossible 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). Pour ce qui est des réacteurs à caloporteur sodium (Dufour et al., 2006), les accidents graves ont été fortement étudiés dans le cadre des projets Superphénix et EFR (Le Rigoleur et al., 1982 ; Lefèvre et al., 1996). Certaines dispositions permettant de réduire les conséquences d'un éventuel accident graves doivent encore être améliorées, comme par exemple, les dispositifs de réduction du risque de criticité, soit par évacuation du cœur fondu vers une géométrie non critique (Tobita et al., 2006 ; Konishi et al., 2006) soit par utilisation de matériaux sacrificiels absorbant les neutrons (Dalle Donne et al., 1979; Rao et al., 1994). La plate-forme PLINIUS pourra, moyennant des modifications plus ou moins importantes, contribuer aussi à l'amélioration de la sûreté de ces types de réacteurs et à l'amélioration des phénomènes couplés se produisant dans ces situations accidentelles à hautes températures.

Deux sujets de thèses ont été proposés pour continuer ces recherches : Le premier sujet de thèse en cours de montage a trait à l'étude de matériaux sacrificiels pour les récupérateurs de corium dans les réacteurs à neutrons rapides. Ces matériaux devront avoir d'une part des propriétés d'absorption neutronique et d'autre part leur interaction avec le corium devra être suffisament rapide pour garantir un bon mélange et exclure en pratique tout risque de criticité. La seconde thèse aurait trait à l'amélioration des mesures des hautes températures par la détermination de points fixes, en étendant aux conditions de plate-formes d'essais, les travaux de métrologie de Yamada et al. (1999) relatifs à la mise en place de points fixes de température à l'aide d'eutectiques métal-carbone fondus dans un creuset en graphite, afin de minimiser l'effet des interactions entre le creuset et le matériau étalon. On pourrait en particulier chercher des points fixes thermodynamiques dans des systèmes importants pour le corium tels que UO_2 -ZrO₂.

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), mais aussi avec la prise en compte des résultats de la recherche dans l'évaluation des accidents graves pour les réacteurs du parc actuel.

Les installations expérimentales en corium prototypique sont un atout dans cette recherche. Elles mettent en œuvre un savoir-faire technologique complexe et long à mettre au point (les différentes installations de par le monde ont nécessité en moyenne 5 ans de mise au point) et ont permis d'obtenir des résultats importants pour la sûreté des réacteurs tout en permettant des avancées scientifiques dans l'étude des phénomènes couplés à haute température. C'est pourquoi nous pensons qu'elles resteront indispensables tant pour le parc actuel de réacteurs que pour la nouvelle génération car les avancées de la modélisation numérique ne permettent pas de se passer d'expérimentations en matériaux prototypique pour appréhender de nouveaux phénomènes et pour qualifier les modèles de calcul.

REFERENCES

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.

AFNOR, 2001, Norme Expérimentale Eurocode 2: calcul des structures en béton et Document d'application Nationale. Règles générales : calcul du comportement au feu, Norme XP ENV 1992-1-2.

Ahrens, T. J., 1995, A Handbook of Physical Constants (Vol.2): Mineral Physics and Crystallography, Amer. Geophys. Union, Washington, DC.

AIEA (Agence Internationale de l'Energie Atomique), 2001, INES : Echelle Internationale des événements Nucléaires, Manuel de l'Utilisateur, AIEA-INES-2001, AIEA, Vienne.

AIEA (Agence Internationale de l'Energie Atomique), 2006, Nuclear Power Reactors in the World, April 2006 Edition, IAEA-RDS 2/26, AIEA, Vienne.

Akers, D.W., McCardell, R., 1989, Core Materials inventory and behaviour, Nucl. Technol., 87, 214-223.

Akers, D.W., Schuetz, B.K., 1993, Examination of fuel debris adjacent to the lower head of the TMI-2 Reactor Vessel, Rapport VIP de l'OCDE, pp. 257-268.

Alarcon-Ruiz L. et al., 2005, The Use of Thermal Analysis in assessing the Effect of Temperature on a Cement Paste, *Cement and Concrete Research*, 35, 609-613.

Albrecht, H., 1987, Results of the SASCHA program on fission product release under core melting conditions, *Radiochimica Acta*, 41, 133-140.

Aleksandrov, V.I., Osiko, V.V., Prokhorov, A.M., Tabtarintsev, V.M. 1978, Obtaining high-temperature materials by a method of direct high frequency melting in a cold container (en Russe), *Uspekhi khimii*, 47, 385.

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.

Allelein, H.-J., Neu, K., Van Dorsselaere, J.P., 2005, European validation of the Integral Code ASTEC (EVITA) First Experience in validation and plant sequence calculations, *Nucl. Eng. Des.*, 235, 285-308.

Allen, M.D., Pilch, M., Nichols, R.T., Griffiths, R.O., 1991, Experiments to investigate the effect of flight path on direct containment heating (DCH), Rapport NUREG/CR-5728, US Nuclear Regulatory Commission.

Alsmeyer H., 1987, BETA experiment in verification to the WECHSL code: experimental result on the melt concrete interaction, *Nucl. Eng. Des.*, 103, 115-125.

Alsmeyer, H., Tromm, W., 1994, Experiments for a Core Catcher Concept Based on fragmentation, *Proc. ARS'94 - Int. Topical Mtg. Advances Reactor Safety*, Pittsburg, PA, USA.

Alsmeyer, H., Adelhelm, C., Benz, H., Cron, T., Pasler, H., Schoeck, W., Schumacher, G., Tromm, W., Spencer, B.W., Farmer, M.T., 1998, Das COMET-Kernfaengerkonzept: Experimente mit Nachbeheizung und mit Uranschmelzen, *Jahrestagung Kerntechnik*, 157-160.

Alsmeyer, H., Tromm, W., 1999, The COMET Concept for Cooling Core Melts: Evaluation of the Experimental Studies and Use in the EPR, *Wiss. Ber. FZKA* 6186.

Alsmeyer, H., Adelhelm, C., Benz, H., Cron, T., Dillmann, G., Tromm, W., Schmidt-Stiefel, S., Schneider, H., Schumacher, G., Wenz, T., Ferderer, F., 2000, Corium cooling by bottom flooding: Results of the COMET investigations, *Wiss. Ber. FZKA* 6475, 345-355, 356-364.

Alsmeyer, H., Albrecht, G., Fieg, G., Stegmaier, U., Tromm, W., Werle, H., 2000b, Controlling and cooling core melts outside the pressure vessel, Nucl. Eng. Des., 202, 269-278.

Alsmeyer, H., Alberecht, 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.

Ancey C., Jorrot H., 2001, Yield stress for particle suspension within clay dispersion, *J. Rheology*, 45, 297-319.

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.

Asfia, F.J., Dhir, V.K., 1994, Natural cconvection heat transfer in volumetrically heated spherical pools, OECD/NEA/CSNI Wkshp Large Molten Pool Heat Transfer, Grenoble.

Asmolov, V.G., Abalin, S.S., Degal'tsev, Yu.G., Shakh, O.Ya., D'yakov, E.K., Strizhov, V.F., 1998, *Atom. Energ.*, 84, 241-255.

Asmolov, V.G., Pnomarev-Stepnoy, N.N, Strizhov, V., Sehgal, B.R., 2001, Challenges left in the area of in-vessel retention, *Nucl. Eng. Des.*, 209, 87-96.

Asmolov, V.G., Zagryazkin, V.N., Isaev, I.F., Semenov, I.M., Vishnevskii, V.Yu., D'yakov, E.K., Khabenskii, V.B., Beshta, S.V., Granovskii, V.S., Gusarov, V.V., Udalov, Yu.P., 2002, Choice of buffer material for the containment trap for VVER-1000 core melt, *Atom. Energ.*, 92, 5-14.

Asmolov, V., Strizhov, V., 2004, Overview of the Progress in OECD MASCA Project, *Proc. CSARP Meeting*, Washington, DC.

Auvinen, A., Davidovich, N., Ducros, G., Dutheillet, Y., Kissane, M.P., Matus, L., Rizoiu, A., 2005, On-going investigation of Ruthenium Release and Transport, 1st European Review Mtg on Severe Accident Research, Aix en Provence, France.

Auvinen, A., Brillant, G., Davidovich, N., Dickson, R., Ducros, G., Dutheillet, Y., Giordano, P., Kunstar, M., Kärkelä, T., Mladin, M., Pontillon, Y., Séropian, C., Vér, N., 2007, Progress on Ruthenium Release and Transport under Air Ingress Conditions, 2nd European Review Mtg on Severe Accident Research, Karlsruhe, Germany.

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.

Baïchi, M., 2001, Contribution à l'étude du corium d'un réacteur nucléaire accidenté: aspects puissance résiduelle et thermodynamique des systèmes $U-UO_2$ et UO_2 - ZrO_2 , Thèse de Doctorat de l'Université Joseph Fourier, Grenoble.

Ballhaus, C., 1998, Origin of podiform chromite deposits by magma mingling, *Earth Planet. Sci. Lett.* 156, 185-193.

Barrand, R.D., Dickson, R.S., Liu, Z., Semeniuk, D.D., 1999, Release of fission products from CANDU fuel in air, steam and argon atmospheres at 1500-1900°C: the HCE3 experiment, *6th International Conference on CANDU Fuel*, Niagara Falls, 271-280.

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.

Bechta, S.V., Khabenskii, V.B., Krushinov, E.V., Vitol, S.A., Pautova, T. Yu., Kalyago, E.K., Petrov, Yu. B., Lopukh, D.B., Pechenkov, A.Yu., Lyubomirov, A.M., Kulagin, I.V., 2000, Interaction between a UO_{2+x} -Zr O_2 -Fe(Cr,Ni) O_v melt and a concrete based on Zr O_2 , *Refr. Indus. Ceram.*, 41, 19-23.

Bechta, S., Benson, C.G., Berlepsch, T.V., Funke, F., Kissane, M. P., Koch, M.K., Kronenberg, J., Kujal, B., Manenc, H., Newland, M.S., 2001, Late Phase Source Term Phenomena, *Proc. FISA 2001, EU Research in reactor Safety*, Luxembourg.

Bechta, S.V., Khabensky, V.B., Vitol, S.A., Krushinov, E.V., Lopukh, D.B., Petrov, Yu.B., Petchenkov, A.Yu., Kulagin, I.V., Granovsky, V.S., Kovtunova, S.V., Martinov, V.V., Gusarov, V.V., 2001b, Experimental studies of oxidic molten corium-vessel steel interaction, *Nucl. Eng. Des*/., 210, 193-224.

Bechta, S.V., Khabensky, V.B., Granovsky, V.S., Krushinov, E.V., Vitol, S.A., Gusarov, V.V., Almiashev, V.I., Lopukh, D.B., Tromm, W., Bottomley, D., Fischer, M., Piluso, P., Miassoedov, A., Altstadt, E., Willschütz, H.G., Fichot, F., 2005, Experimental Study of Interactions between suboxidized Corium and Reactor Vessel Steel, *Proc. Int. Congr. Advances nucl. Power Plants, ICAPP'05*, Reno, Nevada.

Bechta, S.V., Khabensky, V.B., Vitol, S.A., Krushinov, E.V., Granovsky, V.S., Lopukh, D.B., Gusarov, V.V., Martinov, A.P., Martinov, V.V., Fieg, G., Tromm, W., Bottomley, D., Tuomisto, H., 2006, Corrosion of vessel steel during its interaction with molten corium, Part 1: Experimental, *Nucl. Eng. Des.*, 236, 1810-1829.

Berthoud, G., Newman, W., 1984, A description of a fuel-coolant thermal interaction model with application in the interpretation of experimental results, *Nucl. Eng. Des.*, 82: 381-391.

Berthoud, G., 2000, Vapor explosions, Ann. Rev. Fluid Mech., 32,573-611.

Binder, J.L., Spencer, B.W., 1996, Investigations into the physical phenomena and mechanisms that effect direct containment heating loads, *Nucl. Eng. Des.*, 164, 175-199.

Birchley, J., Haste, T., Bruchertseifer, H., Cripps, R., Güntay, S., Jäckel, B., 2005, Phébus-FP: Results and significance for plant safety in Switzerland, *Nucl. Eng. Des.*, 235, 1607-1633.

Bird, M.J., Millington, R.A., 1979, Fuel Coolant Interaction Studies with water and Thermitegenerated molten uranium dioxide, 4th OECD-CSNI Specialists' Meeting on Fuel Coolant Interaction in Nuclear Reactor Safety, Bournemouth, UK (2-5/4/1979).

Bittermann, D., Krugman, U., Azarian, G., 2001, EPR accident scenarios and provisions, *Nucl. Eng. Des.*, 207, 49-57.

Blanchat , T.K., Allen, M.D., 1996, Experiments to Investigate DCH Phenomena with Large-scale Models of the Zion and Surry Nuclear Power Plants, *Nucl. Eng. Des.*, 164, 147-175.

Board, S.J., Hall, R.W., Hall, R.S., 1975, Detonation of a fuel coolant explosion, *Nature*, 254, 319-321.

Bockris, J.O'M., Mackensie, J.D., Kitchener, J.A., 1955, Viscous flow in silica and binary liquid silicates, *Trans. Farad. Soc.*, 51, 1734-1748.

Booker, J.R., 1976 Thermal convection with strongly temperature dependant viscosity, J. Fluid Mech., 76, 741-754.

Borovoi, A.A., Sich, A.R., 1995, The Chornobyl accident revisited, Part II: State of the Nuclear Fuel located within the Chornobyl Sarcophagus, *Nucl. Safety*, 36, 1-32.

Boulaud, D., Madelaine, G., Vendel, J., 1980, Study of Multistage Cascade Impactors, *Proc. CSNI Spec. Mtg Nuclear Aerosols in Nuclear Safety*, Gattlingburg, Tennessee.

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.

Bradley D.R., 1988, Modelling of heat transfer between core debris and concrete, ANS Proceedings of the 1988 Nat. Heat Tansfer Conf.

Bradley D.R., Gardner D.R., Brockmann J.E., Griffith R.O., 1993, *CORCON-MOD3: an integrated computer model for analysis of molten core concrete interactions*, NUREG Report CR-5843, US Nuclear regulatory Commission.

Brady, J.F., 1993, The rheological behavior of concentrated colloidal dispersions, J. Chem. Phys. 99, 567-581.

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.

Brunet-Thibault, E, 2006, *Etude du renoyage par le haut en cas d'accident grave et en particulier oxydation des mélanges uranium, zirconium, oxygène*, Thèse de doctorat, Inst. Nat. Polytechnique Grenoble.

Buxton, L.D., Benedick, W.B., 1979, *Steam Explosion Efficiency Studies*, Rapport Laboratoire National de Sandia SAND 79-1399 (NUREG/CR-0947).

Buxton, L.D., Benedick, W.B., 1980, Steam Explosion Efficiency Studies: Part II Corium Experiments, Rapport Laboratoire National de Sandia SAND 80-1324.

Carboneau, M.L., 1991, Traits saillants de l'expérience LP-FP-2 dans l'installation LOFT de l'OCDE, du point de vue notamment de la production d'hydrogène, de la chimie des produits de fission et des fractions de produits de fission rejetés lors d'un transitoire, *Compte-rendu de la journée d'information « Projet LOFT de l'OCDE, Réalisations et résultats importants »*, Madrid, OCDE, p.262-264.

Carenini, L., 2006, Etude des transferts entre un bain de corium et un puits de cuve de réacteur, Rapprt de stage de Master II, Ecole Nationale Supérieure des Techniques Avancées et Université Pierre et Marie Curie (Paris VI), Paris.

Carenini, L., Haquet, J.F., Journeau, C., 2007, Crust Formation and Dissolution during Corium Concrete Interaction, *Int Conf. Advances nucl. Power Plants ICAPP07*, Nice.

Caroli, B., Caroli, C., Roulet, B., 1991, Instabilities of planar solidification fronts. *Solids far from equilibrium*, ed. par C. Godrèche, Cambridge University Press, Cambridge, 155 - 296.

Carron, J.P., 1969. Vue d'ensemble sur la rhéologie des magmas silicatés naturels. *Bull. Soc. Minéral. Cristallo.* 92, 435-446.

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.

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.

Cheynet B., Chevalier P.Y., Fischer E., 2002, Thermo suite, Calphad, 26, n°2, pp. 167-174.

Chong, J.S., Christiansen, EB., Baer, A.D., 1971. Rheology of concentrated suspensions. J. Appl. Polymer Sci. 15, 2007-2021.

Christensen, J. A., 1963, Thermal Expansion and change in Volume of Uranium Dioxide on Melting, J. Amer. Ceram. Soc. 46, 607-608.

Christensen, U., Giannandrea, E., 1993, Variable viscosity convection experiments with a stress free upper boundary and implications for the heat transport in the Earth's mantle, *Phys. Earth Planet*. *Inter.*, 78, 139-152.

Chu, T.Y., Brockmann, J.E., Gronager, J.E., 1983, Large-scale Melt Interaction Tests, Rapport Sandia National Laboratory, SAND-83-1868C.

Chu, T.Y., Hickox, C.E., 1990, Thermal convection with large viscosity variation in an enclosure with localized heating, *J. Heat transfer*, 12, 388-395.

Chu, C.C., Sienicki, J.J., Spencer, B.W., Frid, W., Löwenhielm, G., 1995, Ex-vessel melt-coolant interactions in deep water pool: studies and accident management for Swedish BWRs, *Nucl. Eng. Des.*, 155, 159-213.

Chu, C. C., Sienecki, J.J, Baker, Jr., L., 1996, Uncertainty analysis for thermophysical properties used in in-vessel retention analyses, in: *In-Vessel Coolability and retention of Core Melts*, US Dept. of Energy report DOE/ID-10460, vol. 1.

Chu, T.Y., Pilch, M.M., Bentz, J.H., Ludwigsen, J.S., Lu, W.Y., Humphries, L.L., 1999, Lower Head Failure experiments and analyses, Rapport Sandia Nat. Lab. NUREG/CR-5582, SAND98-2047.

Cizelj, L., Končar, B., Leskovar, M., 2006, Vulnerability of a partially flooded PWR reactor cavity to a steam explosion, *Nucl. Eng. Des.*, 236, 1617-1627.

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.

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., Seiler, J.-M., Szabo, I., Latché J.-C., Spindler B. and Humbert J.-M., 1997. La récupération du corium hors cuve. *Rev. Gén. Nucl.*, 1, 38-43.

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.

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.

Cohen, I., Schaner, B.E., 1963, A metallographic and X-ray study of the UO₂-ZrO₂ system, *J. Nucl. Mater.* 9, 18-53.

Cole, R.K. Jr., Kelly, D.P., Ellis, M.A., 1984 CORCON-MOD2: a computer program for analysis of molten-core concrete interactions, Rapport SAND-84-1246-R3, Laboratoire National de Sandia.

Copus, E.R., Blose, R.E., Brockmann, J.E., Gomez, R.D. Lucero, D.A., 1989, Core-Concrete Interactions using Molten Steel with Zirconium on a Basaltic Basemat: The SURC-4 Experiment. Rapport NUREG/CR-4994, SAND87-2008, Sandia National Laboratories.

Copus, E.R., Blose, R.E., Brockmann, J.E., Simpson R.B., Lucero, D.A., 1990, Core-Concrete Interactions using Molten UO_2 with Zirconium on a Basaltic Basemat: The SURC-2 Experiment, Rapport NUREG/CR-5564, SAND90-1022, Sandia Nat. Lab.

Copus, E.R., 1992, Sustained Uranium dioxide Concrete interaction tests: The SURC test series, 2nd OECD (NEA) Spec. Mtg. on Molten Core Debris -Concrete Interactions, Karlsruhe, Germany.

Copus, E. R., Blose, R.E., Brockmann, J. E., Simpson, R. B., Lucero, D. A., 1992, Core-Concrete Interactions Using Molten Urania With Zirconium on a Limestone Concrete Basemat, The SURC-1 Experiment, Rapport NUREG/CR-5443, Sandia National Lab.

Corradini, M.L., 1991, Vapor Explosions: A review of Experiments for Accident Analysis, Nucl. Safety, 32, 337-361.

Cox, D.S., Hunt, C.E.L., Liu, Z. Keller, N.A., Barrand, R.D., O'Connor, R.F., Iglesias, F.C., 1991, Fission product releases from UO2 in air and inert conditions at 1700-2350 K: analysis of the MCE1 experiment, *Int. Topical Meeting Safety of thermal reactors*, Portland.

Cranga M., Fabianelli R., Jacq F., Barrachin M., Duval F., "The MEDICIS code, a versatile tool for MCCI modelling", ICAPP'5, 2005.

Cranga, M., 2004, Communication personelle.

Crawley, A. F., 1974, Densities of liquid Metals and Alloys, Int. Metal. Rev., 19, 32-48.

Dalle Donne, M., Dorner, S., Fieg, G., Schumacher, G., Werle, H., 1979, Development work for Fast Reactor Core-catchers on the basis of Sodium Borates, *Int. Meeting Fast Reactor Safety Technology*, Seattle, WA, USA.

Davaille, A., Jaupart, C., 1993, Transient high-Rayleigh-number thermal convection with large viscosity variations, *J. Fluid. Mech.*, 253, 141-166.

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., Duvigneaud, P. H., Mwamba, K., Bouchama, H., Ronneau, C., 2001, European Nuclear Thermodynamic Database validated and Applicable in Severe Accident Codes (ENTHALPY), Symposium FISA 2001, EU Research in Reactor Safety, Luxembourg.

De Cheveigné, S., Guthmann, C., Kurowski, P., Vicente, E. Biloni, H., 1988, Directional solidification of metallic alloys: the nature of the bifurcation from planar to cellular interface, *J. Cryst. Growth*, 92, 616 - 628.

De Palma, G., 1998, Etude numérique et minimisation du temps de réponse de thermomètres intrusifs en corium, Rapport de Stage de Master, Ecole Polytechnique de Milan et Ecole Centrale des Arts et Manufactures.

Deckwer, W.-D., 1992, Bubble Column Reactors, J. Wiley & Sons, Chichester.

Denham, M.K., Judd, A.M. 1994, Experimental studies of interactions between molten fuel and sodium, *Proc. Int. Topical Mtg. on Sodium Cooled Fast Reactor Safety*, Obnisnk, Russia, 2, 190.

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.

Doubleva, G., Alsmeyer, H., Cron, T., Fluhrer, B., Foit, J., Messemer, G., Miassoedov, A., Schmidt-Stiefel, S., Wenz, T., Ivanov, I., Cranga, M., 2006, The COMET-L1 experiment on long-term MCCI and late melt surface flooding, *Wiss. Ber. FZKA*, 7213.

Douglas, J.F., Garboczi, E.J., 1995, Intrinsic viscosity and the polarizability of particles having a wide range of shapes, in: Prigorine, I, Rice, S.A., eds., *Advances in Chemical Physics*, vol. XCI.

Dubourg, R., Taylor, P., 2001, A qualitative comparison of barium behaviour in PHEBUS FPT0 test and analytical tests, *J. Nucl. Mater.*, 294, 32-38.

Dubourg, R., Faure-Geors, H., Nicaise, G., Barrachin, M., 2005, Fission product release in the first two PHEBUS tests FPT0 and FPT1, *Nucl. Eng. Des.*, 235, 2183-2208.

Ducros, G., Malgouyres, P.P., Kissane, M., Boulaud, D., Durin, M., 2001, Fission product releases under severe accidental conditions: general presentation of the program and synthesis of VERCORS 1-6 results, *Nucl. Eng. Des*, 208, 191-203.

Dufour, P., Anzieu, P., Lecarpentier, D., Sepantié, J.P., 2006, R&D trends for the future Sodium Fast Reactors in France, *Int. Congr. Adv. Nuclear Power Plants, ICAPP 2006*, Reno, NV.

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.

Eddi, M., Bandini, G., 2002, Preliminary Analysis on corium spreading in core-catcher with THEMA code, Rapport SAM-ECOSTAR-P07-17/01.

Einstein, A., 1911. Investigations on the Theory of the Brownian Movement, Ann. Phys. 34, 591-592.

Endell, K., Hellbrügge, J., 1942, Über den Einflu^D des Ionenradius und der Wertigkeit der Kationen auf die elektrische Leitfähigkeit von Silikateschmelzen, *Naturwiss*. 30, 421-422.

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.

Erlin B. et al., 1972, Evaluating Fire Damage to Concrete Structures, *Concrete Construction*, 154-159.

Esmaili, H., Khatib-Rahbar, M., 2004, Analysis of In-Vessel Retention and Likelihood of Lower Head Failure, *Proc. ICAPP'04 Int. Conf. Advances Nucl. Power Plants*, Pittsburgh, Pensylvanie.

Espinosa, R., Kothe, E.; Palfner, F., 2000, A model for the density of liquid UO_2 , *Kerntechnik* 65, 19-22.

Estève, B., 2005, EPR projects on track, Proc. 13th Int. Cong. Advances nucl. Power Plants, Beijing, Chine.

Farmer, M.T., Spencer, B.W., Kilsdonk, D.J., Aeschlimann, R.W., 1998, Quick Look Data Report for COMET Test U2, Rapport Argonne National Laboratory ANL-RE/98-1.

Farmer, M. T., Spencer, B. W., Kilsdonk, D. J., Aeschlimann, R. W., 1999, Status of large scale MACE Core Coolability experiments, *OECD Workshop on Ex-Vessel Debris Coolability*, Karlsruhe, Germany.

Farmer M., Spencer B.W., 1999, Status of the CORQUENCH model for calculation of ex-vessel corium coolability by an overlying water layer, *Proc. OECD Workshop ex-vessel debris coolability*, Karlsruhe, Allemagne.

Farmer, M. T., Spencer, B. W., Aeschlimann, R. W., 2000, Liquidus/solidus and Zr solubility measurements for PWR and BWR core melt compositions. *Wiss. Ber. FZKA*, 6475, 380 - 393.

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).

Farmer, M.T., Lomperski, S. W., Basu, S., 2005, The results of the CCI-2 reactor material experiment investigating 2-D core-concrete interaction and debris coolability, *Proc.* 11th *International topical meeting on nuclear reactor thermal hydraulics (NURETH 11)* Avignon, France.

Farmer, M.T., Lomperski, S.W., Basu, S., 2006, The Results of the CCI-3 Reactor Material Experiment Investigating 2-D Core-Concrete Interaction and Debris Coolability with a Siliceous Concrete Crucible, *Proc. Int. Cong. Advances nuclear Power Plants (ICAPP'06)*, Reno, NV.

Farmer, M.T., Lomperski, S.W., 2007, Status and Future Direction of the MCCI Program, 2nd *European Review Mtg Severe Accident Research*, Karlsruhe, Allemagne.

Ferrier, M., Bonnet, J.-P., Claus, J., Chaput, C., Ducros, G., Piluso, P., 2006, Severe Accidents Experiments: Development and Qualification of Advanced High Refractory Materials, *Proc IYNC 2006, Int. Youth Nucl. Congr.*, Stockholm, Suède.

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.K., Chasanov, M.G., Leibowitz, L., 1981, Thermophysical properties of uranium dioxide, *J. Nucl Mater.* 102, 17-25.

Fink, J. K., Pietri, M. C., 1997, *Thermophysical properties of uranium dioxide*, Argonne National Lab. Report ANL/RE-97/2.

Fink, J.K., Thompson, D.H., 1997, Compilation, Analysis and Interpretation of ACE Phase C and MACE Experimental Data: Volume II Aerosol Results, Rapport ACEX-TR-C14, Laboratoire National d'Argonne, Illinois, USA.

Firmhaber, M., Yegorova, S., Brockmeier, U., Hagen, S., Hofmann, P., Trambauer, K., 1996, OECD NEA/CSNI International Standard Problem 36: CORA-W2 Experiment on Severe Fuel Damage for a Russian type PWR, Rapport OECD/GR 96(19), OCDE.

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.

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.

Flemmings, M. C., 1974, Solidification processing, New York : McGraw-Hill, 1974.

Flemmings, M.C., 1991, Behavior of metal alloys in the semisolid state, *Metall. Trans.* 22B, 269-293.

Foit, J.J., 1997, Modelling oxidic molten core-concrete interaction in WECHSL, *Nucl. Eng. Des.*, 170, 73-79.

Foit, J.J., 2002, Spreading on ceramic and concrete substrate in KATS experiments, *Proc. Ann. 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.

Fowler, A. C., 1985, Fast Thermoviscous convection, Studies Appl. Math. 72, 189-219.

Frolov, K., 2004, Diffusion chimique à l'état liquide dans des bains silicates. Application aux accidents graves de réacteurs nucléaires, Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier (Grenoble I).

Frolov, K., Journeau, C., Piluso, P., Duclot, M., 2005, Electrochemical determination of oxidic melt diffusion coefficients, *Int. J. Thermophys.* 26(4) 1181-1192

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.

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, France (1992).

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, Brésil.

Georgali, B., Tsakiridis, P. E., 2005, Microstructure of Fire-Damaged Concrete. A Case Study, *Cement and Concrete Composites*, 27, 255-259.

Girault, N., Dickinson, S., Funke, F., Auvinen, A., Herranz, L., Krausmann, E., 2006, Iodine behavior under LWR severe accident conditions: Lessons learnt from analyses of the first two Phebus FP tests, *Nucl. Eng. Des.*, 236, 1293-1308.

Glorieux B., Millot, F., Rifflet, J.C., Coutures, J.P., 1999, Density of superheated and undercooled liquid alumina by a contactless method, *Int J Thermophys.* 20, 1085-1094.

Godin-Jacqmin, L., Journeau, C., Piluso, P., 2006, Analysis of the COLIMA CA-U3 test using the ELSA module of ASTEC, *Int. Conf. Nuclear Energy New Europe*, Portorož, Slovénie.

Goldstein, M.E., 1976, Aeroacoustics, Mc Graw Hill, New York.

Goryachev, A., Kuzmin, I., Leshchenko, A., Serebryakov, V., 2006, Techniques and First Results of Fission products Release Study in Quench Tests with irradiated VVER Rod Simulators, *Proc.* 12th Int. QUENCH Wkshp, FZK, Karlsruhe, Allemagne.

Greene, G.A., Irvine, T.F., 1988, Heat transfer between stratified immiscible liquid layers driven by gas bubbling across the interface, ANS Proc. Nat. Heat Transfer Conf.

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.

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.

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.

Gukov, M. Yu., Deniskin, V.P., Ignatjev, D.N., Konstantinov, V.S., Nalivaev, V.I., Fedik, I.I., Nechaeva, O.A., Novikov, V.V., Salatov, A.V., Fedotov, P.V., Semishkin, V.P., 2005, Structuire phase investigation and mechanical properties of Zr-1%Nb alloy cladding after LOCA test on PARAMETER facility under 1400°C, *Proc.* 11th Int. QUENCH, Wkshop, Karlsruhe, Allemagne.

Harman, N.F., Clough, P.N., A1992, A review of radionuclide release and transport in recent in-pile experiments, Rapport EUR 14230, Commission des Communautés Européennes.

Harmathy, T. Z., 1970, Thermal properties of concrete at elevated temperatures, J. Mater. 5, 47-74.

Hicks, D., Sato, K., 1990, Contributions of the OECD LOFT Project to Nuclear Safety, *Compte-rendu de la journée d'information « Projet LOFT de l'OCDE, Réalisations et résultats importants »*, Madrid, OCDE, p.41-57.

Hidaka, A., Kudo, T., Nakamura, T., 1999, *Current Status of VEGA program and a preliminary test with Cesium Iodide*, Rapport JAERI-RESEARCH 99-066, Institut de Recherche sur l'Energie Atomique du Japon.

Hilliard, R.K., Postma, A.K., 1981, Large-Scale Fission Product Containment Tests, *Nucl. Technol.*, 53, 163-175.

Hirai M., Takebayashi K., Yoshikawa Y., 1993, Effect of chemical composition on apparent viscosity of semi-solid alloys, *ISIJ Int.* 133, 1182-1189.

Hofmann, P., Hagen, S., Schanz, G., Skokan, A., 1989, Reactor Core Materials Interactions at Very High Temperatures, *Nucl. Technol.*, 87, 146-186.

Hofmann, P., Hagen, S., Noack, V., Schanz, G., Schumacher, G., Sepold, L., 1994, Essential experimental results of the CORA test program on severe core damage phenomena, *Kerntechnik*, 59, 197-202.

Hofmann, P., Hagen, S.J.L., Noack, V., Schanz, G., Sepold, L.K., 1997, Chemical-Physicall behavior of Light-Water Reactor core components tested under severe accident conditions in the CORA facility, *Nucl. Technol.*, 118, 200-224.

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.

Hohmann, H., Magallon, D., Schins, Yerkess, A., 1995, FCI experiments in the aluminium oxide/water system, *Nucl. Eng. Des.*, 155, 391-403.

Hohorst, J. K., 1990, SCDAP/RELAP5/MOD3 code Manual Volume 4: MATPRO - A Library of Materials Properties for Light Water Reactor Accident Analysis, EG&G Idaho Report NUREG/CR 5273.

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.

Hong, S. W., Min, B.T., Song, J.H., Kim, H.D., 2003, Application of cold crucible for melting of UO₂/ZrO₂ mixture, *Mater. Sci. Eng.*, A357, 297-303

Hózer, Z., Maróti, L., Windberg, P., Matus, L., Nagy, I., Gyennes, G., Horváth, M., Pintér, A., Balaskó, M., Czitrovszki, A., Jani, P., Nagy, A., Prokopiev, O., Tóth, B., 2006, Behavior of VVER fuel rods tested under severe accident conditions in the CODEX facility, *Nucl. Technol.*, 154, 302-317.

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.

Huhtiniemi, I., Hohmann, H., Magallon, D., 1997, FCI experiments in the corium/water system, *Nucl. Eng. Des.*, 117, 339-349.

Huhtiniemi, I., Magallon, D., Hohmann, H., 1997b, Results of recent KROTOS FCI tests : alumina versus corium melts, OECD CSNI Spec. Mtg. On Fuel Coolant Interaction, Tokai, Japon.

Huhtiniemi, I., Magallon, D., Hohmann, H., 1999, Results of recent KROTOS FCI tests : alumina versus corium melts, *Nucl. Eng. Design*, 189,379-389.

Huhtiniemi, I., Magallon, D., 2001, Insights into steam explosions with corium melt in KROTOS, *Nucl. Eng. Des.*, 204, 391-400.

Hull, F. C., 1969, Estimating alloy densities, Metal Progress, nov. 1969, 139-140.

Hunziker, O., 2001, Theory of plane front and dendritic growth in multicomponent alloys. *Acta Mater.*, 49, 4191 - 4203.

Huppert, H.E., 1982, The propagation of two-dimensional and axisymmetric viscous gravity currents over a rigid horizontal surface, *J. Fluid Mech.*, 121, 43-58.

Iglesias, F.C., Lewis, B.J., Reid, P.J., Elder, P., 1999, Fission product release mechanisms during severe accident conditions, *J. Nucl. Mater.*, 270, 21-38.

Ignatyev, D., 2006, Post test examination of the test bundle PARAMETER SF1, *Proc.* 12th Int. QUENCH Workshop, Karlsruhe, Allemagne.

INSAG (International Nuclear Safety Advisory Group), 1999, Basic Safety Principles for Nuclear Power Plants, 75-INSAG-3 Rev. 1, INSAG-12, AIEA, Vienne.

Jeulain, G., 2001, Rhéologie des Mélanges en cours de solidification sous cisaillement - Application au Corium, Mémoire de DRT, Ecole Nationale Supérieure de Céramique Industrielle, Limoges.

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.

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).

Jégou, C., Boccaccio, E., Journeau, C., Piluso, P., Monerris, J. 2001, Induction Heating simulation of Residual power in the VULCANO facility, *Proc. Int. Seminar Heating by Internal Sources*, Padoue, Italie.

Joly, P.A., Mehrabian, R., 1976, The rheology of a partially solid alloy, J. Mater. Sci. 11, 1393-1418.

Journeau, C., Thomann, F., 1993, Procédé et Dispositif de Détection et de Localisation de Fuite de Gaz d'une Enceinte de Confinement à Double Paroi, Brevet Européen n° FR 93 12939.

Journeau, C., Jung, Y., Pierre, J., 1998, Visualization of a 2000°C Melt spreading over a plane, 8^{th} 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., Ramacciotti, M., Richardson, E.L., Cognet, G., 2000, Viscosity of Silicate Melts, *Eigth International Symposium on Experimental Minerology*, *Petrology and Geochemistry*, Bergame, Italie.

Journeau, C., Sudreau, F., Magne, S., Cognet, G., 2001 Physico-chemical analyses and solidification path reconstruction of multi-component oxidic melt spreads, *Mater. Sci. Eng.* 299A, 249-266.

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., Jegou C., Monerris J., Piluso P., Frolov K., 2003b, Phase macrosegregation during the slow solidification of prototypic corium, *10th Int Conf. Nucl. React. Thermalhydraulics, NURETH10*, Seoul, Corée.

Journeau, C., Piluso, P., Godin-Jacqmin, L., Ivanov, I., Mladenov, I., Grudev, P., Kalchev, S., Alsmeyer, H., Eppinger, B., 2003c, Transnational Access to the PLINIUS Prototypic Corium Experimental Platform, *Proc. Symposium FISA 2003, EU Research in Reactor Safety*, Luxembourg.

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.

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., Brayer, C., Piluso, P., 2005b, 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., 2006, L'étalement du corium : Hydrodynamique, rhéologie et Solidification d'un bain d'oxydes à haute température, Thèse de doctorat, Université d'Orléans.

Journeau, C., 2006b, "PLINIUS" Transnational Access to the corium research infrastructure, FISA 2006, EU Research and Training in Reactor Systems, Luxembourg, 13-16 mars 2006.

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., Malaval, S., 2006, Comportement thermique du béton d'une centrale nucléaire lors d'un accident grave, *Congrès Français de Thermique*, *SFT2006*, Ile de Ré.

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

Journeau, C., Haquet, J.-F., 2007, Convection Heat transfer Anisotropy in a Bubbling Viscous Pool, 8th Int. Conf. Gas-Liquid and Gas-Liquid-Solid Reactor Eng. (GLS-8), New Dehli, Inde.

Journeau, C., Steinbrück, M., Repetto, G., Duriez, C., Ma, W., Koundy, V., Bürger, M., Spindler, B., Bonnet, J.M., 2007, Achievements and status of research in the corium area, 2nd European review *Mtg. on Severe Accident research (ERMSAR-2007)*, Karlsruhe, Allemagne.

Journeau, C., Piluso, P., Haquet, J.F., Brissonneau, L., Aubert-Saldo, V., 2007b, Behaviour of nuclear reactor pit concretes under severe accident conditions, *Proc. CONSEC '07, Concrete under Severe Conditions*, Tours, France.

Kaiser, A., Huber, F., Wilhelm, D., 1998, Experiments on the behaviour of a hot melt jet injected into sodium, *Exp. Therm. Fluid Sci.*, 18, 48-69.

Kamigaito, O., 2000, Density of compound oxides, J. Ceram. Soc. Jap. 108, 944-947.

Katsaros, K.B., Liu, W.T., Businger, J.A., Tillman, J.E., 1977, Heat transport and thermal structure in the interfacial boundary layer in an open tank of water in turbulent free convection, *J. Fluid Mech.*, 83, 311-335.

Kato, M., Nagasaka, H., Vassilyev, Yu., Kolodeshnikov, A., Zhdanov, V., 2000, COTELS Fuel Coolant Interaction Tests under Ex-Vessel Conditions, *Proceedings of the workshop on severe accident research held in Japan (SARJ-99)*, 377, 36-42.

Kerr, R.C., 1994, Melting driven by vigorous compositional convection, J. Fluid Mech., 280, 255-285.

Kerr, R.C., 1994b, Dissolving driven by vigourous compositional convection, J. Fluid Mech., 280, 287-302.

Khoury, G.A. et al., 1984, Radial Temperature Distributions within solid concrete cylinders under transient thermal states, *Concrete Research*, 36, 146-156.

Khoury, G. A., 2000, Effect of Fire on Concrete and Concrete Structures, *Prog. Struct. Engng Mater.*, 2, 429-447.

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.

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.

Kleykamp, H., 1985, The chemical state of fission products in oxide fuels, J. Nucl. Mater., 131, 221-246.

Konishi, K., Kubo, S., Sato, I., Koyama, K., Toyooka, J., Kamiyama, K., Kotake, S., Vurim, A.D., Gaidachuk, V.A., Pakhnits, A.V., Vassiliev, Yu.S., 2006, The EAGLE Project to Eliminate the Recriticality Issue of Fast Reactors - Progress and Results of In-Pile Tests -, 5th Korea-Japan Symposium on Nuclear Thermal Hydrolics and Safety, NTHAS5, Jeju, Corée.

Konovalikhin, M.J., Theertan, S.A., Sehgal, B.R., 2000, Experimental Investigation on Re-Spreading Phenomena, *Proc.* 8th Int. Conf. Nucl. Eng., Baltimore, USA.

Konovalikhin, M. J., 2001, *Investigation on Melt Spreading and Coolability in a LWR Severe Accident*, Thèse de Doctorat, Ecole Royale Polytechnique, Stockholm, Suède.

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.

Koundy, V., Durin, M., Nicolas, L., Combescure, A., 2005, Simplified modelling of a PWR reactor pressure vessel lower head failure in the case of a severe accident, *Nucl. Eng. Des.*, 235, 835-843.

Krieg, R., Malmberg, T., Messemer, G., Stach, T., Stratmanns, E., 1995, Slug impact loading on the vessel head during a postulated in-vessel steam explosion in pressurized water reactors -Assessment and Discussion, *Nucl. Technol.*, 111, 369-384.

Krieger, I.M., Dougherty, T.J., 1959, A mechanism for non-newtonian flow in suspensions of rigid spheres, *Trans. Soc. Rheol.* 3, 137-152.

Krzhizhanovsky R. E., Stern, Z. U., 1973, *Thermophysical Properties of Non-Metallic Materials* (Oxides), Energya, Leningrad.

Kymäläinen, O., Tuomisto, H., Hongisto, O., Theophanous, T.G., 1993, Heat flux distribution from a volumetrically heated pool with high Rayleigh number, *Proc.* 6th Int. Mtg on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics, NURETH-6, Grenoble.

Kymäläinen, O., Tuomisto, H., Theophanous, T.G., 1997, In-vessel retention of corium at the Loviisa plant, *Nucl. Eng. Des.*, 169, 109-130.

Labroche, D., 2000, *Etude Thermodynamique du ternaire U Fe O*, Thèse de doctorat de l'Université Joseph Fourier, Grenoble

Lake, J.A., 2002, The fourth generation of nuclear power, Progr. Nucl. Energy, 40, 301-307.

Lefevre, J.C., Mitchell, C.H., Hubert, G., 1996, European fast Reactor Design, *Nucl. Eng. Des.*, 162, 133-143.

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.

Le Rigoleur, C., Kayser, G., Maurin, G., Magnon, B., 1982, The internal core catcher in SuperPhénix 1, Actes de la Conférencxe de Lyon, LMFBR Safety Topical Meeting, ENS-SFEN-ANS.

Leshchenko, A., 2005, Test Rig and Techniques for Quench tests with irradiated VVER rod simulators, *Proc.* 11th Int. QUENCH Workshop, FZK, Karlsruhe, Allemagne.

Leskovar, M., Meignein, R., Brayer, C., Bürger, M., Buck, M., 2007, Material Influence on Steam Explosion Efficiency: State of Understanding and Modelling Capabilities, 2nd European review Meeting on Severe Accident Research ERMSAR 2007, Karlsruhe, Allemagne.

Lévêque, J.P., André, B., Ducros, G., Le Marois, G., Lhiaubet, G., 1994, The HEVA Experimental Program, Nucl. Technol., 108, 33-44.

Levinskii, Y.V., 1974, P vs. T Phase Diagram of the Uranium-oxygen System, *Atom. Ener.* 37, 1075-1076.

Liang, Y., Richter, F.M., Chamberlin, L., 1997, Diffusion in silicate melts : III. Empirical models for multicomponent diffusion. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 61, 5295 - 5312.

Libmann, J., 2000, Eléments de Sûreté Nucléaire, EDP Sciences, Les Ulis.

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

Liu, Z., Cox, D.S., Dickson, R.S., Elder, P., 1994, A summary of CRL Fission Product release measurement from UO₂ samples during post-irradiation annealing, Rapport COG-92-377, AECL.

Llewelin, E. W., Mader, H.M., Wilson, D.R., 2002, The rheology of a bubbly liquid, *Proc. R. Soc. Lond.*, A458, 987-1016.

Lorenz, R.A., Osborne, M.F., 1995, A summary of ORNL Fission Product Release Tests with recommended Release Rates and Diffusion Coefficients, Rapport ORNL/TM-12801, NUREG/CR-6261, Laboratoire National d'Oak Ridge, USA.

Macedonio, G., Longo, A., 1999, Lava flow in a channel with a bifurcation, *Phys. Chem. Earth (A)*, 24, 953-956.

Magallon, D., Hohmann, H., Schiens, H., 1992, Pouring of 100-kg scale molten UO₂ into sodium, *Nucl Technol.*, 98, 79

Magallon, D., Hohmann, H., 1995, High pressure corium melt quenching tests in FARO, Nucl. Eng. Des., 155, 253-270.

Magallon, D., Huhtiniemi, I., Hohmann, H., 1995b, In-vessel loads resulting from molten fuel coolant/structure interactions, *Service Experience*, *Structural Integrity*, *Severe Accidnets and Erosion in Nuclear and Fossil Plants*, édité par S.R. Paterson et al., ASME, New York (Livre #H00966).

Magallon, D., Huhtiniemi, Hohmann, H., 1999, Lessons learnt from FARO/TERMOS corium melt jet quenching in water, *Nucl. Eng. Des.*, 189, 223-238.

Magallon, D., Huhtiniemi, I., 2001, Corium melt quenching tests at low pressure and subcooled water in FARO, *Nucl. Eng. Des.*, 204, 369-376.

Magallon, D., Huhtiniemi, I., 2001b, Energetic event in fuel-coolant interaction test FARO L-33, *Proc.* 9th Int. Conf. Nucl. Eng. (ICONE-9), Nice.

Magallon, D., 2006, Characteristics of corium debris bed generated in large-scale fuel coolant interaction experiments, *Nucl. Eng. Des.*, 236, 1998-2009.

Malaval, S., 2006, Interaction Corium-Béton: Comportement du béton d'une centrale nucléaire soumis à de très hautes températures, Mémoire de DRT, Ecole Nationale Supérieure de Céramiques Industrielle, Limoges.

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.

Maróti, L., 1997, Chemical interaction between VVER core components under accidental situation, *Nuc. Eng. Des.*, 172, 73-81.

Marple, V.A., Rubow, K.L., Olson, B.A., Inertial, Gravitational, centrigugal and thermal collection techniques, in: *Aerosol Measurement, Priciples, Techniques, and Applications*, K. Willeke, P.A. Baron, eds., Van Nostrand Reihold, New York, 1993.

Martinson, Z.R., Miller, M.W., 1985, SFD 164 tests results with irradiated fuel and control rods, *Trans. Am. Nuc. Soc.*, 50, 319.

Maruyama, Y., Kato, M., Nagasaka, H., Kolodeshnikov, A.A., Zhdanov, V., Vassiliev, Yu., S., 2002, Results of LHI tests and associated analyses on in-vessel debris coolability, *Proc NTHAS3*, *3rd Korea-Japan Symp. Nuclear Thermalhydraulics and Safety*, Kyeongju, Corée.

Maruyama, Y., Kojima; Y., Tahara, M., Nagasaka, H., Kato, M., Kolodeshnikov, A.A., Zhdanov, V.S., Vassiliev, Yu.S., 2006, A study on concrete degradation during molten core/concrete interactions, *Nucl. Eng. Des.*, 236, 2237-244.

McLaughin, 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.

Mersmann, A., 1978, Design and Scale-up of Bubble and Spray Columns, Ger. Chem. Eng., 1, 1.

Meyer, L., Gargallo, M., 2003, Low Pressure Corium Dispersion Experiments with Simulant Fluids in a Scaled Annular Cavity, *Nuclear Technology*, 141, 257-274, 2003.

Micaelli, J.C., Van Dorsselaere, J.P., Chaumont, B., Haste, T., Meyer, L., Bonnet, J.M., Trambauer, K., Beraha, D., Annunziato, A., Sehgal, B.R., 2006, SARNET - Network of Excellence for a Sustainable Integration of European Research on Severe Accident Phenomenology, *FISA 2006 - EU Research and Training in Reactor Systems*, Luxembourg.

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.

Min, B.T., Song, J.H., Park, Y.S., Kim, J.G., 2006, A physical and chemical analysis of fast quenched particles of UO₂ and ZrO₂ mixture, *J. Nucl. Mater.*, 358, 243-254.

Mitchell, D.E., Corradini, M.L., Tarbell, W.W., 1981, Intermediate scale steam explosion phenomena: Experiments and Analysis, Rapport Lab. Nat. Sandia SAND-81-0124.

Monforte, F.R., Swanekamp, F.W., Uitert, L.G. 1961, Radiofrequency technique for pulling oxide crystals without employing a crucible susceptor, *J. Appl. Phys.*, 32, 959.

Mooney, M., 1951, The viscosity of a concentrated suspension of spherical particles. J. Colloid. Sci., 6, 162-170.

Morris, S., Canright, D., 1984, A boundary-layer analysis of Bénard convection in a fluid of strongly temperature-dependant viscosity, *Phys. Earth Planet. Inter.*, 36, 355-373.

Morse, P.M., Ingard, K.N., 1968, *Theoretical Acoustics*, Mc Graw Hill, New York.

Morton, D.A.V., Mitchell, J.P., 1995, Aerosol Penetration Through Capillaries and Leaks: Experimental Studies on the Influence of Pressure, *J. Aerosol Sci.*, 26, 353-367.

Müller, W.C., 2006, Review of debris bed cooling in the TMI-2 accident, *Nucl. Eng. Des.*, 236, 1965-1975.

Mullins, W.W., Sekerka, R.F., 1964, Stability of a planar interface during solidification of a dilute binary alloy, *J. Appl. Phys.*, 35, 444 - 451.

Murakami, T., 2007, World Nuclear Power Generation Markets and Prospects for NuclearIndustry Realignment, Institute of Energy Economics, Japan.

Mungall, J. E., 2002, Empirical models relating viscosity and tracer diffusion in magmatic silicate melts. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 66, 1, 125 - 143.

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.

Nazaré, S., Ondracek, G., Schultz, B., 1976, Stoffwerte von LWR-Coreschmelzen, Wissen. Ber. KFKA 2217, 381-393.

Nelson, C.T., Johnson, R.P., 1975, Aerosol leakage tests -Status of Technology for Radiological Consequence Assessment of postulated Accidents in LMFBR's, Rapport ERDA-56, Springfield, USA.

Nelson, L.S., Buxton, L.D., 1978, Steam Explosion triggering phenomena: Stainless Steel and Corium-E simulants studied with a floodable arc melting apparatus,, Rapport Lab. Nat. Sandia SAND77-0998, NUREG/CR-0122.

Nelson, L.S., Buxton, L.D., Planner, H.N., 1980, Steam Explosion triggering phenomena, Part 2: Corium-A and Corium-E simulants and oxides of iron and cobalt studied with floodable arc melting apparatus, Rapport Lab. Nat. Sandia SAND79-0260, NUREG/CR-0633.

Ng Win Tin, M., 2004, *Thermal Convection in variable viscosity fluids - Application to nuclear severe accidents*, Mémoire de MSc., Ecole Polytechnique Royale de Stockholm, Division de Sûreté Electronucléaire.

Ng Win Tin, M., Haquet, J.F., Journeau, C., 2005, Températures d'interfaces pour la convection de fluides à viscosité variable, *Congrès Français de Thermique*, *SFT 2005*, Reims.

Nichols, A.L., Mitchell, J.P., 1988, Measurement of the physical properties of nuclear aerosols, *Nucl. Technol.*, 81, 205-232.

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.

Nie, M., 2005, *Temporary Melt Retention in the Reactor Pit of the European Pressurized Water Reactor (EPR)*, Thèse de Docteur-Ingénieur, Université de Stuttgart (Institüt für Kernenergetik und Energiesystem), Allemagne.

Noumowe, A., 1995, Effet de Hautes Températures (20 - 600 °C) sur le béton : cas particulier du béton à hautes performances, Thèse de Doctorat de l'Institut National des Sciences Appliquées, Lyon, France.

Omoto, A., 2005, Nuclear power for sustainable development and relevant IAEA activities for the future, *Progr. Nucl. Energ.*, 47, 16-26.

Osif, B.A., Baratta, A.J., Conkling, T.W., 2004, *TMI 25 years later*, Penn. State Univ. Press, University Park, PA.

Paladino, D., Theerthan, A., Sehgal, B.R., 2001, A study on the ex-vessel debris coolability by bottom coolant injection (DECOBI), 9. *international conference on nuclear engineering (NURETH9)*, Nice, France.

Paradis J. F., Rhim, W. K., Thermophysical properties of zirconium at high temperature, *J. Mater. Res.*, 14, 3713-3719.

Parozzi, F., Chatzidakis, S., Gelain, T., Herranz, L. E., Hinis, E., Housiadas, C., Journeau, C., Malgarida, E., Nahas, G., Piluso, P., Plumecocq, W., Vendel, J., 2005, Investigation on aerosol transport in containment cracks, *International Conference Nuclear Energy for New Europe*, Bled, Slovénie, September 5-8, 2005

Pazukhin, E.M., 1994, Fuel containing lavas of the Chernobyl NPP fourth block: Topography, Physicochemical properties, and formation scenario, *Radiochem.* 36, 109-154.

Perez, M., 2000, Computer simulation of the microstructure and rheology of semi-solid alloys under shear, *Acta Mater.*, 48, 3772-3782.

Perez, M., Salvo, L., Suery, M., Brechet, Y., Papoular, M., 2000, Contactless viscosity measurement by oscillations of gas-levitated drops, *Phys. Rev.* E 61, 2669-2675.

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

Petrov, Yu.B., Lopukh, D.B., Petchenkov, A. Yu., Bechta, S.V., Vitol, S.A., Krushiniv, E.V., Pautova, T.Yu., Bowsher, B.R., Benson, C.G., Mason, P.K., Manenc, H., 1998, Fission Product Release from Molten Pool: ceramic melt tests, Proceedings of the workshop on severe accident research held in Japan (SARJ-98), Tokyo, Japon.

Petrov, J., Süssmilch, J., Brožík, J., 1999, Air-lift effect in the induction melting if model corium alloys, *Nucleon*, 2, 39.

Petrov, Y., Udalov, Y., Jurek, K., Sazavski, P., Selucki, P., Piluso, P., Journeau, C., 2004, Miscibility gap phenomena in Oxide Melts in Air under Ex-vessel Corium Configurations, *ICAPP'04*, *Int. Conf. Advanced nucl. Power Plants*, Pittsburgh, PA.

Petti, D.A., Martinson, Z.R., Hobbins, R.R., Alison, C.M., Carlson, E.R., Hagrman, D.L., Cheng, T.C., Hartwell, J.K., Vinjamuri, K., Seifken, S.J, 1989, *Power Burst Facility (PBF) severe fuel damage test 1-4 test results report*, Rapport NUREG-CR/5163;EGG-2542, EG&G, Idaho Falls, ID.

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.

Pilch, M.M., 1992, Development of the single-cell adiabatic equilibrium model for direct containment heating, Rapport SAND92-0085, Laboratoire National de Sandia.

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.

Piluso, P., Monerris, J., Journeau, C., Cognet, G., 2002, Viscosity measurements of ceramic oxides by aerodynamic levitation, *Int. J. Thermophys.* 23, 1229-1240.

Piluso, P., Trillon, G., Magallon, D., 2005, Material Effect and Steam Explosion at High Temperature (T>2300 K), *Int. J. Thermophys*, 26, 1095-1114.

Piluso, P., Boccaccio, E., Bonnet, J.-M., Journeau, C., Fouquart, P., Magallon, D., Ivanov, I. Mladenov, I., Kalchev, S., Grudev, P., Alsmeyer, H., Fluhrer, B., Leskovar, M., 2005b, 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, Slovénie.

Piluso, P., Mwamba, K., Journeau, C., 2007, Thermitic melting of prototypic corium at the PLINIUS Platform, *Proceedings ICAPP 2007*, Nice, France.

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.

Plumecocq, W., Guillard, G., 2004, ELSA 2.1 : Fission product and structural element release from intact and degraded cores, Rapport ASTEC-V1/DOC/04-02, IRSN.

Plys, M.G., Wang, Z., Cady, K.B., 1992, Modeling and validation progress with MAAP 4 DECOMP, 2nd OECD (NEA) CSNI specialist meeting on molten core debris-concrete interactions. Karlsruhe, Allemagne.

Pontillon, Y., Malgouyres, P.P., Ducros, G., Nicaise, G., Dubourg, R., Kissane, M., Baichi, M., 2005, Lesson learnt from VERCORS tests : Study of the active role played by UO₂-ZrO₂-FP interactions on irradiated fuel collapse temperature, *J. Nucl. Mater.*, 344, 265-273.

Quemada, D., 1998, Rheological modeling of complex fluids. The concept of effective volume fraction revisited. *Eur. Phys. J. A.P.*, 1, 119-127.

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., 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.

Ramati S.D.E., Abbaschian G.J., Mehrabian R., 1978, The structure of a partially solid alloy, *Metall. Trans.*, 9B, 241-245.

Rao, P.B., Gopalakrishnan, Natarajan, A., Govindarajan, S., Ghosh, D., 1994, Recriticallity and Cooling Considerations of Relocated Molten Fuel following Core Meltdown Accidnet and Core Catcher Design for PFBR, *IAEA-IWGFR Tech Committee Meeting on Material Coolant Interactions and Material Movements and relocation in Liquid metal Fast Reactors*, O-arai, Japon.

Rasmussen, N.C., 1975, *Reactor Safety Study*, Rapport US Nuclear Regulatory Commission NUREG-75/014, WASH-1400.

Reinke, N., Drath, T., von Berlepsch, T., Unger, H.E., Koch, M.K., 2006, Formation, characterisation and cooling of debris. Scenario discussion with emphasis on TMI-2, *Nucl. Eng. Des.*, 236, 1955-1964.

Rempe, J.L., Knudson, D.L., Condie, K.G., Suh, K.Y., Cheung, F.B., Kim, S.B., 2004, Conceptual Design of an in-vessel core-catcher, *Nucl. Eng. Des.*, 230, 311-325.

Richardson, E.L., 1999, Validation of a theoretical model for use in the prediction of the viscous properties of corium, Stage de MSc, Oregon State University, Corvallis, OR.

Richter, M., Nataf, H.C., Daly, S.F., 1983, Heat transfer and horizontally averaged temperature of convection with large viscosity variations, *J. Fluid Mech.* 129, 173-192.

Rinaldi, M. D., Sharp, R. M., Flemings, M. C., 1972, Growth of ternary composites from the Melt: Part 1, *Metall. Trans.*, 3, 3133 - 3138.

Roche, M.F., Steidl, P.F., Leibowitz, L., Fink, J.K., Sehgal; B.R., 1993, Viscosity of corium concrete mixtures at high temperatures, Argone 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 **g**lasses at High Temperatures and 1 Bar (10⁵ 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.

Sala, A., 1986, Radiant Properties of materials, Elsevier, Amsterdam.

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

Schanz, G., Hagen, S., Hofmann, P., Schumacher, G., Sepold, L., 1992, Information on the evolution of severe LWR fuel element damage obtained in the CORA program, *J. Nucl. Mater.*, 188, 131-145.

Schuster, E., 1990, Fission Product Release and Dispersion in LP-FP1, *Compte-rendu de la journée d'information « Projet LOFT de l'OCDE, Réalisations et résultats importants »*, Madrid, OCDE, 224-241.

Schwarz, M., Clément, B., Jones, A.V., 2001, Applicability of Phébus FP results to severe accident safety evaluations and management measures, *Nucl. Eng. Des.*, 209, 173-181.

Seetharaman, S., Du Sichen, 1997, Viscosities of High Temperature Systems - A modelling approach, *ISIJ Int.*, 37, 109-118.

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.

Sehgal, B.R., Spencer, B.W., 1992, ACE Program Phase C: Fission Product Release from Molten Corium-Concrete Interactions, 2nd OECD CSNI Spec. Mtg. Core Concrete Interaction, Karlsruhe, Allemagne.

Sehgal, B.R., Dinh, T.N., Bui, V.A., Green, J.A., Kolb, G., 1998, SIMECO experiments on in-vessel melt pool formation and heat transfer with and without a metallic layer, *OECD/NEA/CSNI Wkshp on In Vessel Core debris Retention and Coolability*, Garsching, Allemagne.

Sehgal, B.R., 2001, Accomplishments and challenges of the severe accident research, *Nucl. Eng. Des.*, 210, 79-94.

Sehgal, B.R., Giri, A., Chikkanagoudar, U., Karbojian, A., 2006, Experiments in in-vessel melt coolability in the EC-FOREVER Program, *Nucl. Eng. Des.*, 236, 2199-2210.

Seiler, J.-M., Ganzhorn, J., 1997, Viscosity of corium-concrete mixtures, *Nucl. Eng. Des.* 178, 510-535.

Seiler J.M., Froment K., 2000, Material effects on multiphase phenomena in late phases of severe accidents of nuclear reactor, *Multiphase Sci. Technol.*, 12, 117-257.

Seiler, J. M., Labergri, F., Froment, K., Valin, F., 2001, Model development for the calculation of corium-ceramic interaction during severe accidents of LWRs. *Nucl. Eng. Des.*, 204, 401 - 412.

Seiler, J.M., Fouquet, A., Froment, K., Defoort, F., 2003, Theoretical analysis for corium pool with miscibility gap, *Nucl. Technol.*, 141, 233-243.

Shaw, H.R., 1969, Rheology of Basalt in the Melting Range, J. Petrol., 10, 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.

Shin, K.-Y., Kim, S.-B., Kim, J.-H., Chung, M., Jung, P.-S., 2002, Thermophysical properties and transient heat transfer of concrete at elevated temperatures, *Nucl. Eng. Des.*, 212, 233-241.

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.

Sidorov, A.S., Nedorezov, A.B., Rogov, M.F., Novak, V.P., Kukhtevich, I.V., Bezlepkin, V.V., Khabenskii, V.B., Granovskii, V.S., Beshta, S.V., 2001, The Device for Core Melt Loacalization in the Tian'wan Nuclear Power Station with a VVER-1000 Reactor, *Therm. Eng.*, 48, 707-712.

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, Frankfort/Main.

Solomatov, V.S., 1995, Scaling of temperature- and stress-dependant viscosity convection, *Phys. Fluids*, 7-2, 266-274.

Song, J., Park, I., Sin, Y., Kim, J., Hong, S., Min, B., Kim, H., 2002, Steam explosion experiments using ZrO₂ and ZrO₂/UO₂ mixture, *Proc. ICONE-10 (10th Int. Conf. Nucl. Eng.)*, Arlington, Va.

Song, J.H., Park, I.M., Shin, Y.S., Kim, J.H., Hong, S.W., Min, B.T., Kim, H.D., 2003, Fuel coolant interaction experiments in TROI using a UO₂/ZrO₂ mixture, *Nucl. Eng. Des.*, 222, 1-15.

Song, J.H., Kim, J.H., Hong, S.W., Min, B.T., Kim, H.D., 2006, The effect of corium composition and interaction vessel geometry on the prototypic steam explosion, *Ann. Nucl. Energ.*, doi:10.1016/j.anucene.2006.09.005.

Speis, T.P., Asmolov, V., 1995, RASPLAV: refining RPV integrity strategies for accident management, *Nuclear Europe Worldscan*, 9-10/1995, 46-47.

Spencer, B.W., Gunther, W.H., Armstrong, D.R., Thompson, D.H., Chasanov, M.G., Sehgal, B.R., 1986, EPRI/ANL Investigations on MCCI Phenomena and Corium Release, OECD CSNI Spec Mtg Core Debris Concrete Interactions, Palo Alto, Californie.

Spencer, B.W., Sienicki, J.J., McUmber, L.M., 1987, Hydrodynamics and heat transfer aspects of corium -water interactions, Rapport EPRI NP-5127, Electrical Power research Institute, Palo Alto, Ca., USA.

Spencer, B.W., Sienicki, J.J., Sehgal, B.R., Merilo, M., 1988, Results of EPRI ANL DCH Investigations and model developments, *Proc. ANS/ENS Conf Thermal reactor Safety*, Avignon.

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., 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., 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.

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.

Spindler, B., Tourniaire, B., Seiler, J.M., 2006c, Simulation of MCCI with the TOLBIAC-ICB code based on the phase segregation model, *Nucl. Eng. Des.*, 236, 2264-2270.
St John, D. A., 1998, Concrete Petrography - A handbook of investigative techniques, Arnold, Great Britain.

Stang, E., 1996, Chernobyl - System accident or human error, Rad. Prot. Dosimetry, 68, 197-201.

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.

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.

Strizhov, V. 1994, RASPLAV Project, an Analytical Assessment, OECD/NEA/CSNI Workshop on Large Molten Pool Heat Transfer, Grenoble.

Strizhov, V., Voltchek, A., Ozrin, V., Yamshchikov, D., Likhansky, V., Khoruzhii, O., Moskovchenko, A., 1995, Property data base that used in calculation, OECD/RASPLAV Report.

Sudreau, F., Cognet, G., 1997, Corium Viscosity Modelling above Liquidus Temperature, *Nucl. Eng. Des.* 178, 269-277.

Suh, K.Y., Henry, R.E., 1996, Debris interaction in reactor vessel lower plenaduring a severe accident, *Nucl. Eng. Des.*, 166, 147-163.

Sutter, S.L., 1979, Depleted Uranium Dioxide Powder Flow Through Very Small Openings, Rapport NUREG/CR-1099, PNL-3177, US Nuclear Regulatory Commission.

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.

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.

TAPP, 1994, A database of Thermomechanical And Physical Properties, ES Microware, OH, USA.

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.

Taylor, G. I., 1932, The viscosity of a fluid containing small drops of another fluid, *Proc. Royal Soc.* 138A, 41-48.

Tenaud, A., Bentaïb, A., Bonneville H., Caroli, C., Chaumont B., Clément B., Cranga, M., Fichot, F., Fleurot, J., Gonzalez, R., Koundy, V., Laurent, B., Micaelli, J.-C., Meignen, R., Pichereau, F., Plassart, D., Raimond, E., Tenaud, A., Van Dorsselaere, J.-P., Ducros, G., Durin, M., Journeau, C., Magallon, D., Seiler, J.-M., Studer, E., Tourniaire, B., Ranval, W., 2006, *R&D relative aux accidents graves dans les réacteurs à eau pressurisée : bilan et perspectives*, Rapport IRSN-2006/73 Rev1 - Rapport CEA-2006/474 Rev1, disponible sur www.irsn.org.

Theofanous, T.G., Liu, C., Additon, S., Angelini, S., Kymäiläinen, O., Salmassi, T., 1996, In-Vessel Collability and Retention of a Core Melt, US Dept of Energy Report DOE/ID-10460.

Theofanous, T.G., Liu, C., Additon, S., Angelini, S., Kymäläinen, O., Salmassi, T., 1997, In-vessel coolability and retention of a core melt, *Nucl. Eng. Des.*, 169, 1-48.

Theofanous, T.G., Yuen, W.W., Angelini, S., Sienicki, J.J., Freeman, K., Chen, X., Salmassi, T., 1999, Lower head integrity under steam explosion loads, *Nucl. Eng.*, *Des.*, 189, 7-57.

Thomann, F., 1996, Localisation d'une source acoustique en milieu guidé et réverbérant. Contribution à l'étude de la localisation de fuite de l'enceinte de confinement d'une centrale nucléaire en situation accidentelle grave, Thèse de doctorat de l'Université de Paris VII.

Thomas D. G., 1961, Laminar Flow Properties of Flocculated Suspensions, AIChE J., 7, 431-437.

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.

Thompson, D.H., Farmer, M.T., Fink, J.K., Armstrong, D.R., Spencer, B.W., 1997, *Compilation, analysis and interaction of ACE Phase C and MACE experimental data*. Rapport ACEX TR-C-14, Argonne National Laboratory, Chicago, IL, USA.

Tiller, W. A., Jackson, K. A., Rutter, J. W., Chalmers, B., 1953, The redistribution of solute atoms during solidification of metals. *Acta Metallurgica*, 1, 428 - 437.

Tobita, Y., Yamano, H., Sato, I., 2006, Analytical Study on Elimination of Severe Recriticalities in large Scale LMFBRs with Enhancement of Fuel Discharge, *Tech. Mtg. Severe Accidents and Accident Management*, Tokyo, Japon.

Tolstoy, A., 1993, *Matched field processing for underwater acoustics*, World Scientific, Singapour.

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.

Tourniaire, B., Seiler, J.M., Bonnet, J.M., Amblard, M., 2002, Liquid ejection through orificesby sparging gases. The PERCOLA Program, *Proc. ICONE-10 (10th Int. COngr. Nucl. Engr.)*, Arlington, Virginie, USA.

Tourniaire B., Bonnet J.M., "Study of the mixing of immiscible liquids by sparging gas: results of the BALISE experiments", 10th NURETH, 2003.

Trambauer, K., Haste, T.J., Adroguer, B., Hózer, Z., Magallon, D., Zurita, A., 2000, *In-Vessel core degradation Code Validation Matrix*, *Update 1996-1999*, Rapport OCDE, NEA/CSNIR(200)21.

Trambauer, K., Schwinges, B., 2007, Evaluation of Research Priorities in the frame of SARNET, 2nd European review Mtg on Severe Accident Research, ERMSAR 2007, Karlsruhe, Allemagne.

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 materials at the FARO facility and theoretical analysis, *Wiss. Ber. FZKA*, 6475,178-188.

Tromm, W. et al., 2001, Ex-Vessel Corium Cooling by Passive water Addition through Porous Concrete, *Proc. ICONE 9*, Nice, France.

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.

Ulbrich, A., Steinwarz, W., Geiss, M., 1998, COMAS- und HTCM-Experimente zum Wärmeübertragungsverhalten prototypischer Kernschmelzen, *Jahrestagung Kerntechnik*, 145-148.

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.

Veshchunov, M.S., Hofmann, P., 1994, Dissolution of solid UO₂ by molten Zircaloy, J. Nucl. Mater., 209, 92-106.

Veshchunov, M., 2007, Cooperation between ISTC and SARNET in the source term area, *European Review Meeting on Severe Accident Research, ERMSAR 2007*, Karlsruhe, Allemagne.

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.

Vigneresse, J.L., Barbey, P., Cuney, M., 1996, Rheological transitions during partial melting and crystallization with application to felsic magma segregation and transfer. *J. Petrol.*, 37, 1579-1600.

Vodak, F. et al., 1997, Thermophysical Properties of Concrete for Nuclear-safety related Structures, *Cement and Concrete Research*, 27, 415-426.

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.

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.

Wang, Z., Schlenger-Faber, B. J., McCartney, M.A., 1996, Severe-accident analysis using the MAAP code: Modeling and applications, *Trans. ANS* 75, 244-246.

Watanabe, A., Hashimoto, T., Osaki, M., 1988, Fission Product Aerosol Trapping Effects in the Leakage Path of Containment Penetration under Severe Accident Conditions, *Proc.* 3rd OECD Specialist Meeting on Nuclear Aerosols in Reactor Safety, OCDE, Paris.

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.

Widmann, W., Bürger, M., Lohnert, G., Alsmeyer, H., Tromm, W., 2006, Experimental and theoretical investigations on the COMET concept for ex-vessel core melt retention, *Nucl. Eng. Des.*, 236, pp. 2304-2327.

Willschütz, H.G., Altstadt, E., Sehgal, B.R., Weiss, F.P., 2003, Simulation of creep tests with French or German RPV-steel and investigation of a RPV-support against failure, *Annals Nucl. Ener.*, 30, 1033-1063.

Windberg, P., 2004, CODEX and RUSET Air Oxidation Experiments, *Nuclear Energy New Europe 2004*, Portorož, Slovenia.

Wittmaack, R., 1997, CORFLOW: A code for the numerical simulation of free-surface flow, *Nucl. Technol.*, 119, 158-180.

Wittmaack, R., 2000, Numercial simulation of corium spreading in the EPR with CORFLOW, *Wiss. Ber. FZKA*, 6475, 201-211.

Woodley R.E., 1974, The Viscosity of Molten Uranium Dioxide, J. Nucl. Mater., 50, 103-106.

Wu, Q., Zhang, G.J., Ishii, M., Revankar, S.T., Lee, R.Y., 1996, Experimental simulation of corium dispersion phenomena in direct containment heating, *Nucl. Eng. Des.*, 164, 237-255.

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.

Yudina, T., 2006, Results of pre- and post-test calculation of PARAMETR-SF1 Experiment (flooding from the top of overheated VVER Bundle), *Proc.* 12th *Int. QUENCH Wkshp*, Karlsruhe, Allemagne.

Zuber, N., Boyack, B., Duckler, A., Griffith, P., Healzer, J., Henry, R., Ishii, M., Lehner, J., Levy, Z., Moody, F., Pilch, M., Sehgal, B., Spencer, B., Theophanous, T., Valente, J., Wilson, G., Wulff, W., 1991, *An integrated structure and scaling methodology for severe accident technical issue resolution*, Rapport NUREG/CR-5809, EGG-2659, US Nuclear Regulatory Commission.

LISTE DES PUBLICATIONS DE CHRISTOPHE JOURNEAU

• <u>Revues et ouvrages</u>

C. Journeau, High Frequency vibrations of liquid-filled thick elastic shells : A simplified modal approach, J. Acoust. Soc. Am., 97(3), pp. 1670-1677, 1995

B.J. Brévart, C. Journeau, C.R. Fuller, High Frequency Response of a Fluid-Filled Cylindrical Shell with an Internal Column of Gas Bubbles: Application to Active Acoustic Gas Leak Detection, J. Sound Vib., 194(3), pp. 417-437, 1996

C. Journeau, P. Ducret, Towards in-situ Ultrasonic Transmission of melt Crusts above 2000°C, Ultrasonics, vol. 36, No. 5, pp. 251-255, 1998

M. Ramacciotti, C. Journeau, G. Abbas, F. Werozub, G. Cognet ; Propriétés Rhéologiques de mélanges en cours de solidification, Cahiers de Rhéologie, Vol XVI, N° 1, pp. 303-308, 1998

G. Cognet, G. Laffont, C. Jégou, J. Pierre, C. Journeau, F. Sudreau, A. Roubaud, Utilisation d'un four tournant à arc plasma transféré pour fondre et couler des mélanges d'oxydes autour de 2000°C., Ann. Pharm. Fr., vol. 57, pp. 131 - 136, 1999

C. Journeau, F. Sudreau, J.-M. Gatt, G. Cognet, Thermal, physico-chemical and rheological boundary layers in multi-component oxidic melt spreads, Int. J. Therm. Sci., vol. 38, pp. 879-891, 1999

Cognet, G.; Brayer, C.; Cranga, M.; Journeau, C.; Laffont, G.; Splinder, B.; Veteau, J.M., Le corium et son étalement, Rapport scientifique CEA 1999, Rapport CEA/R 5889, p. 117-119, Saclay, 1999.

G. Cognet, H. Alsmeyer, W. Tromm, D. Magallon, R. Wittmaack, B.R. Sehgal, W. Widmann, L. De Cecco, R. Ocelli, G. Azarian, D. Pineau, B. Spindler, G. Fieg, H. Werle, C. Journeau, M. Cranga, G. Laffont, Corium Spreading and Coolability, Nuclear Engineering and Design, 209 (2001) 127-138.

G. Cognet, C. Journeau, M. Cranga, G. Laffont, W. Tromm, D. Magallon, R. Wittmaack, B.R. Sehgal, L. De Cecco, R. Ocelli, D. Pineau, B. Spindler, G. Fieg, H. Werle, Corium spreading phenomena: rsults obtained from the EU CSC project, Wissenschaftliche Berichte FZKA. [Wiss. Ber. FZKA], 2000, no 6475, pp. 138-147

G. Cognet, G. Laffont, C. Jégou, J. Pierre, C. Journeau, M. Cranga, M. Ramacciotti, The VULCANO ex-vessel programme, Wissenschaftliche Berichte FZKA. [Wiss. Ber. FZKA], 2000, no 6475, pp. 156 - 168

G. Cognet, F. Sudreau, M. Ramacciotti, C. Journeau, J.M. Seiler, Methodology for corium-concrete viscosity calculations, Wissenschaftliche Berichte FZKA. [Wiss. Ber. FZKA], 2000, no 6475, pp. 408 - 420.

C. Journeau, F. Sudreau, S. Magne, G. Cognet, Physico-chemical analyses and solidification path reconstruction of multi-component oxidic melt spreads, Material Science and Engineering 299A, 249-266, 2001.

M. Ramacciotti, F. Sudreau, C. Journeau, G. Cognet, Viscosity Models for Corium Melts, Nuclear Engineering & Design, 204 (2001) 377-389.

C. Journeau, C. de Pascale, C. Brayer, M. Cranga, Convection in Transient Flows of solidifying Oxidic Mixtures, in P. Ehrhard, D.S. Riley, P.H. Steen, eds., Interactive dynamics of Convection and Solidification, Kluwer Academic Pub., Dordrecht, NL, 2001.

G. Cognet, H. Alsmeyer, W. Tromm, D. Magallon, R. Wottmaack, B.R. Sehgal, W. Widman, L. De Cecco, R. Ocelli, G. Azarian, D. Pineau, B. Spindler, G. Fieg, H. Werle, C. Journeau, M. Cranga, G. Laffont, Corium Spreading and Coolability, CSC Project. Nucl. Eng. Des. 209(2001) 127-138.

P. Piluso, J. Monerris, C. Journeau, and G. Cognet, Viscosity measurements of ceramic oxides by aerodynamic levitation, Int. J. Thermophys.23 (5) 1229-1240, 2002.

W. Steinwarz, W. Koller, N. Dyllong, W. Häfner, C. Journeau, J. M. Seiler, K. Froment, G. Cognet, S. Goldstein, M. Fischer et al., Ex-vessel core melt stabilization research (ECOSTAR), Nucl. Eng. Design, 221(1-3) 77-94, 2003.

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

D. Delaunay, D. Maillet et al., Livre blanc : La recherche en thermique, enjeux et perspectives en 2005, SFT, novembre 2004.

H. Alsmeyer, G. Albrecht, L. Meyer, W. Häfner, C. Journeau, M. Fischer, S. Hellman, M. Eddi, H.-J. Allelein, M. Bürger, B.R. Sehgal, M.K. Koch, Z. Alkan, J.B. Petrov, M. Gaune-Escard, E. Altstadt and G. Bandini, Ex-vessel core melt stabilization research (ECOSTAR), Nuclear Engineering and Design, Volume 235, Issues 2-4, February 2005, Pages 271-284

K. Frolov, C. Journeau, P. Piluso, M. Duclot, Electrochemical determination of oxidic melt diffusion coefficients, Int. J. Thermophys. 26(4) 1181-1192, 2005

Piluso P., Trillon G., Journeau C., 2005, The UO_2 -Zr O_2 system at high temperature (T>2000K): importance of the meta-stable phases under severe accident conditions, J. Nucl. Mat. 344, 259-264.

C. Journeau, J.F. Haquet, B. Spindler, C. Spengler, J. Foit, "The Vulcano VEU7 Corium Spreading Benchmark", Progr. Nucl. Ener., 48, 215-234 (2006).

C. Journeau, G. Jeulain, L. Benyahia, J.F. Tassin, P. Abélard, Rheology of mixtures in the solidification range, Rhéologie, 9, 28-39 (2006).

Tenaud, A., Bentaïb, A., Bonneville H., Caroli, C., Chaumont B., Clément B., Cranga, M., Fichot, F., Fleurot, J., Gonzalez, R., Koundy, V., Laurent, B., Micaelli, J.-C., Meignen, R., Pichereau, F., Plassart, D., Raimond, E., Tenaud, A., Van Dorsselaere, J.-P., Ducros, G., Durin, M., Journeau, C., Magallon, D., Seiler, J.-M., Studer, E., Tourniaire, B., Ranval, W., 2006, *R&D relative aux accidents graves dans les réacteurs à eau pressurisée : bilan et perspectives*, Rapport IRSN-2006/73 Rev1 - Rapport CEA-2006/474 Rev1, disponible sur www.irsn.org.

K. Mwamba, P. Piluso, D. Eyriès, C. Journeau, 2006, Self-Propagating High -Temperature Synthesis of a Nuclear Reactor Core Melt for Safety Experiments, Int. J. Self-Propagat. High-Temp. Synthesis, 15(4): 284-296.

• <u>Communications à conférences avec comité de lecture</u>

E. Landel, V. Perrin, C. Journeau, T. Rohan, Identification of series of multipoles : Application to the prediction of the far field from near field measurements, Inter-Noise, Avignon, 1988

T. Rohan, C. Journeau, Experimental Analysis of the Underwater Acoustic Nearfield of a Multi-point excitated ribbed cylinder: Application to the far-field radiated noise prediction, Undersea Defence Technologie, Londres, 1988

C. Journeau, T. Rohan, J.P. Pasqualini, Experimental Determination of Array Minimal Size for Hull far field computations from near field measurements, 13° Congrès International d'Acoustique, Belgrade, 1989

C. Journeau, G. Dessert, Time-Domain Acoustic Nearfield Analysis: Theory and Experimental Validation, 1st Int. Congress on Recent Dev. in Air and Structure borne Sound and Vib., Auburn, 1990

C. Journeau, High frequency Radiation of fluid loaded shells, InterNoise, Sydney, 1991

C. Journeau, Détection Acoustique Active de gaz dans une enceinte métallique, 2° Congrès Français d'Acoustique, suppl. C1 au J. de Physique III, vol. 2, 1992

C. Journeau, Shipboard Liquid Level Measurements, Euro. Conf. on Underwater Acoustics, Luxembourg, édité par Elsevier, 1992

C. Journeau, Time-Frequency discrimination of fluid and structure borne paths in a liquid filled elastic cylinder, Inter-Noise, Louvain, 1993

C. Journeau, Characterization of Structural Waveguides for Acoustic Monitoring of Hot Structures, 3rd Int. congress on Air- and Structure Borne Sound and Vib., Montréal, 1994

L. Oriol, C. Journeau, Active Acoustic Leak Detection in Steam Generator Units of Fast Reactors, Symp. On Reactor Noise (SMORN 7), Avignon, 1995

V. Rinejski, T.J. Ledwidge, Black, SEF. Rofe, C. Cornu, C. Journeau, KP. Scherer, P. Stiller, O.P. Singh, G.S. Srinivasan, R. Prabakar, R.K. Vyjayanthi, K. Hayashi, Y. Shinohara, K. Wanatabe, Z. Zheng, V.S. Yughay, A.V. Gribok; F.A. Kozlov, A.N. Volov, R. Currie, J. McKnight, R. Rowley, Result of the IAEA Coordinated Research Programme on Acoustic Signal Processing for Detection of Boiling or Sodium/Water Reaction in LMFRs, Symp. On Reactor Noise (SMORN 7), Avignon, 1995

G. Cognet, C. Journeau, C. Jégou, Infrared Thermography for Measuring the Surface Temperature of an Oxidic Melt, Int. Symp. on Radiative Heat Transfer, Kusadasi, 14-18/8/1995

C. Journeau, G. Cognet, J. Pierre, Visualisation d'Ecoulements d'Oxydes Réfractaires à plus de 2000°C, Congrès Français de Visualisation en Mécanique des Fluides, VISU97, St Louis, 1997

G. Cognet, G. Laffont, C. Jégou, C. Journeau, F. Sudreau, A. Roubaud, Premiers résultats sur l'étalement de mélanges d'oxydes autour de 2000°C, Congrès Français de Thermique, Marseille, 1998.

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

C. Journeau, G. De Palma, Matériaux optimisant le temps de réponse de Thermomètres plongés dans un Bain peu effusif à Haute Température, Congrès Français de Thermique, Arcachon, 1999.

C. Journeau, F. Sudreau, M. Ramacciotti, G. Cognet, Coupled Thermal and Physico-Chemical Analysis of Multicomponent Oxidic Melt Solidification, II Int Conf., Heat Transfer and Transport Phenomena in Multiphase Systems, Kielce, Pologne, 1999.

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

G. Cognet, G. Laffont, C. Journeau, C. Jégou, C. Journeau, F. Sudreau, J. Pierre, M. Ramacciotti, First findings on Corium Spreading from the VULCANO experiments, 9th Int Topical Mtg Nuclear Reactor Thermalhydraulics, NURETH 9, San Francisco, 1999.

C. Journeau, M. Ramacciotti, G. Cognet, Rheology and Microstructure of Continuously cooled semisolid materials, 6th Int. Conf. Semi-solid Processing of Alloys and Composites, Turin, 2000.

C. Journeau, P. Piluso, M. Cranga, Transferts thermiques lors de la solidification lente d'un bain fondu d'oxydes, Congrès français de Thermique, SFT 2001, Nantes 2001.

G. Jeulain, C. Journeau, L. Benyahia, J.-F. Tassin, P. Abelard, Visualisation d'un mélange de sels en cours de solidification sous cisaillement, 9° Coll. Francophone de VISUalisation et de traitements d'images en mécanique des FLUides, FLUVISU 2001, Rouen, 2001.

C. Journeau, E. Boccaccio, C. Jégou, P. Piluso, Flow and Solidification of Corium in the VULCANO facility, 5th World Conf. Experimental Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics, ExHFT-5, Thessalonique, 2001.

C. Jégou, E. Boccaccio, C. Journeau, P. Piluso, J. Monerris, Induction Heating simulation of Residual power in the VULCANO facility, Int. Seminar Heating by Internal Sources, Padua, 12-14 sept, 2001.

A. De Bremaecker, M. Barrachin, F. Jacq, F. Defoort, M. Mignanelli, P.Y. Chevalier, B. Cheynet, S. Hellmann, F. Funke, C. Journeau, P. Piluso, S. Marguet, Z. Hozer, V. Vrtilkova, L. Belovsky, L. Sannen, M. Verwerft, P.H. Duvigneaud, K. Mwamba, H. Bouchama, C. Ronneau. European Nuclear Thermodynamic Database validated and Applicable in Severe Accident Codes (ENTHALPY), Symposium FISA 2001, EU Research in Reactor Safety, Luxembourg, 12-14/11/2001, Office Publ. European Comm.

C. Journeau, Transferts thermiques à l'interface corium-substrat, Congrès Français de Thermique, SFT2002, Vittel, 3-6/6/2002, D. Maillett, C. Moyne, D. Stemmelen eds, Elsevier, Paris, 2002.

C. Journeau, C. Jégou, J. Monerris, P. Piluso, K. Frolov, Yu. B. Petrov, R. Rybka, Phase Macrosegregation during the slow solidification of prototypic corium, 10th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-10), Seoul, Korea, October 5-9, 2003.

C. Journeau, P. Piluso, L. Godin-Jacqmin, I. Ivanov, I. Mladenov, P. Grudev, S. Kalchev, H. Alsmeyer, B. Eppinger, Transnational Access to the PLINIUS Prototypic Corium Experimental Platform, Symposium FISA 2003, EU Research in Reactor Safety, Luxembourg, 10-12/11/2003.

A. De Bremaecker, M. Barrachin, F. Jacq, F. Defoort, M. Mignanelli, P.Y. Chevalier, B. Cheynet, S. Hellmann, F. Funke, C. Journeau, P. Piluso, S. Marguet, Z. Hozer, V. Vrtilkova, L. Belovsky, L. Sannen, M. Verwerft, P.-H. Duvignaud, K. Mwamba, H. Bouchama, C. Ronneau, 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.

Alsmeyer, H., Häffner, W., Journeau, C., Fischer, M., Eddi, M., Allelein, H.-J., Bürger, M., Sehgal, B.R., Koch, M.K., Alkan, Z., Petrov, J.B., Gaune-Escrad, M., Weiss, F.-P., Bandini, G., Ex-vessel Core melt Stabilization Research (ECOSTAR), Symposium FISA 2003, EU Research in Reactor Safety, Luxembourg, 10-12/11/2003

Journeau, C., Convection naturelle dans un bain de corium avec dissipation volumique de puissance, Congrès Français de Thermique, SFT2004, Giens, 25-28 mai 2004.

Journeau, C., Piluso, P., Frolov, K.N., Corium Physical Properties for Severe Accident R&D, ICAPP'04, Int Congr. Advances Nucl. Power Plants, Pittsburgh, PA, June 13-17,2004.

Petrov Y., Udalov Y., Jurek K., Sazavsky, P., Kiselova, M., Selucky P., Journeau, C., Piluso, P. Miscibility Gap Phenomena at Oxide Melting in Air at Ex-vessel Corium Simulation, In: Proc. Int. Congr. Advances nuclear Power plants (ICAPP04), Pittsburgh, June 2004.

P. Piluso, G. Trillon, C. Journeau, The UO_2 -Zr O_2 system at high temperatures : Importance of metastable phases under severe accident conditions, 11^{th} Symposium on Thermodynamics of Nuclear Materials, Karlsruhe, Allemagne, 6-9 Sept. 2004.

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

J.M. Bonnet, Y. Bullado, P. Fouquart, C. Journeau, P. Piluso, C. Sergeant, , D. Magallon, V. Moulin, KROTOS FCI Experimental Programme at CEA Cadarache, Proc. Int. Congr. Advances nuclear Power plants (ICAPP05), Seoul, Korea, 2005.

Y. Petrov, Y. Udalov, J. Subrt, P. Savazsky, M. Kiselova, P. Selucky, C. Journeau, P. Piluso, New crystallization studies of UO_2 -Zr O_2 -Fe₃ O_4 system and the presumed melting diagram, Proc. Int. Congr. Advances nuclear Power plants (ICAPP05), Seoul, Korea, 2005.

C. Journeau, J.F. Haquet, Void fraction for gas bubbling in shallow viscous pools - Application to molten core concrete interaction, 13th Int Conf Nucl. Eng., Beijing, Chine, 16-20 Mai 2005.

S. Malaval, C. Journeau, A. Smith, J.P. Bonnet, Thermal Study of a typical concrete from a nuclear power plant, 13th Int Conf Nucl. Eng., Beijing, Chine, 16-20 Mai 2005.

M. Ng Wing Tin, J.-F. Haquet, C. Journeau, Températures d'interfaces pour la convection de fluides à viscosité variable, Congrès Français de Thermique, SFT2005, Reims, juin 2005.

C. Journeau, C. Brayer, P. Piluso, Uncertainties on Thermodynamic and Physical Properties DataBases for Severe Accidents and their Consequences on Safety Calculations, OECD Workshop on Evaluation of Uncertainties in relation to Severe Accidents and Level 2 PSA, Aix en Provence, 7-9 Nov. 2005

F. Parozzi, S. Chatzidakis, T. Gelain, L. E. Herranz, E. Hinis, C. Housiadas, C. Journeau, E. Malgarida, G. Nahas, P. Piluso, W. Plumecocq, J. Vendel, investigation on aerosol transport in containment cracks, International Conference Nuclear Energy for New Europe 2005, Bled, Slovenia, September 5-8, 2005

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

C. Journeau, S. Malaval, Comportement thermique du béton d'une centrale nucléaire lors d'un accident grave, Congrès Français de Thermique, SFT2006, lle de Ré, 16-19 mai 2006.

C. Journeau, H. Alsmeyer, Validation of the COMET Bottom-Flooding Core-Catcher with Prototypic corium, Int. Congr. Advances nuclear Power plants (ICAPP06), Reno, NV, June 4-6, 2006.

L. Godin-Jacqmin, C. Journeau, P. Piluso, Analysis of the COLIMA CA-U3 test using the ELSA module of ASTEC, International Conference Nuclear Energy for New Europe 2006, Bled, Slovenia, September 18-21, 2006.

C. Journeau, P. Piluso, J.-F. Haquet, S. Saretta, E. Boccaccio, J.-M. Bonnet, Oxide-Metal corium - concrete interaction test in the VULCANO facility, ICAPP'07, Int Conf. Advances nucl. Power Plants ICAPP07, Nice, May 13-18, 2007.

P. Piluso, K. Mwamba, C. Journeau, 2007, Thermitic melting of prototypic corium at the PLINIUS Platform, Proceedings ICAPP 2007, Nice, France.

L. Carenini, J.F. Haquet, C. Journeau, 2007, Crust Formation and Dissolution during Corium Concrete Interaction, Int Conf. Advances nucl. Power Plants ICAPP07, Nice, May 13-18, 2007.

C. Journeau, P. Piluso, J.F. Haquet, L. Brissonneau, V. Aubert-Saldo, "Behaviour of nuclear reactor pit concretes under severe accident conditions", Proc. CONSEC '07, Concrete under Severe Conditions, Tours, France (2007).

• <u>Communications à conférences sans comité de lecture</u>

C. Journeau, M.A. Hamdi, A. Ramdane, Sound transmission at the sodium/shell interface modelisation and recommendation for SG leak monitoring, Proceedings of the IAEA IWGFR specialists' meeting on acoustic/ultrasonic detection of in sodium water leaks on steam generators, held in Aix-en-Provence, France, 1-3 October 1990. p.p. 195-206.

J.P. Girard, P. Garnaud, C. Journeau, R. Demarais, A feasibility study on active ultrasonic techniques for water into sodium leak detection on FBR steam generator units, Proceedings of the IAEA IWGFR specialists' meeting on acoustic/ultrasonic detection of in sodium water leaks on steam generators, held in Aix-en-Provence, France, 1-3 October 1990. p.p. 195-206.

C. Journeau, Visible Light Bichromatic Thermography, IEEE Int. Wkshp on Emergent Techno. for Instr. and Meas. ETIM96, Côme, 1996

C. Journeau, J. Pierre, J.C. Michaud, G. Cognet, Mesures Thermiques appliquées à des coulées d'oxydes réfractaires, 7° Journées Internationales de Thermique, Marseille, 1997

G. Cognet, G. Laffont, C. Jégou, C. Journeau, F. Sudreau, J. Pierre, M. Ramacciotti, The VULCANO Spreading Programme, SARJ 98 Workshop on Severe Accident Research held in Japan, Tokyo, November 1998

G. Cognet, G. Laffont, C. Journeau, C. Journeau, F. Sudreau, J. Pierre, M. Ramacciotti, M. Cranga, Dry corium experiments and analyses, 7th Int Conf. Nucl. Eng., ICONE 7, Tokyo, Apr. 19-23, 1999.

R. Gal, C. Journeau, Safety and Reliability of a prototypic-corium fuel-coolant interaction facility, 8th Int Conf. Nucl. Eng., ICONE 8, Baltimore, MD, Apr. 2-6, 2000.

C. Journeau, P. Piluso, G. Cognet, D. Magallon, J.-M. Seiler, Importance of Prototypic-Corium Experiments for Severe Accident Research, 9th Int Conf. Nucl. Eng., ICONE 9, Nice, 2001.

G. Jeulain, C. Journeau, L. Benyahia, J.F. Tassin, P. Abélard, Rhéologie de mélanges en cours de solidification, 36° colloque du Groupe Français de Rhéologie, ENPC, 10-12 oct. 2001.

C. Journeau, E. Boccaccio, P. Fouquart, C. Jégou, P. Piluso, Corium spreading over concrete: The VULCANO VE-U7 and VE-U8 tests, 10th Int Conf. Nucl. Eng., ICONE 10, Arlington, VA, 2002.

P. Piluso, C. Journeau, E. Boccaccio, J.-M. Bonnet, P. Fouquart, J.-F. Haquet, C. Jégou, D. Magallon, Corium Behaviour Research at CEA Cadarache: The PLINIUS prototypic corium experimental platform; International Conference Nuclear Energy for New Europe 2002, Kranjska Gora, Slovenia, September 9-12, 2002

C. Journeau, Convection Naturelle dans un bain de corium avec dissipation volumique de puissance, Congrès Français de Thermique, SFT2004, Giens, 25-28 mai 2004

M. Fischer, S. Hellmann, J.M. Bonnet, C. Journeau, B. Tourniaire, J.M. Seiler, H. Alsmeyer, M. Bürger, S. Park, 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, France, 14-16 November 2005.

C. Journeau, "PLINIUS" Transnational Access to the corium research infrastructure, FISA 2006, EU Research and Training in Reactor Systems, Luxembourg, 13-16 mars 2006.

C. Journeau, Emissivity estimations for the pyrometric measurement of high-temperature oxidic molten-pool surface temperature, Int. Wkshp Thermo-physical Properties of Materials, Paris, 16-17 Oct. 2006.

C. Journeau, M. Steinbrück, G. Repetto, C. Duriez, W.M. Ma, V. Koundy, M. Bürger, B. Spindler, J.M. Bonnet, Achievements and status of research activities in the Corium area, 2nd European review Meeting on Severe Accidnet Research, ERMSAR-2007, Karlsruhe, Allemagne, Juin 2007.

• Communications orales

T. Rohan, C. Journeau, Exploitation du champ acoustique proche d'une coque immergée pour la caractérisation du champ lointain rayonné, Journées Scientifiques de l'ASTE, Paris, 1988

C. Journeau, T. Rohan, F. Pellegrini, Farfield Criteria for vibrating structures : Numerical simulations on plates and cylinders, 115th Meeting of the Acoust. Soc. Am;, Seattle, résumé publié dans J. Acoust. Soc. Am., 83, p. S107, 1988

C. Journeau, G. Cognet, J. Pierre, Remote Sensing the VULCANO artificial lava spreading facility, Congrès de Volcanologie IAVCEI, Puerto Vallarta, 1997

C. Journeau, M. Ramacciotti, G. Cognet, Rheology and Microstructure of solidifying Suspensions, 71st Ann. Mtg. Society Rheology, Madison, WI, 17-21 Oct. 1999

C. Journeau, M. Ramacciotti, Eric Richardson, Gérard Cognet, Viscosity of silicate Melts, Eighth International Symposium on Experimental Mineralogy, Petrology and Geochemistry, Bergamo 16-19 April 2000

C. Journeau, Rhéologie d'oxydes fondus à hautes températures, 1° séminaire Mécanique des Fluides à Hautes Températures, Aix en Provence, 20-22 nov. 2002.

C. Journeau, Etalement de fluides en cours de solidification, 1° séminaire Mécanique des Fluides à Hautes Températures, Aix en Provence, 20-22 nov. 2002.

C. Journeau, P. Piluso, Thermodynalic Analysis of the Fission Product Aerosols Released over a corium pool, International Information Exchange Meeting on Thermodynamics of Nuclear Fuels, Saclay, 27 Nov. 1^{er} Dec 2006.

C. Journeau, V. Aubert-Saldo, E. Boccaccio, P. Correggio J-M. Bonnet, P. Fouquart, J. Monerris, K. Mwamba, P. Piluso, Moyens de chauffage pour la recherché expérimentale sur les accidents de fusion du coeur de réacteurs nucléaires, Colloque Matériaux, Fluides, Hautes Températures, MFHT-2, Odeillo, mars 2007.

C. Journeau, V. Aubert-Saldo, E. Boccaccio, M. Breton, L. Carenini, J-M. Bonnet, J.F. Haquet, J. Monerris, P. Piluso, Etude expérimentale de l'interaction entre le corium et le béton du puits de cuve des centrales nucléaires Colloque Matériaux, Fluides, Hautes Températures, MFHT-2, Odeillo, mars 2007.

Brevet

C. Journeau, F. Thomann, Procédé et Dispositif de Détection et de Localisation de Fuite de Gaz d'une Enceinte de Confinement à Double Paroi, Brevet Européen n° FR 93 12939, 1993

<u>Résumé</u>

La plate-forme expérimentale PLINIUS du CEA Cadarache est dédiée à l'étude expérimentale des accidents graves de réacteurs nucléaires en réalisant des essais entre 2000 et 3500 K avec du corium prototypique. Le corium est le mélange issu d'une hypothétique fusion du cœur et de son mélange avec les matériaux de structure. Le corium prototypique a la même composition chimique que le corium envisagé pour un scénario d'accident grave mais une composition isotopique différente(utilisation d'uranium appauvri,...). Des programmes de recherches et des campagnes d'essais ont eu pour thème les propriétés physiques du corium, le comportement des produits de fission, l'étalement du corium, sa solidification et son interaction avec le béton, ainsi que sa refroidissabilité. Ils ont servi de cadre a la formation par la recherche de nombreux étudiants. Ces travaux ont été réalisés dans le cadre de collaborations nationales, européennes et internationales.

<u>Abstract</u>

The PLINIUS experimental platform at CEA Cadarache is dedicated to the experimental study of nuclear reactor severe accidents thanks to experiments between 2000 and 3500 K with prototypic corium. Corium is the mixture that would be formed by an hypothetical core melting and its mixing with structural materials. Prototypical corium has the same chemical composition as the corium corresponding to a given accident scenario but has a different isotopic composition (use of depleted uranium, ...). Research programs and test series have been performed to study corium thermophysical properties, fission product behaviour, corium spreading, solidification and interaction with concrete as well as its coolability. It was the frame of research training of many students and was realized within national, European and international collaborations.