



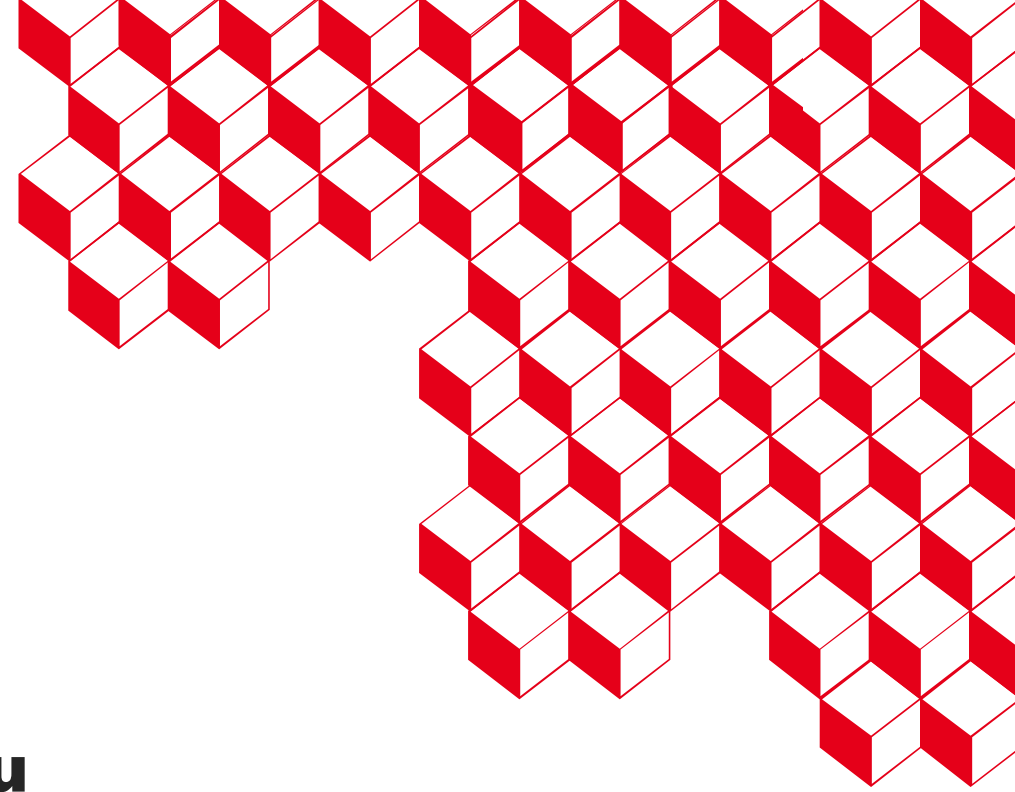
iresne



# **Tension Interfaciale / densité HT - Caractérisation de fondus oxydes et/ou métalliques à haute température**

Jules DELACROIX

CEA/DES/IRESENE/DTN/SMTA/LEAG



# Contenu de la présentation

## 1. Contexte

Caractérisation des systèmes nucléaires  
Des Accidents Graves (AG) et du corium  
Méthodologie générale  
Etat de l'art des données et techniques  
Applications aux systèmes d'intérêt

## 2. Des oxydes liquides

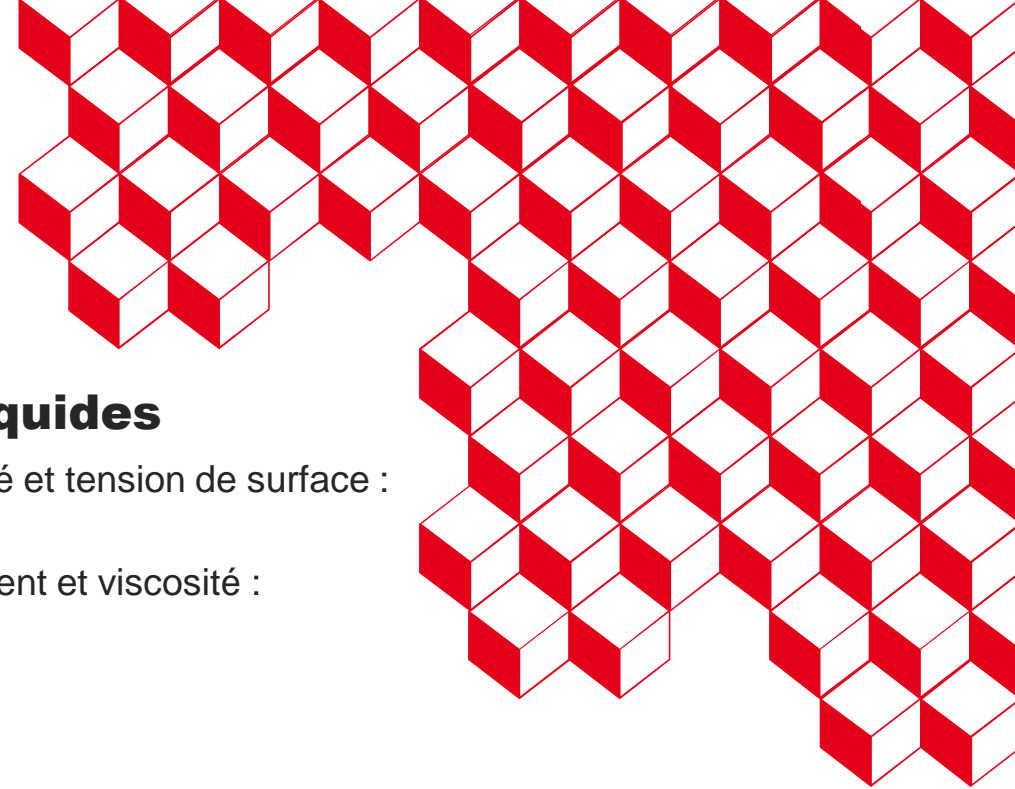
Etalement et transitions de phase: VITI-VPA  
Tension de surface et stoechiométrie (corium en cuve) ou dopage (hors-cuve): VITI-MBP

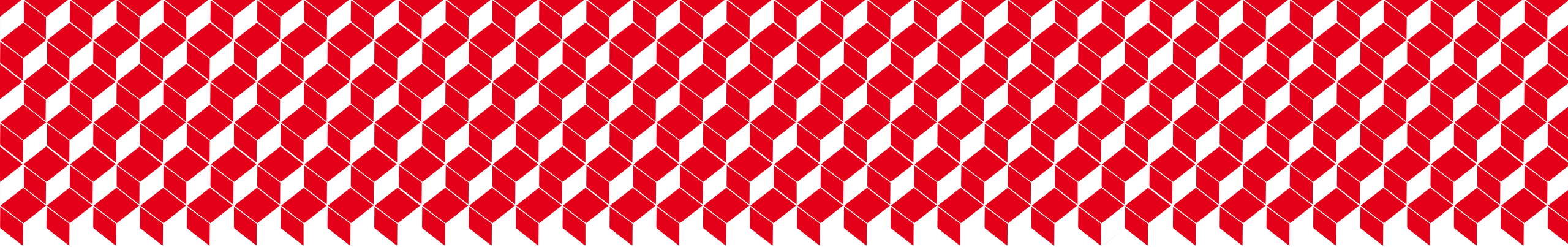
## 3. Des métaux liquides

Aciers de cuve, densité et tension de surface :  
VITI-SD et VITI-MBP  
Métaux purs, écoulement et viscosité :  
VITI-TPV

## 4. Conclusion et perspectives

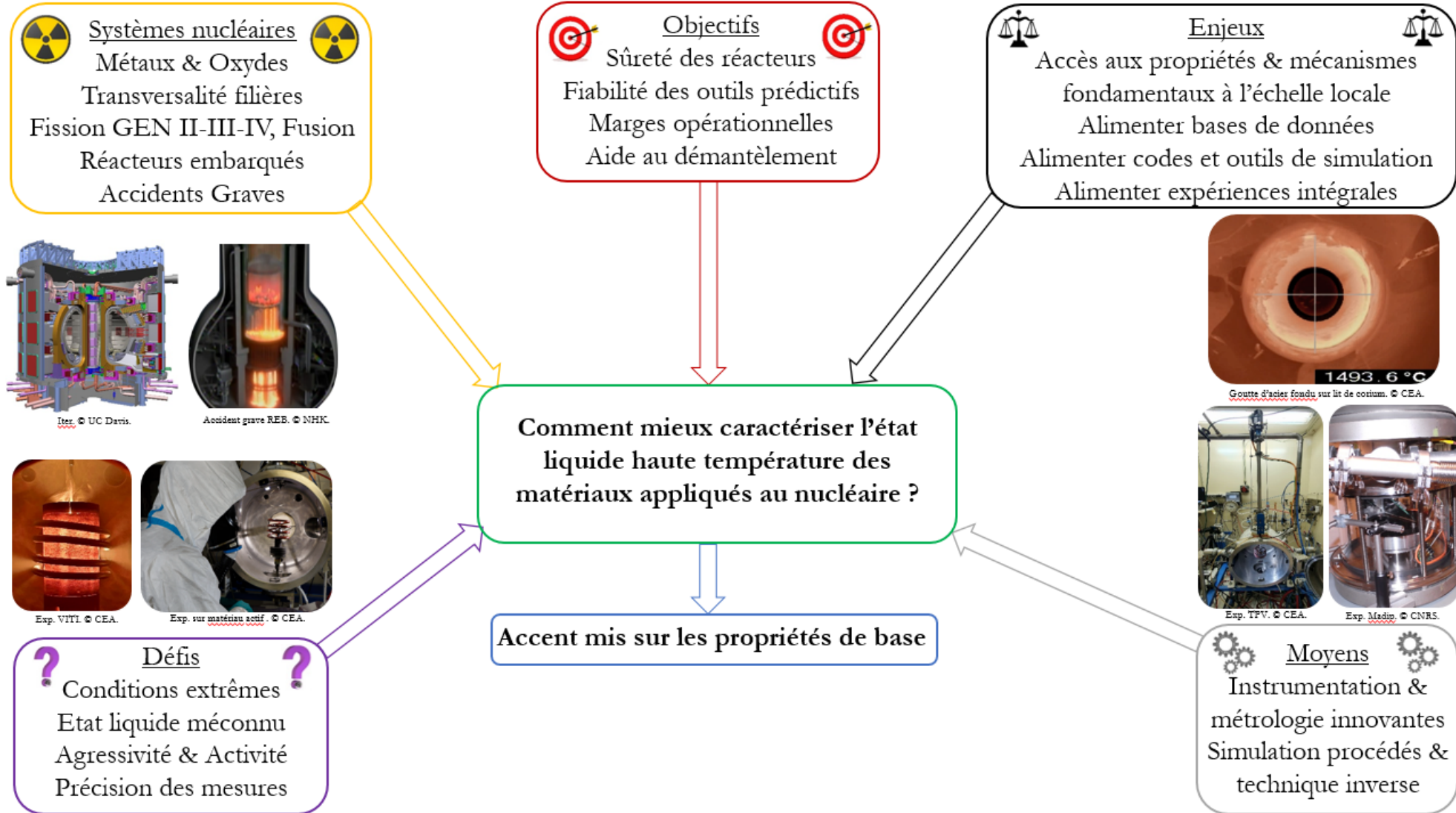
Expérience VITI: bilan et possibilités  
Les défis de l'adaptation au verre  
Perspectives générales  
Conclusion sur la caractérisation des systèmes nucléaires





# 1 ■ Contexte

# Caractérisation des systèmes nucléaires



# Des Accidents Graves (AG) et du corium

## Différents types d'accidents

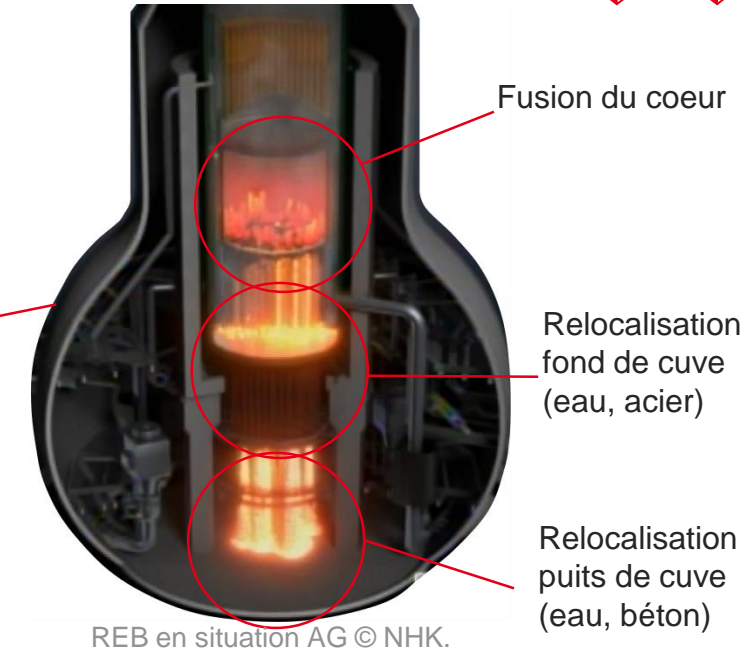
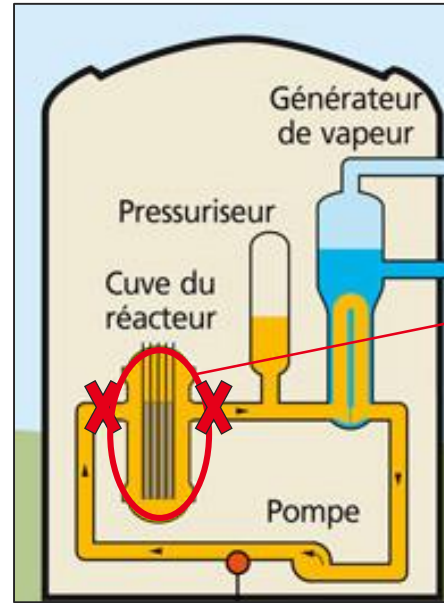
- Accidents de réactivité, accidents liés au caloporteur.
- Accidents historiques: TMI-2 (1979), Tchernobyl (1986), Fukushima (2011),
- Fusion du cœur du réacteur et formation du corium.

## Corium = « magma »

- Multiéléments (U, Zr, Fe, O, Cs, Y, I, Al, Si,...),
- Multiphasiques : mélange liquide/solide oxyde/métal,
- Corrosif, haute température.

## Lien verre

- Compositions complexe.
- Problématiques hors-équilibre (MCCI, dopage en Si).
- Bains, stratification, démixtion.
- Rhéologie (comportement « pâteux »).
- Manque de données pour l'état liquide haute température.



REB en situation AG © NHK.



Étalement de corium liquide sur un substrat.



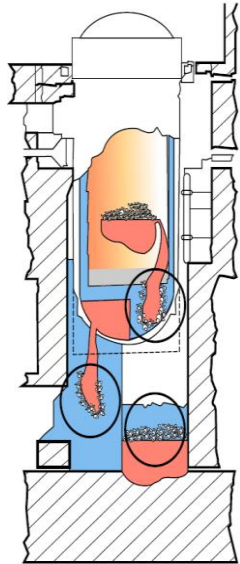
Accidents de Fukushima.



# Des Accidents Graves (AG) et du corium

Interaction Corium Eau *Fuel-Coolant interaction* (FCI):

- Corium fragmentation
- Shockwave, steam explosion
- Loss of confinement
- Dimensionless groups involved :  $We$  and  $Oh$



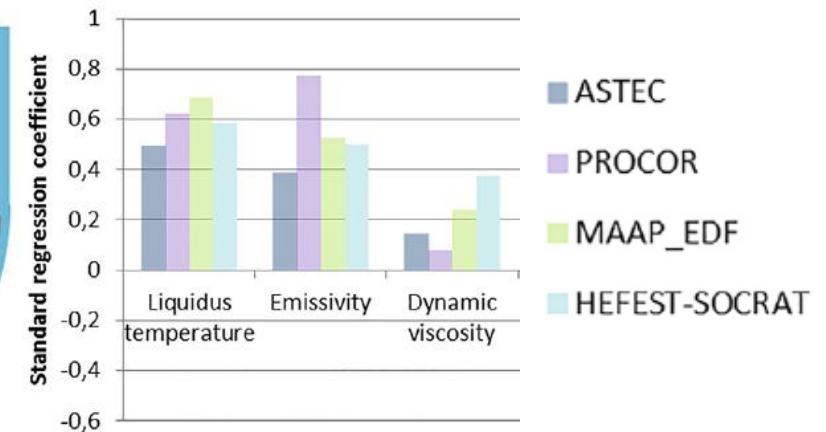
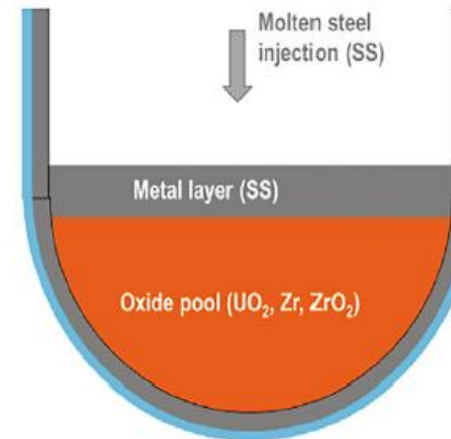
$$We = \frac{\rho v^2 D}{\sigma}$$

$$Oh = \frac{\eta}{\sqrt{\rho D \sigma}}$$

Bal Raj, Sehgal, éd. 2012. *Nuclear safety in light water reactors - Severe accident phenomenology*. Elsevier

Rétention en cuve *In-Vessel Retention* (IVR):

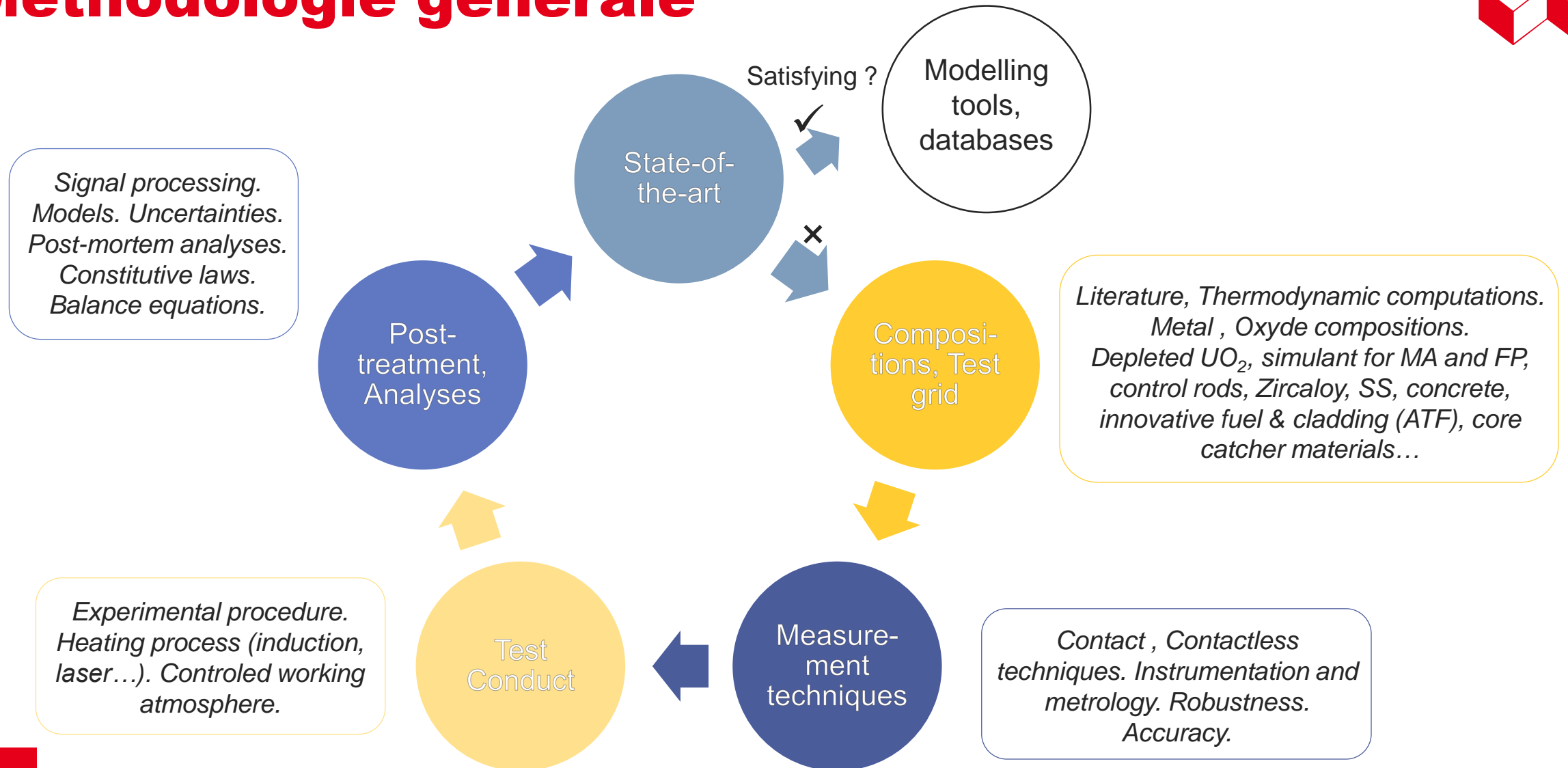
- Corium layer stratification: metal and oxide layers
- Heat flux focusing effect by metal layer
- Involved properties and SA codes benchmark



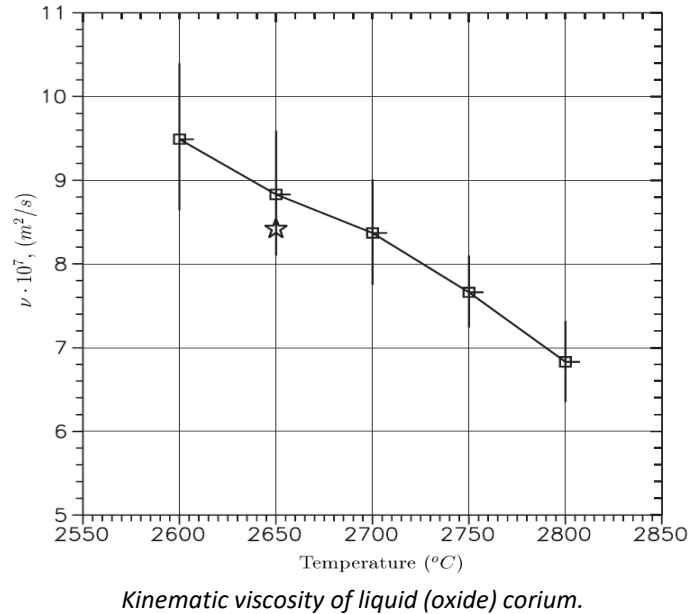
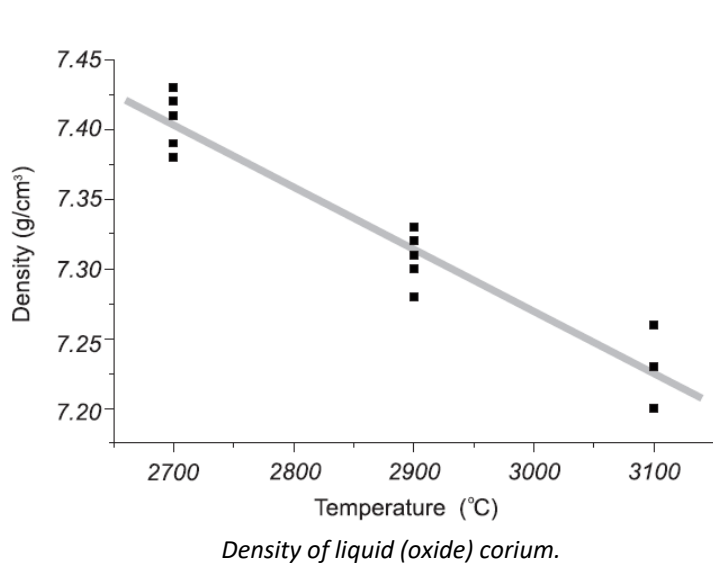
Carénini, L., et al. 2020. « Main outcomes from the IVR code benchmark performed in the European IVMR project ». *Annals of Nuclear Energy* 146 (octobre): 107612.

- Nécessité d'accéder aux transitions de phase, à la masse volumique  $\rho$ , la tension de surface  $\sigma$  et la viscosité dynamique  $\eta$  pour différentes compositions de corium, à différentes températures.

# Méthodologie générale



# Etat de l'art des données et techniques



Composition	Temperature, t (°C)	Surface tension, $\sigma$ (mJ/m²)
C-22	2600-2630	668 (100)
C-22	2585-2630	750 (117)
C-32	2450-2600	510 (135)
C-32	2450-2600	593 (127)
C-32	2470-2580	663(63)
C-100	2685-2700	573 (150)

Surface tension of various corium compositions.

Référence bibliographique principale : Programme expérimental Rasplav\*

- Principalement sur compositions en cuve.
- Principalement au liquidus.
- Incertitudes élevées (> 15%), mesures parfois contradictoires.
- Banc d'essais non opérationnel aujourd'hui.
- **Besoin de mesures originales, explorations de nouvelles zones du diagramme composition/températures.**



\* OCDE/CSNI/NEA RASPLAV: Rasplav final report, Behaviour of the corium molten pool under external cooling, 2000.



# Etat de l'art des données et techniques

## A base de gouttes

Technique	Avantages	Inconvénients
Gas-Film Levitation (GFL)	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Contactless.</li> <li>• Small samples.</li> <li>• High temperature compatibility.</li> <li>• Possible simultaneous access to density, viscosity, surface tension.</li> <li>• Satisfying accuracy for density and surface tension.</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Vaporization issues.</li> <li>• Instability due to phase changes                             <ul style="list-style-type: none"> <li>• Gas shearing.</li> </ul> </li> <li>• Poor accuracy for viscosity.                             <ul style="list-style-type: none"> <li>• Interface pollution.</li> </ul> </li> </ul>
Sessile Droplet (SD)	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Small samples.</li> <li>• High temperature compatibility.</li> <li>• Possible access to both density and surface tension.</li> <li>• Satisfying accuracy.</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Contact method.</li> <li>• Vaporization issues.</li> <li>• Interface pollution.</li> <li>• No viscosity.</li> </ul>
ElectroMagnetic Levitation (EML) / Electrostatic Levitation (ESL)	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Contactless.</li> <li>• Small samples.</li> <li>• High temperature compatibility.</li> <li>• Fast heating (laser).</li> <li>• Possible simultaneous access to density, viscosity, surface tension.</li> <li>• Satisfying accuracy.</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Impact of EM fields.</li> <li>• Vaporization issues.</li> <li>• Interface pollution.</li> <li>• Metallic compositions.</li> <li>• Temperature gradients (laser).</li> </ul>
Aerodynamic Levitation (ADL)	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Contactless.</li> <li>• Small samples.</li> <li>• High temperature compatibility.</li> <li>• Fast heating (laser).</li> <li>• Possible simultaneous access to density, viscosity, surface tension.</li> <li>• Satisfying accuracy for density.</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Vaporization issues.</li> <li>• Interface pollution.</li> <li>• Metallic compositions.</li> <li>• Temperature gradients (laser).</li> <li>• Difficulty to measure properly surface tension.</li> </ul>

## Autres

Technique	Advantages	Drawbacks
Maximum Bubble Pressure (MBP)	<ul style="list-style-type: none"> <li>• High temperature compatibility.</li> <li>• Tolerance to vaporization.</li> <li>• Tolerance to interface pollution (generation of new interface).</li> <li>• Satisfying accuracy for surface tension.                             <ul style="list-style-type: none"> <li>• Corium-proof (Rasplav).</li> <li>• Possible access to density.</li> </ul> </li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Contact method.</li> <li>• Large uncertainty for density, no viscosity.                             <ul style="list-style-type: none"> <li>• Temperature gradients at sample scale.</li> </ul> </li> <li>• No visual access to the sample</li> </ul>
Torsional Pendulum Viscometer (TPV)	<ul style="list-style-type: none"> <li>• High temperature compatibility.</li> <li>• Tolerance to vaporization.</li> <li>• Satisfying accuracy for viscosity.                             <ul style="list-style-type: none"> <li>• Corium-proof (Rasplav).</li> </ul> </li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Contact method.</li> <li>• No density, no surface tension.</li> <li>• Temperature gradients at sample scale.</li> <li>• No visual access to the sample</li> </ul>
Vibrating Finger Viscometer (VFV)	<ul style="list-style-type: none"> <li>• High temperature compatibility.</li> <li>• Tolerance to vaporization.</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Contact method.</li> <li>• No density, no surface tension.</li> <li>• Temperature gradients at sample scale.</li> <li>• No visual access to the sample                             <ul style="list-style-type: none"> <li>• Poor accuracy</li> <li>• Feasibility for oxides?</li> </ul> </li> </ul>
Resistive Pulse Heating (RPH)	<ul style="list-style-type: none"> <li>• High temperature compatibility.</li> <li>• Tolerance to vaporization.                             <ul style="list-style-type: none"> <li>• Contactless method</li> </ul> </li> <li>• Multi-properties measurements</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Only metals.</li> <li>• Poor accuracy (WFL law).</li> <li>• No viscosity, no surface tension</li> </ul>

- Robustesse (vaporisation haute température) vs précision/pollution ?
- Cf. présentation précédente de Louis Hennet pour plus de détails.
- Méthodes disponibles au CEA : VPA, SD, MBP, TPV, GFL, ADL (exp. ATTILHA, CEA Saclay).
- **Focus: analyse visuelle polythermique, goutte sessile, pression maximale de bulle, pendule à torsion.**

# Application aux systèmes d'intérêt

## Oxydes liquides

- Combustible oxyde fondu. Béton. Oxydation des gaines et des internes de la cuve.
  - Compositions **prototypiques (uranium appauvri, substituants pour actinides mineurs et produits de fissions)**.
  - Défis: très hautes températures (>2500°C), activité.
  - Dispositifs introduits: analyse visuelle polythermique (VPA), pression maximale de bulle (MBP).
- **Expérience VITI de la plateforme AG PLINIUS, CEA Cadarache.**

## Métaux liquides

- Aciers de cuve et du primaire. Bain stratifié. Applications sidérurgiques et stratégiques.
- Aciers, super-alliages, métaux purs.
- Défis: agressivité physico-chimique, oxydation.
- Dispositifs introduits: goutte sessile (SD), pression maximale de bulle (MBP), viscosimètre à torsion (TPV).



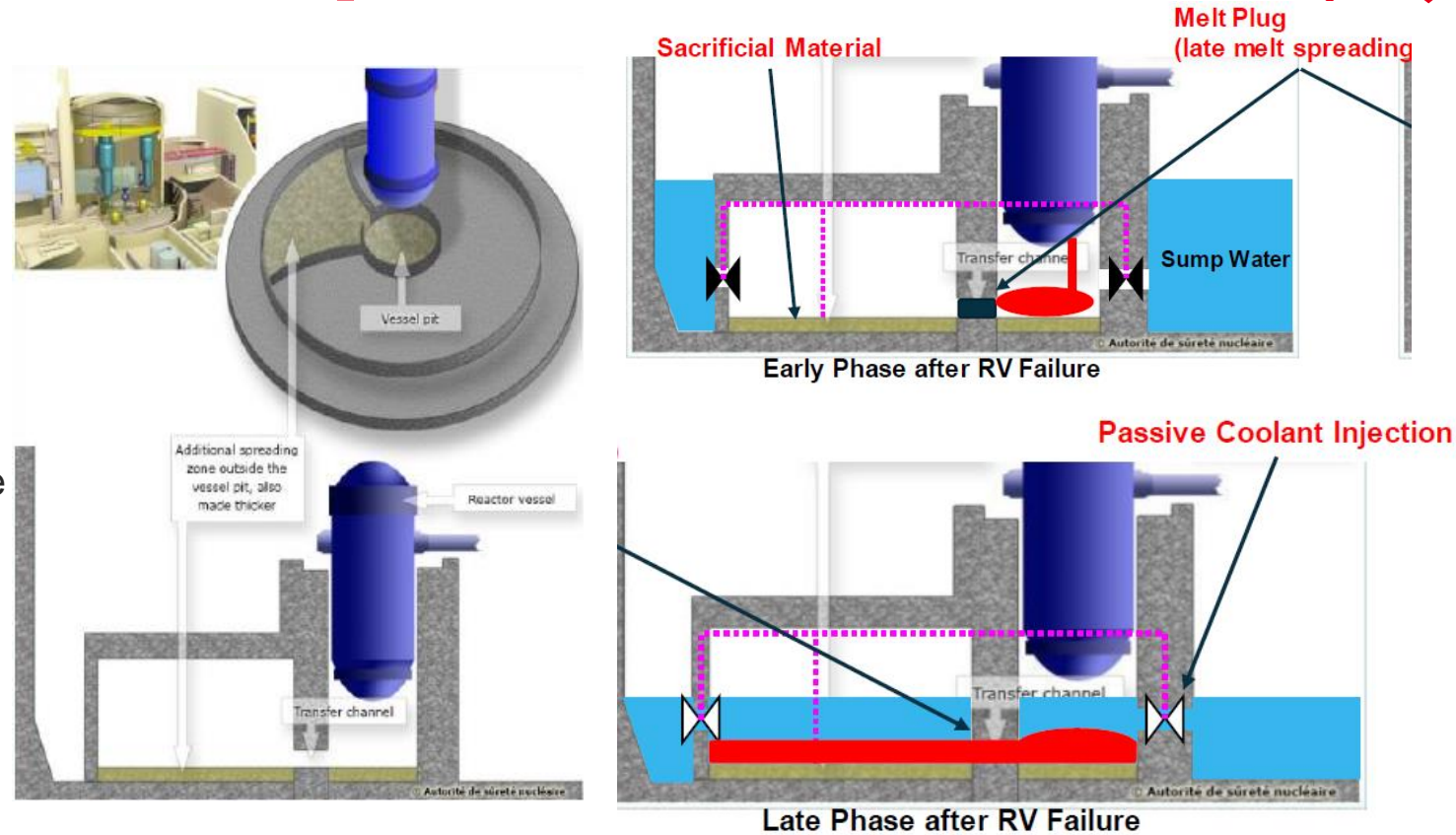


# 2 ■ Des oxydes liquides

# Étalement et transition de phase: VITI-VPA

## Stratégie d'étalement

- *Core-catcher* (chambre d'étalement), amélioration des transferts et renoyage.
- Promouvoir l'étalement = conserver l'état liquide le plus longtemps + jouer sur les propriétés.
- Utilisation d'un matériau sacrificiel pour « doper » le corium en éléments allant dans ce sens.
- REX post-Fukushima: ex de Fessenheim ci-contre, projet conjoint MHI-CEA de développement et caractérisation d'un nouveau matériau sacrificiel pour redémarrage REP japonais.



REX AG post-Fukushima et adaption pour Fessenheim.

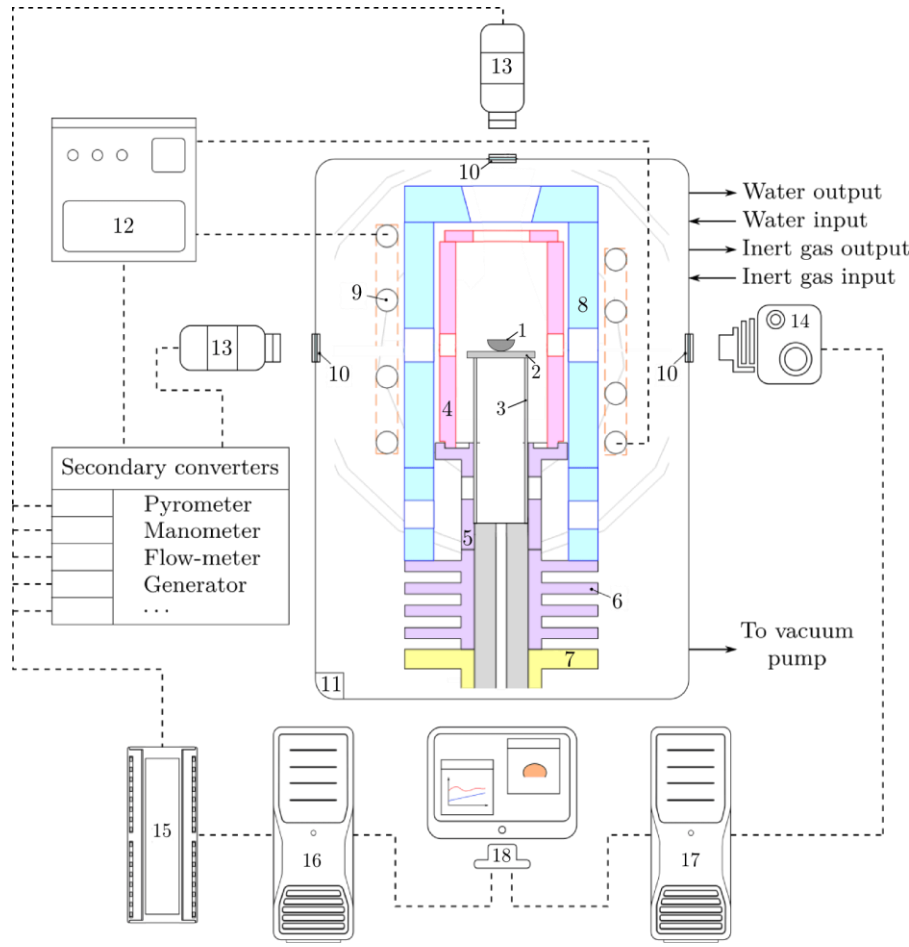
## ➤ Focus sur les températures de solidus/liquidus: VITI-VPA.

# Etalement et transition de phase: VITI-VPA

## Configuration expérimentale

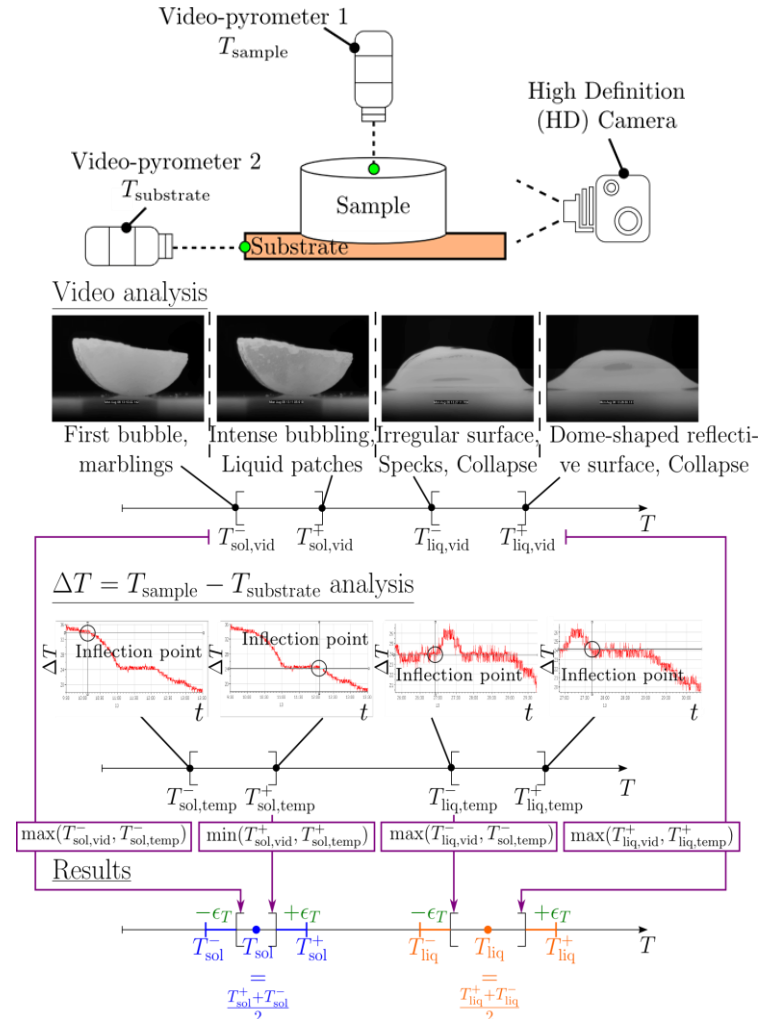
### ■ Légende

- 1: Sample
- 2: Substrate
- 3: Substrate holder
- 4: Susceptor
- 5: Support
- 6: Fans
- 7: Global support
- 8: Thermal shield
- 9: Inductor
- 10: Windows
- 11: Vessel
- 12: Generator
- 13: Videopyrometers
- 14: UHD camera
- 15: Data bus
- 16: Data PC
- 17: Imaging PC
- 18: Monitoring



VITI-VPA: configuration.

### ■ Principe\*



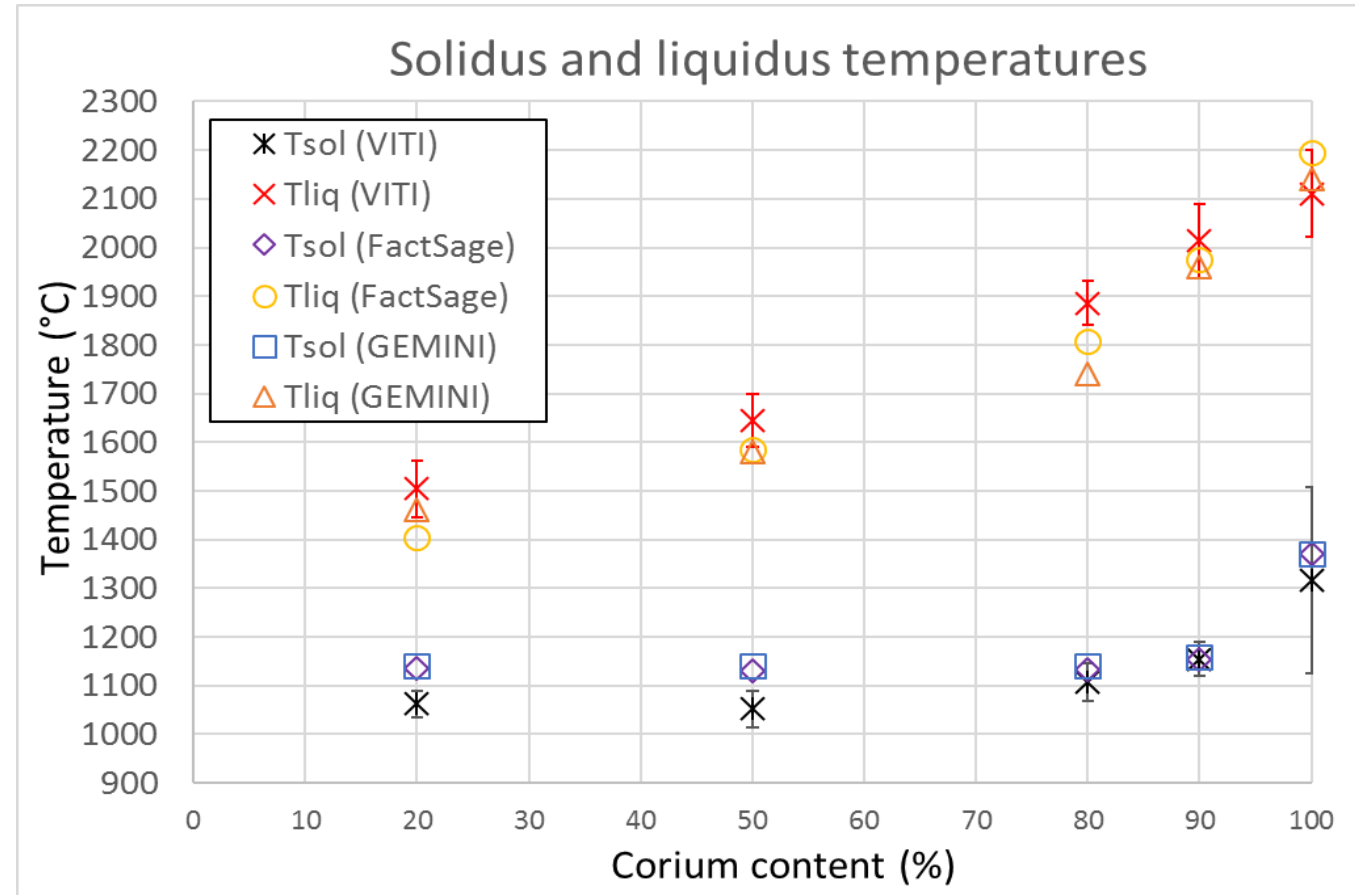


# Étalement et transition de phase: VITI-VPA

## Résultats

- Grille d'essais de 5 mélanges corium/matériau sacrificiel.
- Obtention de données originales\* concernant les solidus/liquidus de compositions hors-cuve.
- Incertitudes limitées en moyenne à 5%.
- L'ajout du matériau sacrificiel promet significativement l'étalement par abaissement des liquidus.
- Bon accord calculs thermodynamiques/mesures.

## ➤ Mesures solidus/liquidus opérationnelles pour les oxydes.



Evolution des températures de solidus/liquidus en fonction de la fraction de corium dans l'échantillon : données et calculs thermodynamiques.

\*Delacroix J., Chikhi, N., Fouquart, P., Journeau, C., Tatsahura, K., Tsukamoto, T., Toda, T., Kamohara, S., 2019. Solidus and liquidus temperatures of corium-sacrificial material mixtures: experimental results and thermodynamic calculations, In: Proceedings of FDR2019, International Topical Workshop on Fukushima Decommissioning Research, J-Village, Naraha, Japan, May 24-26, 2019



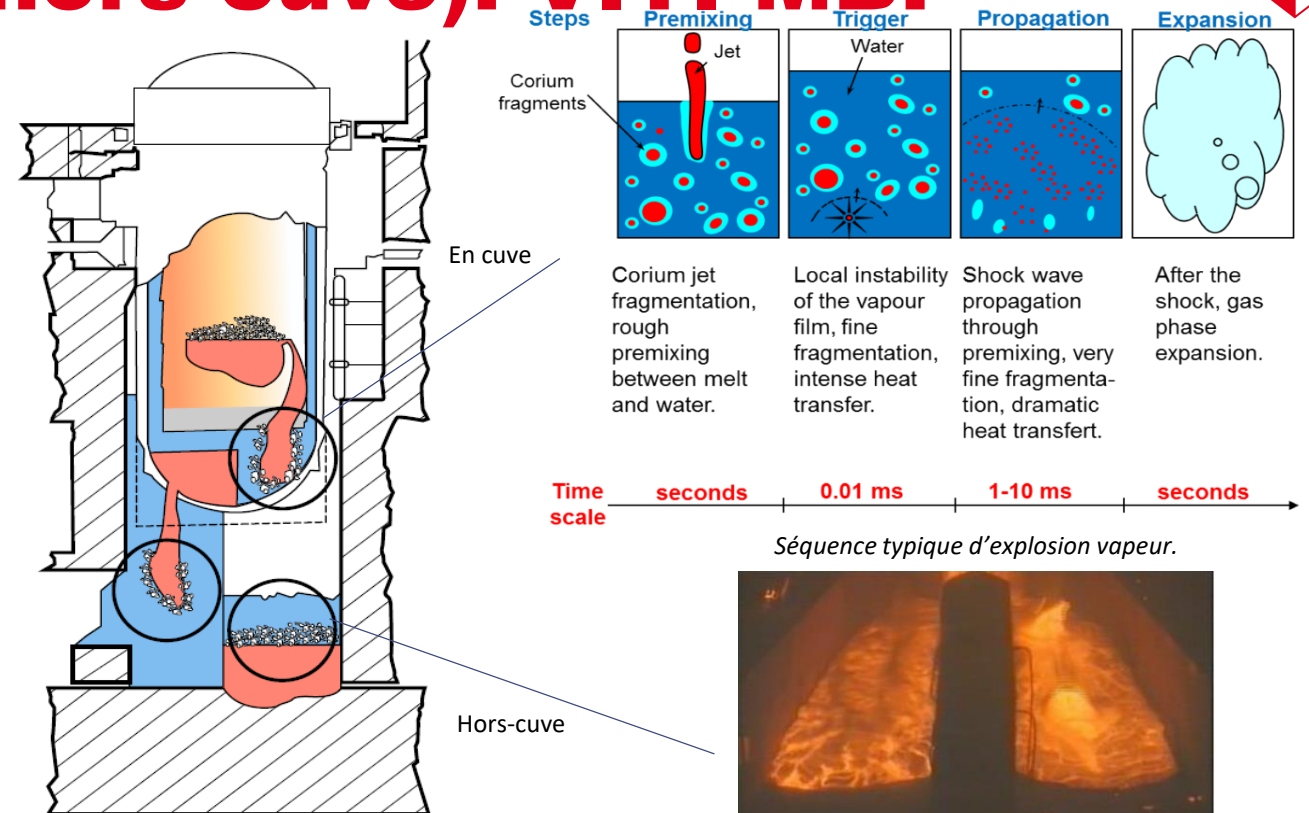
# Tension de surface et stoechiométrie (en cuve) ou dopage (hors-cuve): VITI-MBP

## En cuve: fragmentation

- Explosion vapeur procède de la fragmentation fine du corium relocalisé en fond de cuve.
- Chargement mécanique > Dimensionnement ?
- Fragmentation pilotée par la tension de surface.
- Influence méconnue de la stœchiométrie (notamment fraction de Zr métal).

## Hors-cuve: Interaction Corium Béton, Etalement

- Fin d'étalement liée à plusieurs conditions.
- Une possible conditions d'arrêt: bourrelet du front de coulée, conditionnée par tension de surface.
- Influence de l'incorporation plus ou moins grande de matériau sacrificiel / de béton.



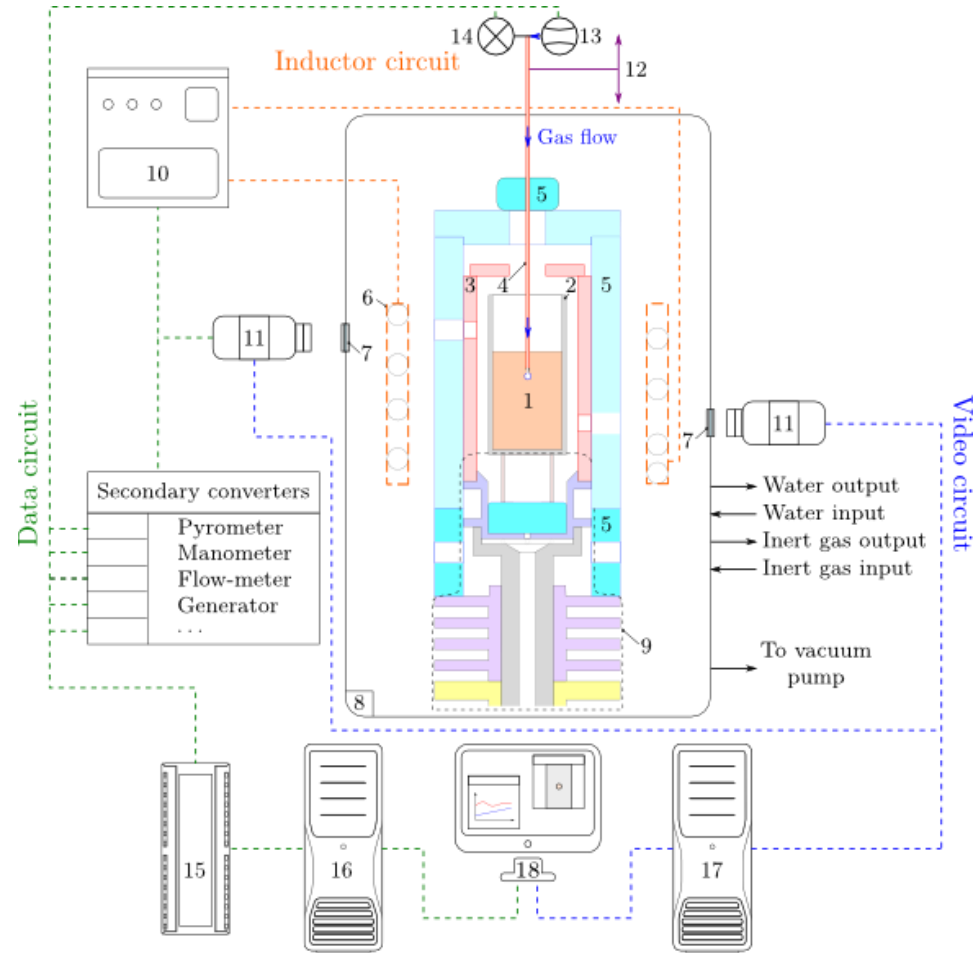
➤ Focus sur les mesures de tension de surface en milieu oxyde liquide haute température: VITI-MBP.

# Tension de surface et stoechiométrie (en cuve) ou dopage (hors-cuve): VITI-MBP

Configuration expérimentale

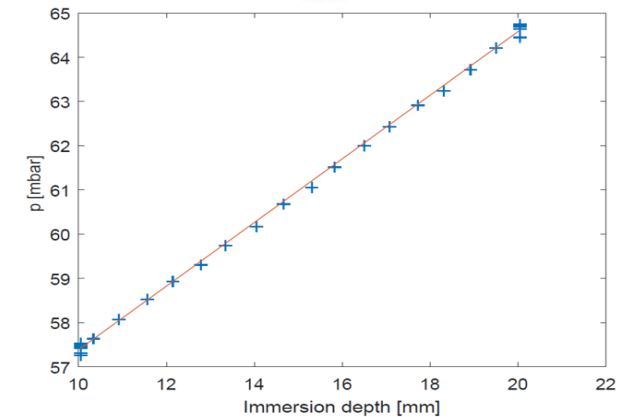
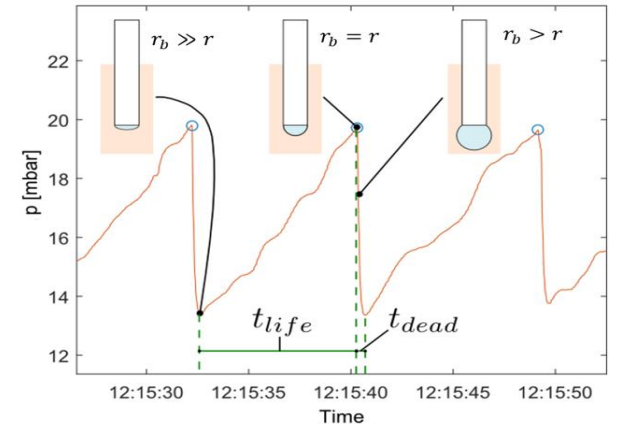
## ■ Légende

- 1: pool
- 2: crucible
- 3: susceptor
- 4: capillary tube
- 5: thermal shield
- 6: inductor
- 7: windows
- 8: vessel
- 9: general support
- 10: generator
- 11: pyrometers
- 12:  $\mu$ -translation stage
- 13:  $\mu$ -flowmeter
- 14:  $\mu$ -pressure sensor
- 15: data bus
- 16: acquisition PC
- 17: imaging PC
- 18: monitoring



VITI-MBP: configuration.

## ■ Principe



Equilibre de Young-Laplace:  $p = \frac{2\sigma}{r} + \rho gh$ .

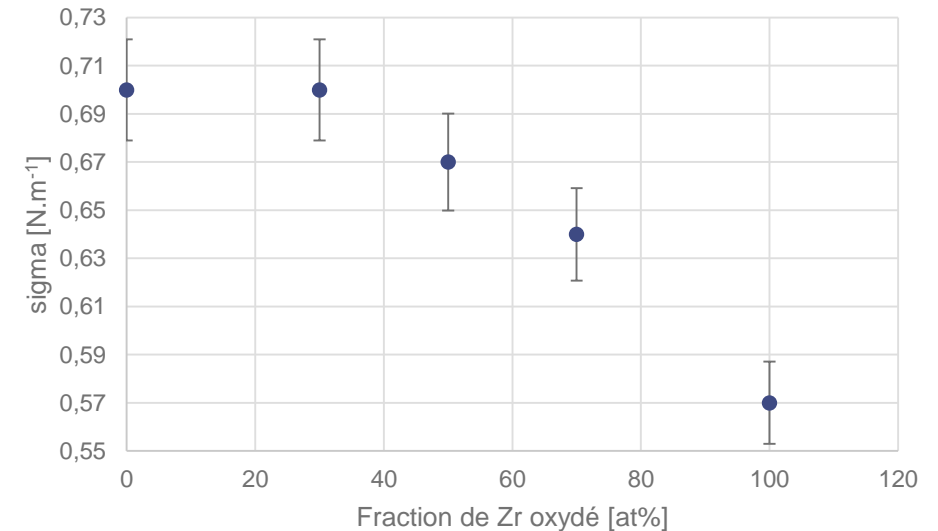
# Tension de surface et stoechiométrie (en cuve) ou dopage (hors-cuve): VITI-MBP

## Résultats en cuve

- Corium en cuve U-Zr-O, rapport molaire REP U/Zr=1,2.
- Différents degrés d'oxydation du zirconium, de C0 (Zr métal) à C100 (ZrO<sub>2</sub>).
- Plus on tend vers l'oxyde, plus la tension de surface s'abaisse: effet « surfactant » de l'oxygène).
- Incertitudes autour des 3%.
- Mesures originales obtenues dans le cadre de la thèse de C. Denier, complétant RASPLAV pour les compositions en cuve.

	Liquidus TAF-ID v11 (°C)	Liquidus NUCLEA 2020 (°C)
C0 : U <sub>0,55</sub> Zr <sub>0,45</sub> O <sub>1,10</sub>	2296 °C (deux liquides jusqu'à 2825 °C)	2322 °C (deux liquides jusqu'à 2673 °C)
C30 : U <sub>0,55</sub> Zr <sub>0,45</sub> O <sub>1,37</sub>	2283 °C	2370 °C
C50 : U <sub>0,55</sub> Zr <sub>0,45</sub> O <sub>1,55</sub>	2414 °C	2449 °C
C70 : U <sub>0,55</sub> Zr <sub>0,45</sub> O <sub>1,73</sub>	2532 °C	2505 °C
C100 : U <sub>0,55</sub> Zr <sub>0,45</sub> O <sub>2</sub>	2533 °C	2524 °C

Grille d'essais.



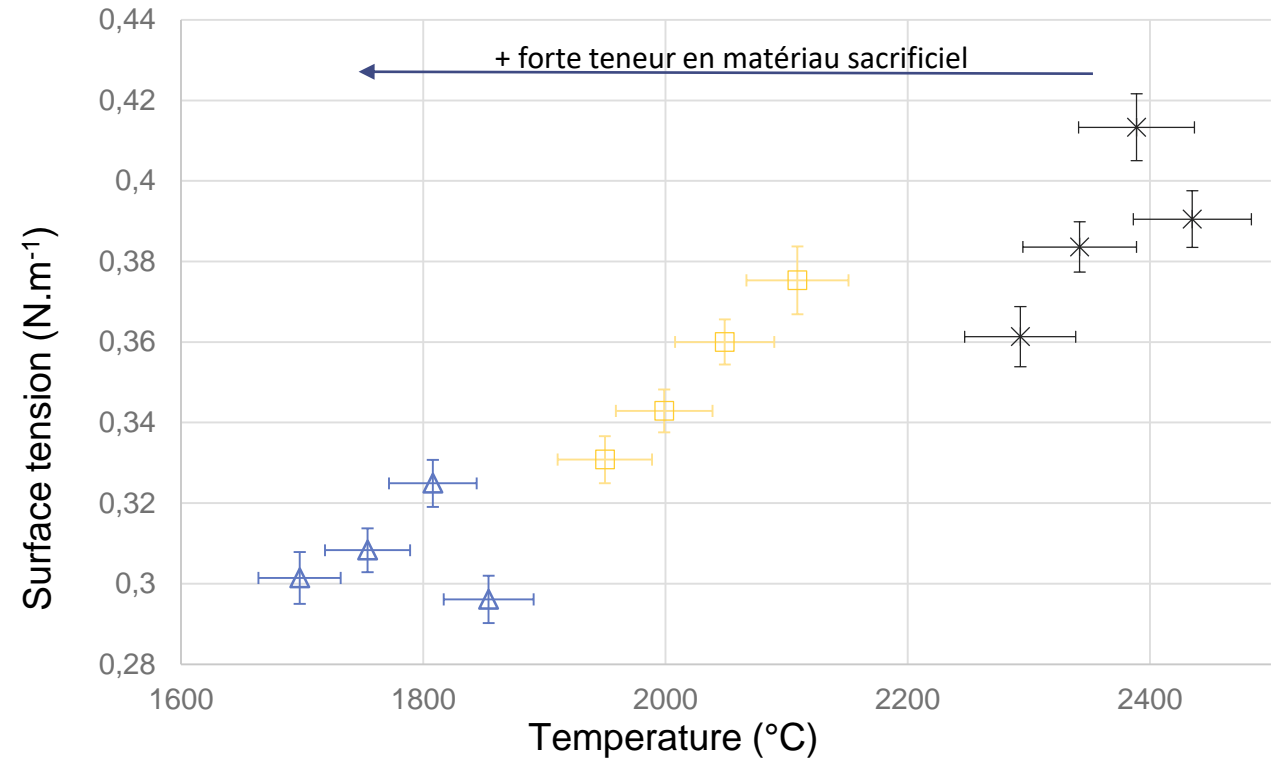
Evolution des tensions de surface en fonction du degré d'oxydation du zirconium.

# Tension de surface et stoechiométrie (en cuve) ou dopage (hors-cuve): VITI-MBP

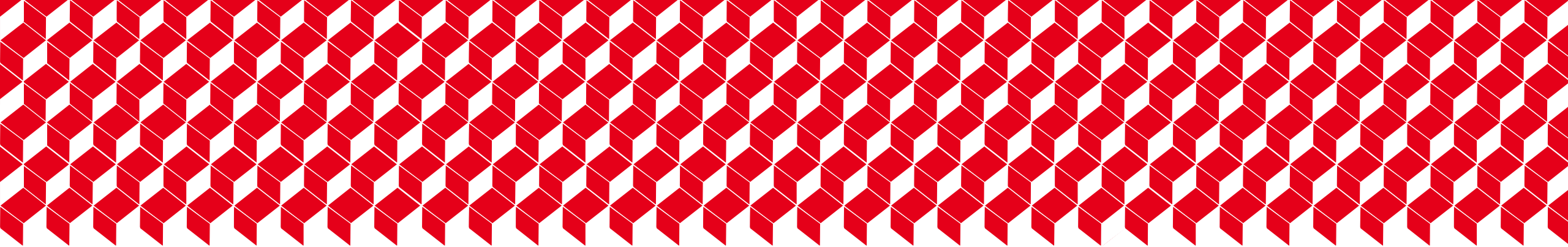
## Résultats hors-cuve

- Grille d'essais de 3 mélanges corium/matériau sacrificiel.
- Différentes compositions, différentes marges au liquidus (jusqu'à 2500°C).
- La tension de surface s'abaisse d'autant plus que la teneur du matériau sacrificiel est grande.
- Incertitudes autour des 3%.
- Promotion de l'étalement par amélioration de la mouillabilité.

## ➤ Mesures de tension de surface opérationnelles pour les oxydes.



Evolution des tensions de surface en fonction de la température et de la composition.

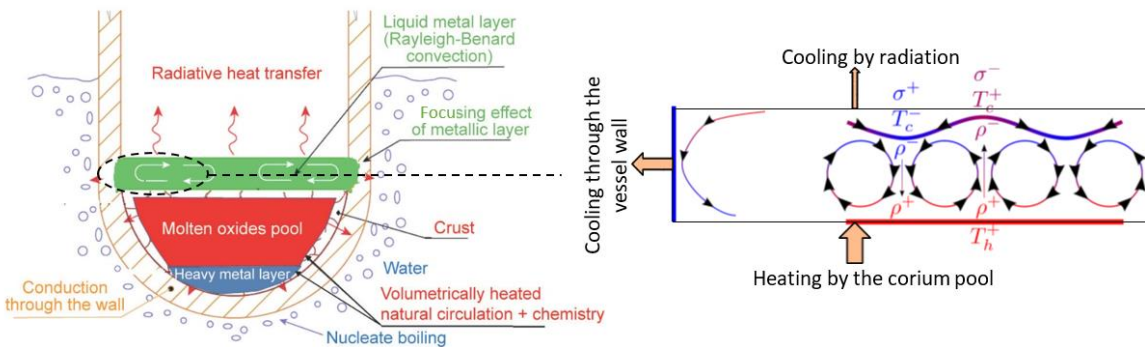


# 3 ■ Des métaux liquides

# Aciers de cuve, densité et tension de surface : VITI-SD et VITI-MBP

Stratification du bain de corium :

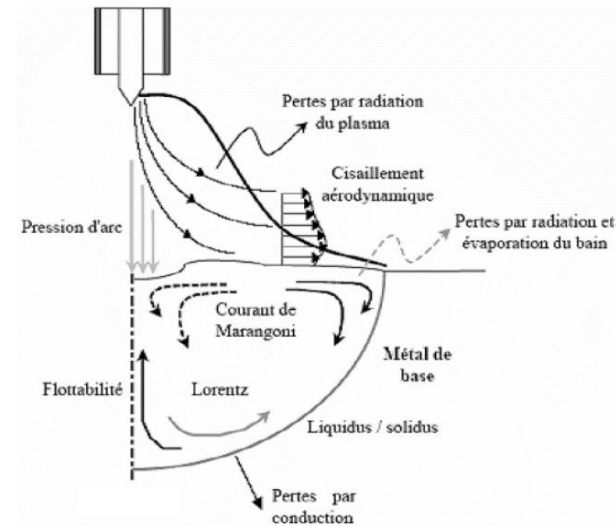
- Transfert de masse et séparation gravitaire (densité).
- Fine couche métallique supérieure et *focusing effect*.
- Effet Marangoni, promoteur ou inhibiteur de l'écoulement
- Impacte le flux critique admissible par la cuve, et donc son intégrité dans le cadre de la rétention en cuve.



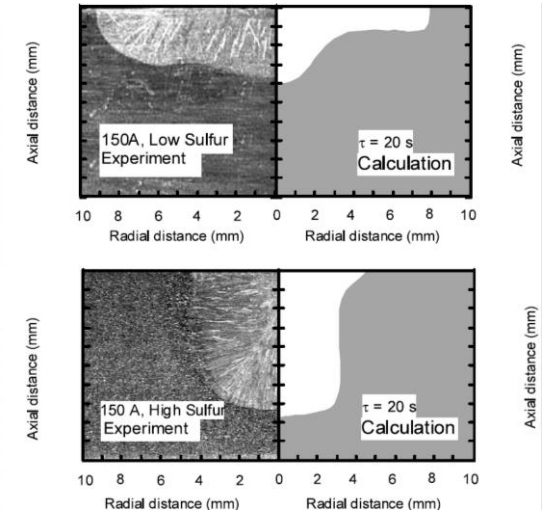
Rétention en cuve, stratification, et effet Rayleigh-Bénard-Marangoni dans la couche supérieure.

Bain de soudage des aciers primaires:

- Ratio Surface/Volume élevé, impact des mécanismes interfaciaux.
- Effet Marangoni lié aux gradients de tension de surface.
- Influence mouillante ou pénétrante, jouant sur la qualité des soudures.



Mécanismes au sein d'un bain de soudage.



M. Tanaka, M. Ushio and J. J. Lowke, "Numerical Analysis for Weld Formation Using a Free-Burning Helium Arc at Atmospheric Pressure," JSME International Journal Series B Fluids and Thermal Engineering, vol. 48, pp. 397-404, 2005.

- **Nécessité d'accéder à l'évolution de la densité et de la tension de surface en fonction de la composition des aciers de cuve considérés, et de la température.**

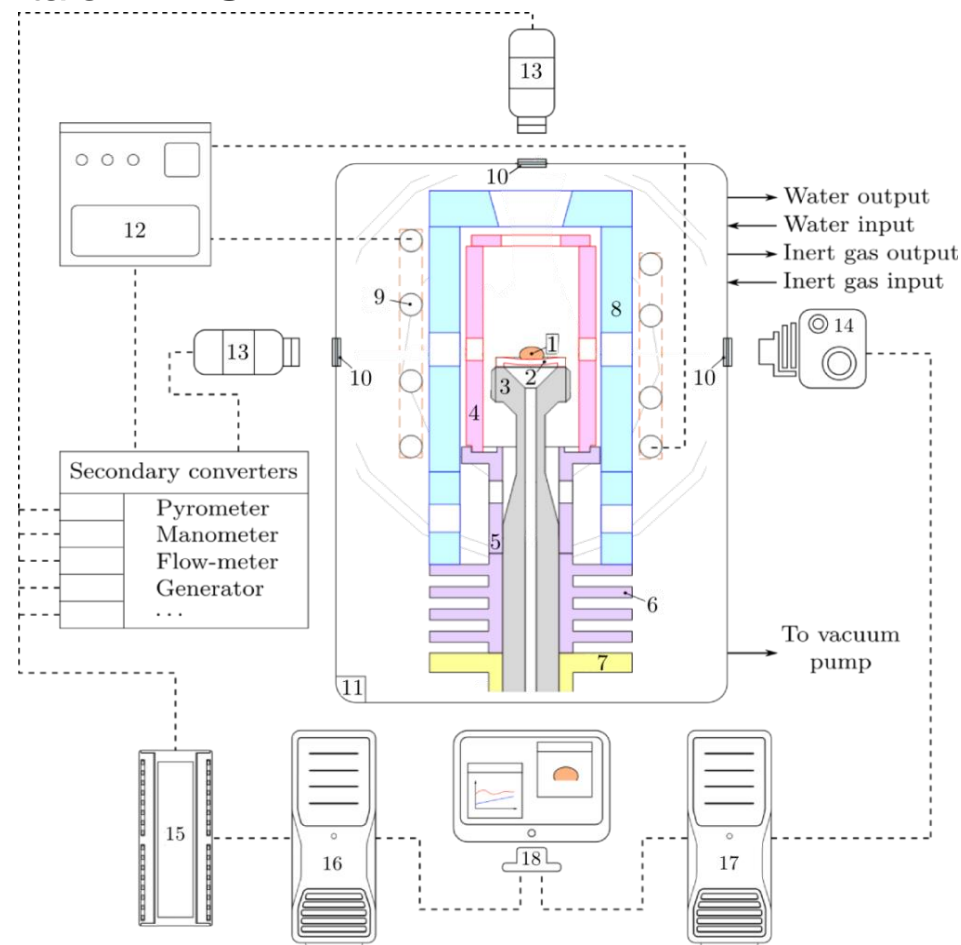


# Aciers de cuve, densité et tension de surface : VITI-SD et VITI-MBP

## Configuration expérimentale VITI-SD

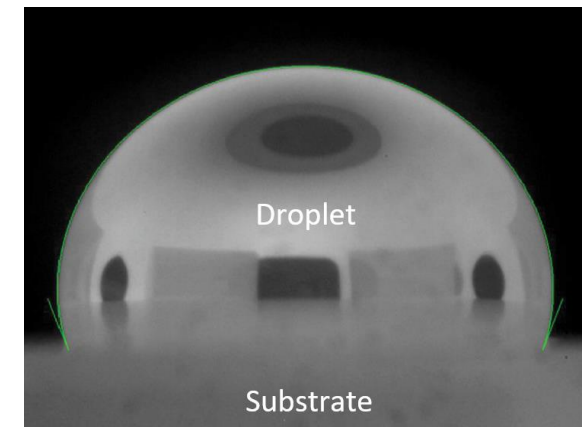
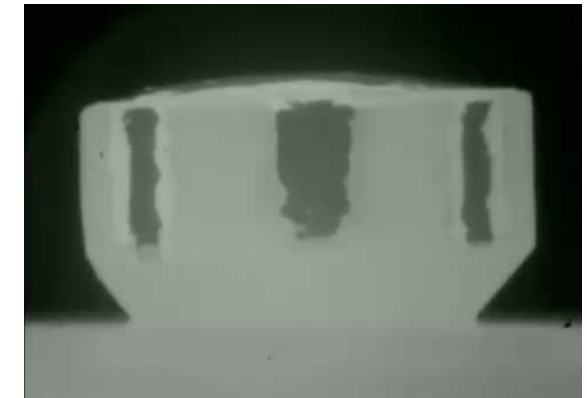
### ■ Légende

- 1: droplet
- 2: substrate
- 3: substrate support
- 4: susceptor
- 5: susceptor support
- 6: fins
- 7: global support
- 8: thermal shield
- 9: inductor
- 10: windows
- 11: vessel
- 12: generator
- 13: pyrometers
- 14: camera
- 15: data bus
- 16: acquisition PC
- 17: imaging PC
- 18: monitoring



VITI-MBP: configuration.

### ■ Principe

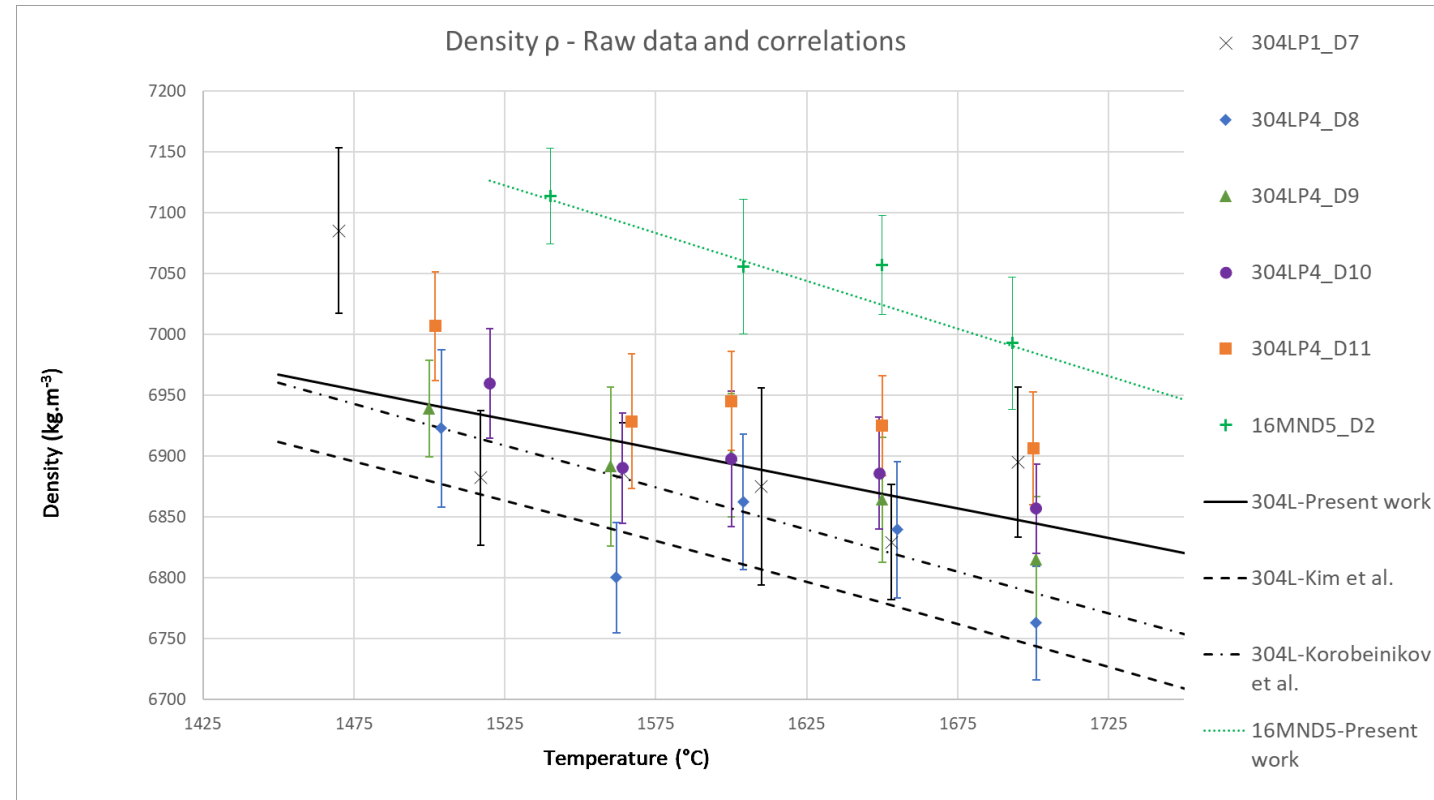


Détermination du volume par détection de contour et pesée de la goutte:  $\rho = m/V$ .

# Aciers de cuve, densité et tension de surface : VITI-SD et VITI-MBP

## Résultats masse volumique

- Grille d'essais de différents aciers austénitiques et ferritiques.
- Limité au seuil de vaporisation.
- Corrélations de références, pouvant servir de donnée d'entrée pour MBP.
- Incertitudes autour des 2%.
- Masses volumiques plus élevées pour les aciers ferritiques, faiblement alliés .



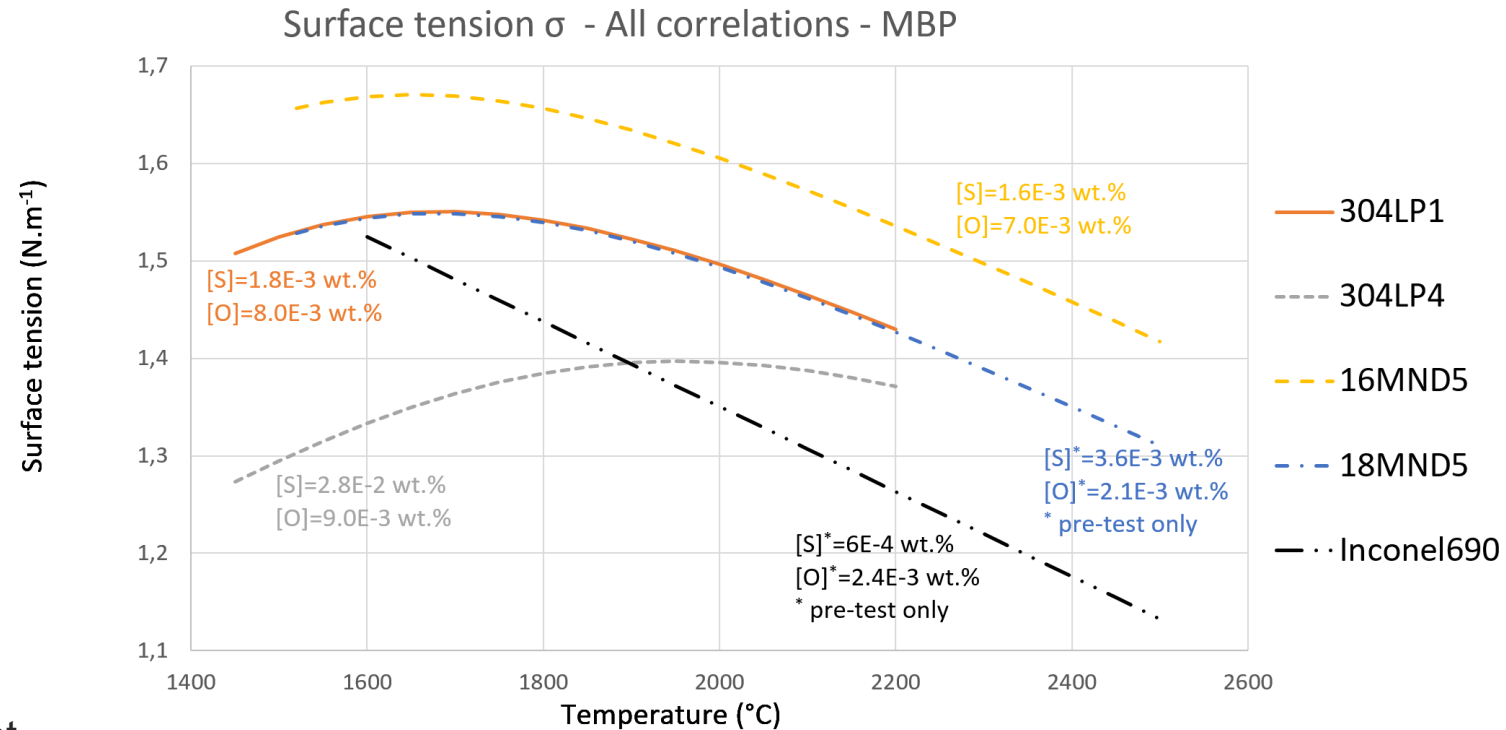
Evolution de la masse volumique des aciers liquides en fonction de la température et de la composition.

➤ **Mesure de masse volumique opérationnelle pour les métaux liquides jusqu'au seuil de vaporisation.**

# Aciers de cuve, densité et tension de surface : VITI-SD et VITI-MBP

## Résultats tension de surface VITI-MBP

- Grille d'essais de différents aciers austénitiques, ferritiques, superalliages (inconel).
- Jusqu'à 2500°C.
- Incertitudes autour des 3%.
- Aciers : niveaux de  $\sigma$  orientés suivant [S] et [O], effet surfactant prononcés.
- Suivant la température et la composition, effet Marangoni inhibiteur ou promoteur de l'écoulement en sous-phase.



Evolution de la tension de surface des aciers liquides en fonction de la température et de la composition.

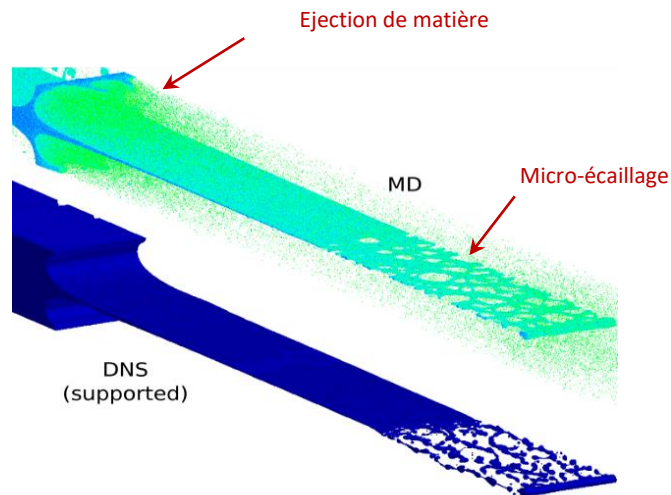
## ➤ Mesure de tension de surface opérationnelle pour les métaux liquides à très haute température\*.

\*Delacroix, J., Piluso, P., Chikhi, N., Asserin, O., Borel, D., Brosse, A. and Cadiou, S. (2022), Measurements of Liquid AISI 304L Steel Density and Surface Tension, and Influence of Surface-Active Elements at High Temperatures. steel research int., 93: 2100624.

# Métaux purs, écoulements et viscosité : VITI-TPV

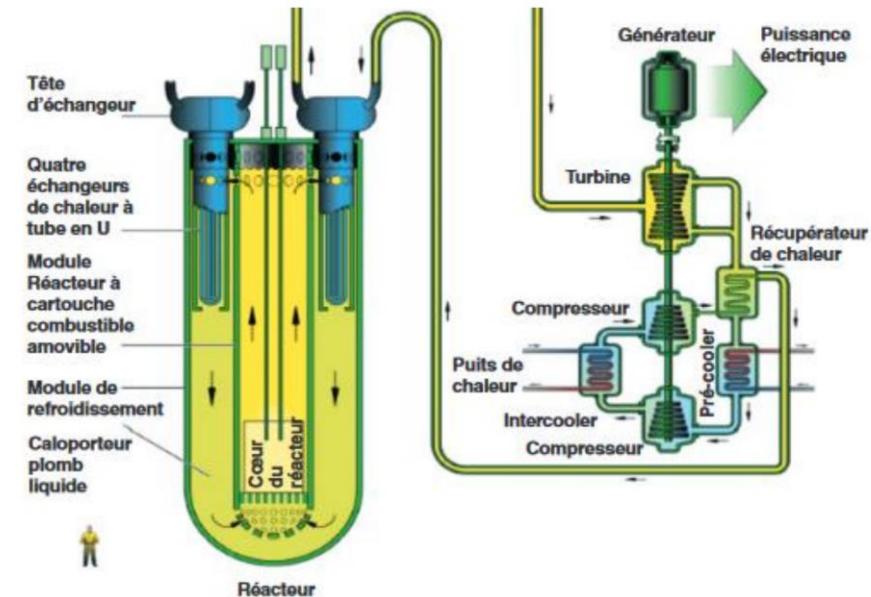
Stratégie:

- Ejection en phase liquide.
- Ecoulements cisailés.
- Viscosités hautes températures requises (voire hautes pressions).



Gen-IV:

- Réacteurs à neutrons rapides à caloporteur métal liquide.
- Thermohydraulique du circuit primaire, dynamique en nominal/incidentel/accidentel.
- Viscosité méconnue au-delà du nominal.



Réacteur à neutrons rapides refroidi au plomb.

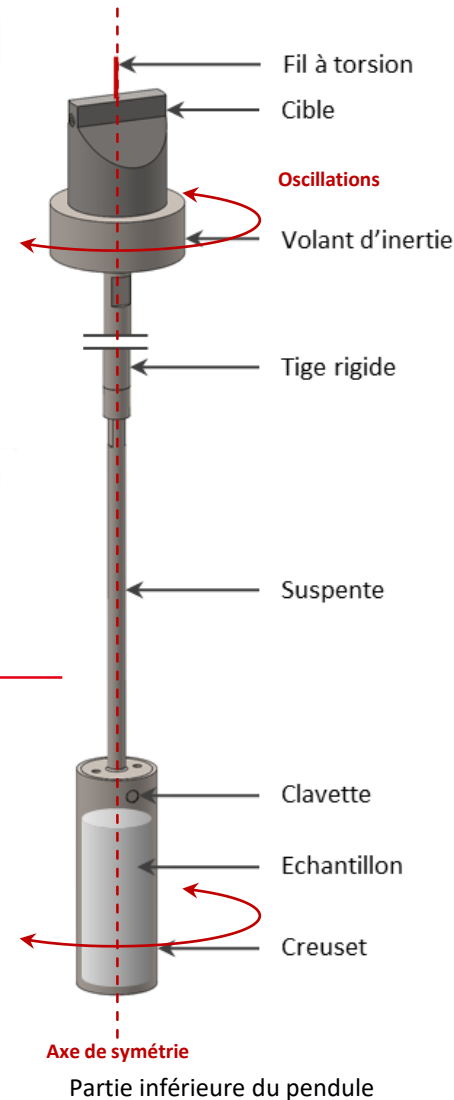
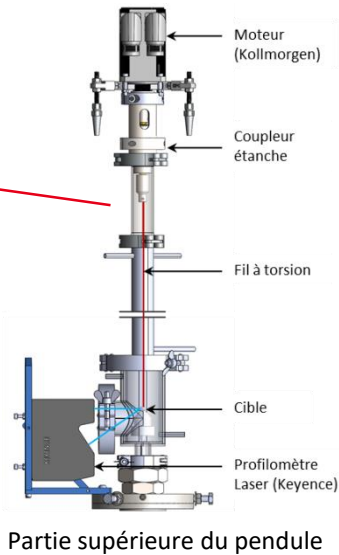
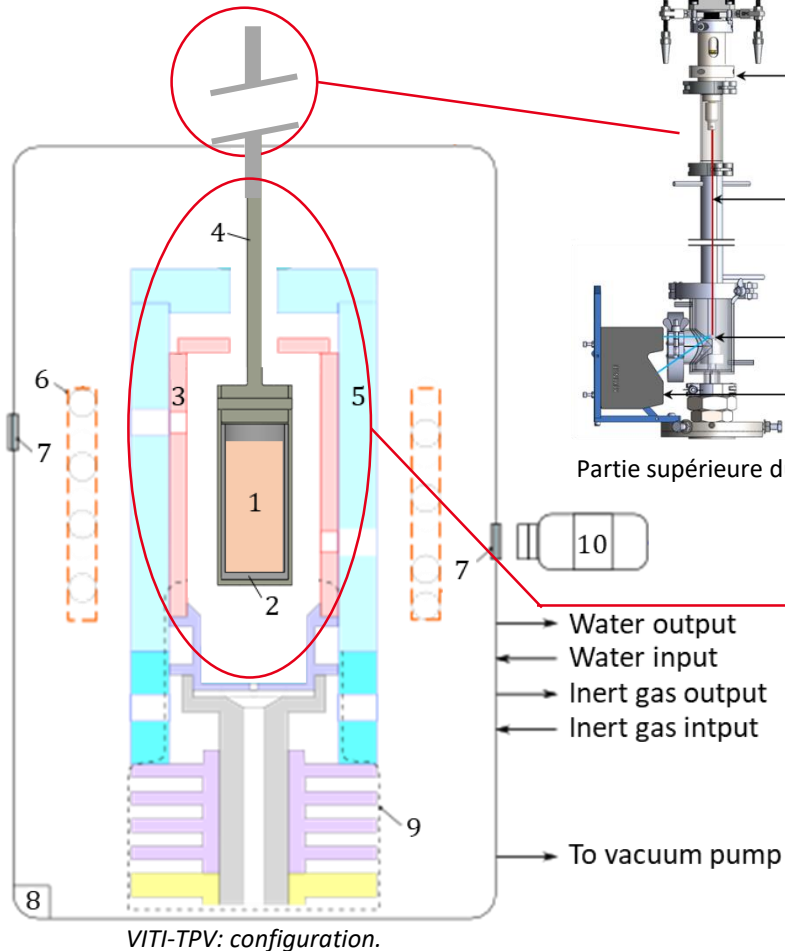
➤ **Nécessité d'accéder à l'évolution de la viscosité en fonction de la température pour des métaux liquides d'intérêts.**

# Métaux purs, écoulements et viscosité : VITI-TPV

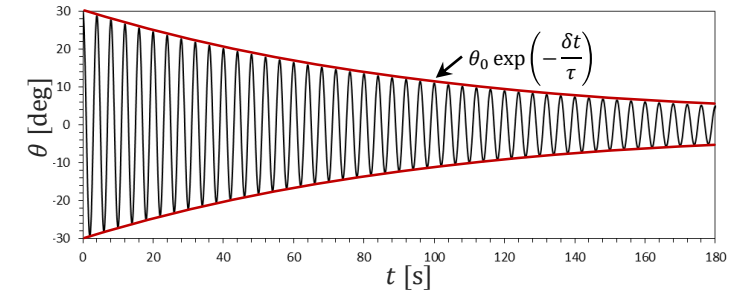
Configuration expérimentale VITI-TPV

## Légende

- 1: sample
- 2: ceramic liner
- 3: susceptor
- 4: pendulum lower part
- 5: thermal shield
- 6: Inductor
- 7: Windows
- 8: vessel
- 9: thermal shield support
- 10: pyrometers
- ...



## Principe



Oscillations pseudo-périodiques en régime amorti.

## Oscillations amorties du pendule

- Régime pseudo-périodique.
- Amortissement et frottement visqueux.
- Evolution temporelle des oscillations amorties :

$$\theta(t) = \theta_0 \exp\left(-\frac{\delta t}{\tau}\right) \cos\left(\frac{2\pi t}{\tau}\right)$$

- Période des oscillations :  $\tau = 2\pi \sqrt{\frac{J}{C}}$
- Décrément logarithmique :

$$\delta = f(\eta, \rho, h, r_i, \tau, J)$$



➤ Accès à la viscosité dynamique.

Atelier USTV 2023 - Avril 2023 - Avignon

11/04/2023

25

# Métaux purs, écoulements et viscosité : VITI-TPV

Modèles analytiques Newtonien

■ Exemple du modèle peu visqueux :

$$\eta = \frac{\rho}{\pi\tau} \left( \frac{J_0(\delta - \delta_0 \tau/\tau_0)}{m r_i \sigma} \right)^2$$

■ Caractéristiques du dispositif :

$J_0$  : Moment d'inertie du système à vide

$\delta_0$  : Décrément logarithmique à vide

$\tau_0$  : Période des oscillations à vide

$r_i$  : Rayon interne du creuset

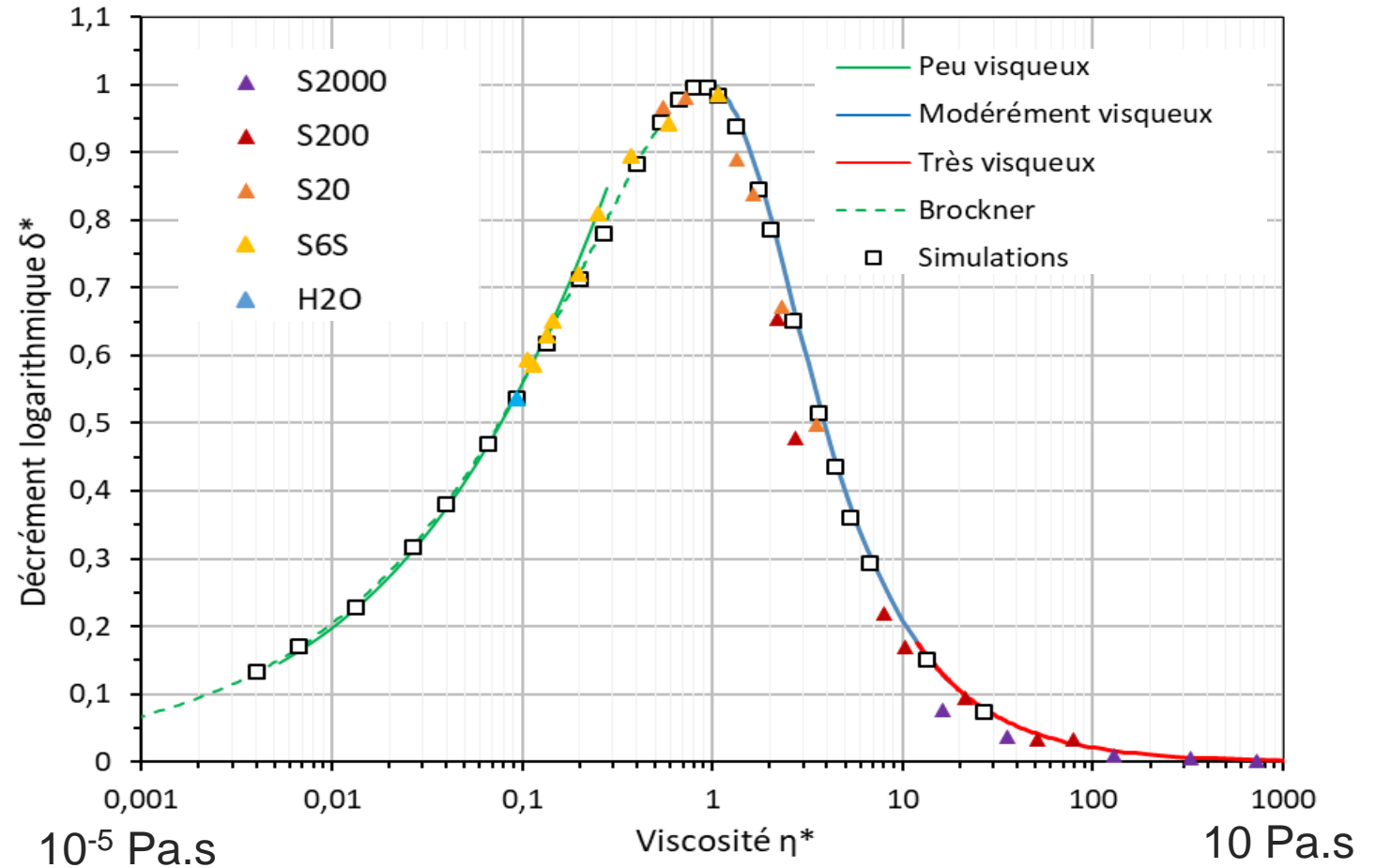
■ Caractéristiques de l'échantillon :

$m$  : Masse

$\rho$  : Masse volumique

$\delta$  : Décrément logarithmique en charge

$\tau$  : Période des oscillations en charge.



Courbe caractéristique décrément-viscosité, et qualification sur fluides étalons à température ambiante.



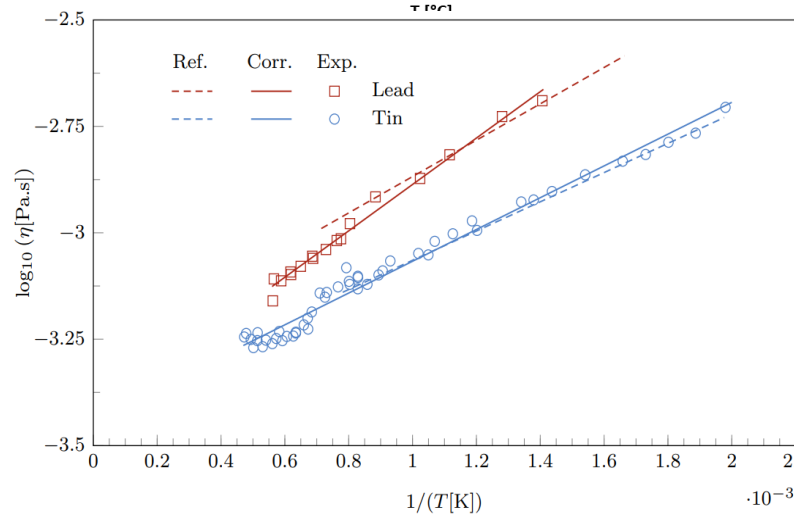
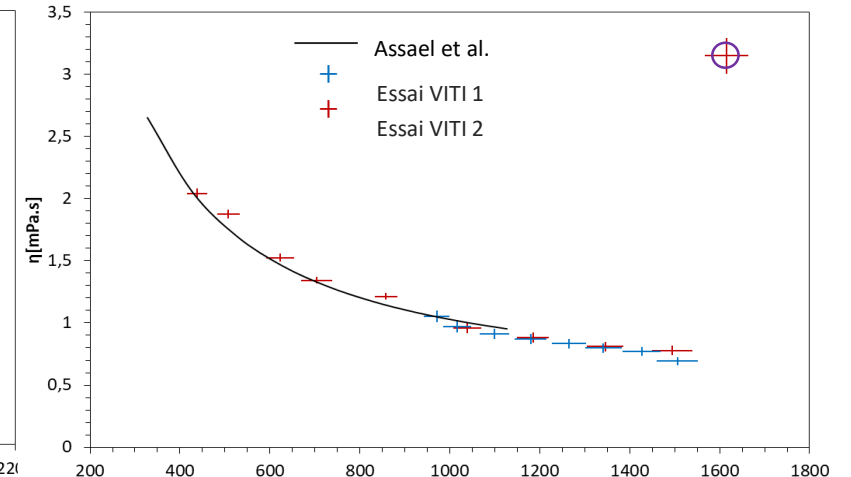
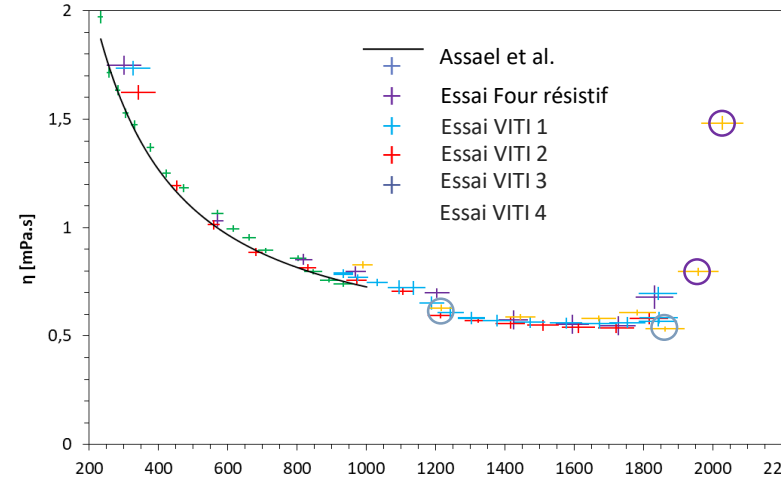
➤ **Qualifications sur fluides étalons pour valider gamme de mesure du pendule et modèles sous-jacents.**



# Métaux purs, écoulements et viscosité : VITI-TPV

## Résultats pour étain et plomb liquide

- En cohérence avec les données « basse température » de référence\*.
- Excellente reproductibilité, avec différentes configurations du pendule.
- Incertitudes limitées à 3%.
- Corrélation-type Arrhenius.
- Si vaporisation trop conséquente, mesures inexploitable.



$$\log_{10} \left( \frac{\eta}{\eta_0} \right)^{T[^\circ\text{C}]} = -a + \frac{b}{T}$$

Métal	Reference	$T_{min} - T_{max}$ [K]	$a$ [-]	$b$ [K]
Etain	Dispositif TPV	506 – 2135	3,440	373,3
	Réf*	506 – 1280	3,408	343,4
Plomb	Dispositif TPV	710 – 1770	3,431	544,8
	Réf**	601 – 1400	3,292	427,1

Viscosité dynamique de l'étain (gauche, haut) et du plomb (haut, droit), et corrélations hautes températures (bas).

➤ **Mesure de viscosité dynamique opérationnelle pour les métaux liquides à très haute température.**



\*Assael, Marc J., et al. "Reference data for the density and viscosity of liquid copper and liquid tin." *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 39.3 (2010): 033105.7

\*\*Assael, Marc J., et al. "Reference data for the density and viscosity of liquid antimony, bismuth, lead, nickel and silver." *High Temperatures--High Pressures* 41.3 (2012).



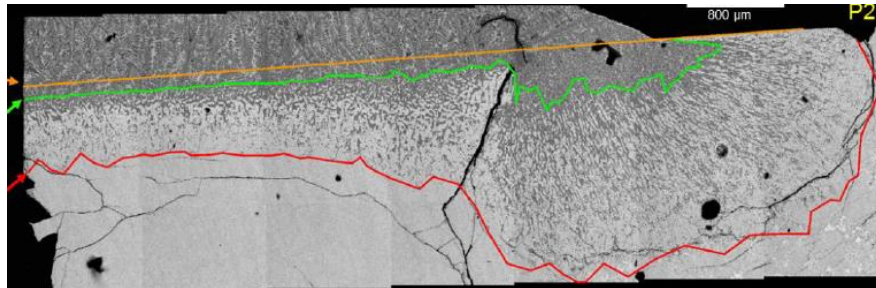
# 4 ■ Conclusions et perspectives

# Expérience VITI: Bilan et possibilités

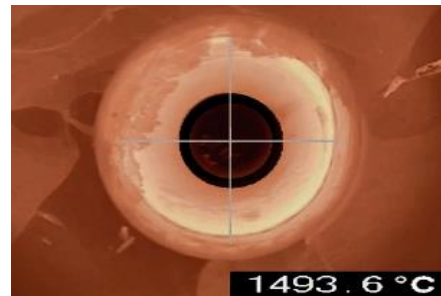
## Propriétés des fondus haute température

- Oxydes liquides : mesures de solidus/liquidus, masse volumique et tension de surface opérationnelles, en conditions sévères (hautes température, matériau prototypique avec U).
- Métaux liquides : mesures de masse volumique, de tension de surface et de viscosité dynamique opérationnelles, à haute température.
- Budget d'incertitudes limité à quelques %.

## Expériences à effets séparés et mécanismes fondamentaux : VITI, une installation polyvalente



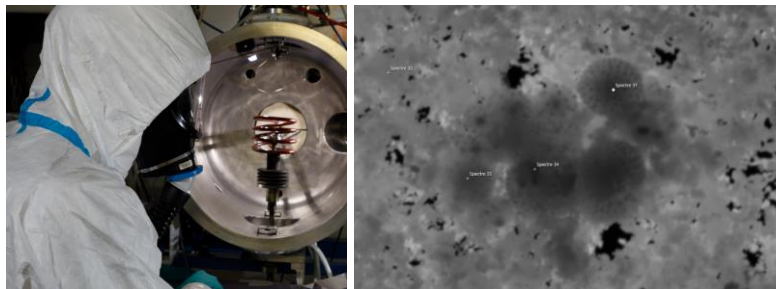
Interaction acier liquide/croûte de corium.



Oxydation graduelle d'acier liquide.



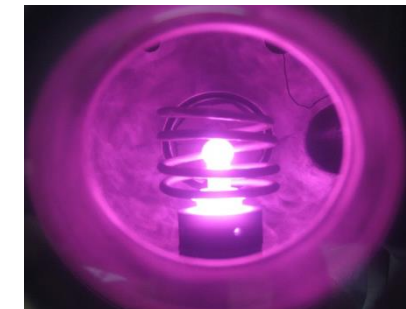
Mouillabilité du sodium.



Investigation des aérosols du corium.



Caractériser le comportement des verres fondus.



Chauffage d'une sphère instrumentée en tantale.

11/04/2023

# Les défis de l'adaptation au verre

La question de la température:

- *A priori*, températures de fonctionnement moins élevées pour le verre que pour le corium.
- Transition vitreuse?
- Comment mesurer la température d'un verre?

■ Mesure de la température:

Indirecte sur contenant aux propriétés connues?

Directes mais propriétés radiatives méconnues?

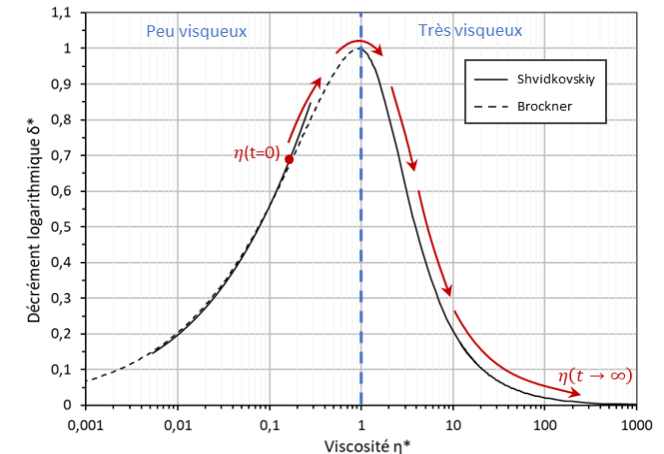
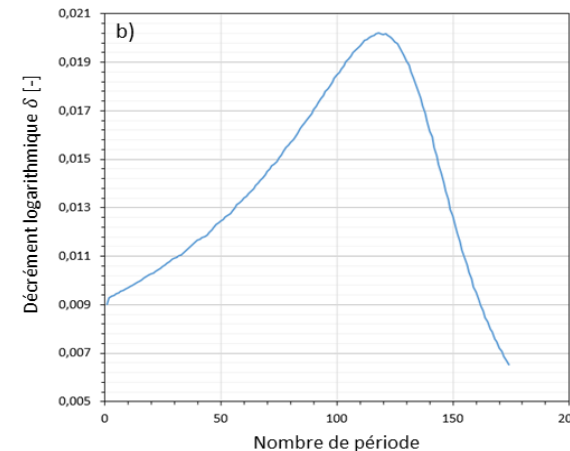
■ Approches possibles sur VITI:

Pyroréfectométrie, approche multispectrale.

Intégration de la transmission dans les modèles de rayonnement sous-jacents.

La question des gammes de mesure:

- *A priori*, gamme MBP compatible et sensibilité OK pour mesure masse volumique et tension de surface.
- Viscosité: impact de la transition vitreuse. Pour le corium, les silicates impactent significativement la valeur de la viscosité apparente.
- Comportement Newtonien, ou non-Newtonien? Ex fluide à seuil, variation caractéristique du décrément pour TPV.



- Gammes de mesure conditionnées par le comportement à l'évaporation.

➤ Des adaptations techniques sont nécessaires pour envisager des essais sur échantillon verrier.

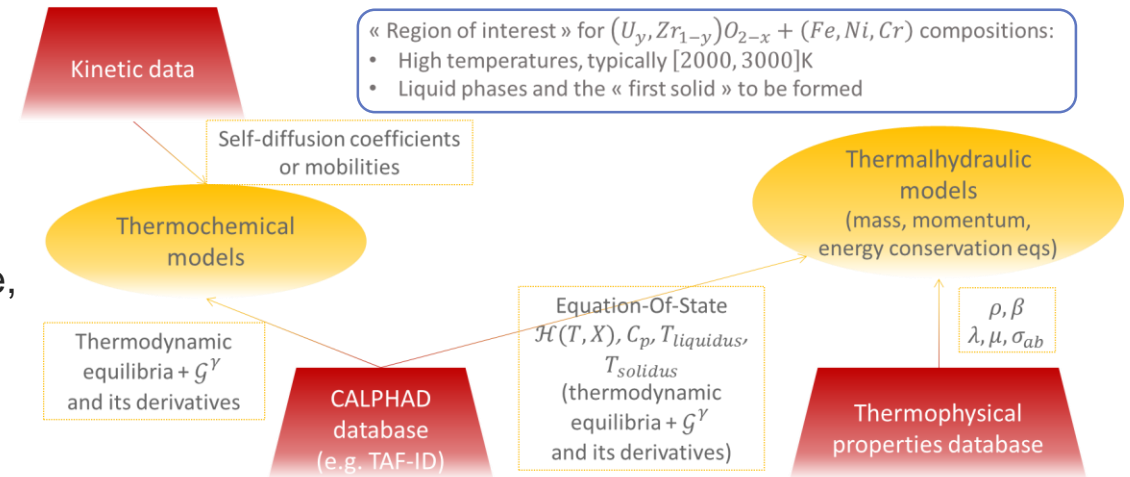
# Perspectives générales

Budget d'incertitudes, amélioration de la précision et technique inverse

- Enveloppe d'incertitudes autour des 5%, défi de l'incertitude liée à la mesure des hautes températures.
- Méthodes « robustes » vis-à-vis de l'évaporation (avec contact) favorisées, *quid* de la pollution par le contenant?
- L'amélioration de la précision passe par une modélisation procédée (jumeau numérique) permettant d'améliorer la reconstruction par méthode inverse.

Capitalisation des résultats, bases de données

- Démarche de modélisation des propriétés thermophysiques: formalisme de Butler (tension de surface), dynamique moléculaire, pour extrapoler les valeurs aux parties inaccessibles du domaine (température, composition) d'intérêt.
- Etablissement d'une base de données unifiée, équivalente à l'approche développée en Thermodynamique avec CALPHAD, permettant un lien facilité avec les outils de calculs.



Courtesy from Romain Le Tellier.

➤ Démarche initiée par les équipes d'IRESNE: DEC/SESC/LM2C et DTN/SMTA/LMAG et LEAG.

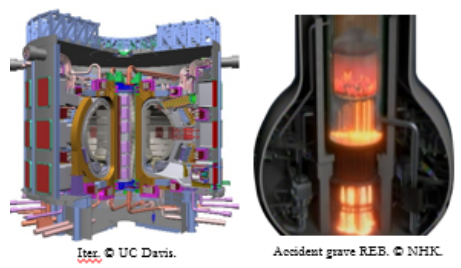


# Conclusion sur la caractérisation des systèmes nucléaires

**Systèmes nucléaires**  
 Métaux & Oxydes  
 Transversalité filières  
 Fission GEN II-III-IV, Fusion  
 Réacteurs embarqués  
 Accidents Graves

**Objectifs**  
 Sûreté des réacteurs  
 Fiabilité des outils prédictifs  
 Marges opérationnelles  
 Aide au démantèlement

**Enjeux**  
 Accès aux propriétés & mécanismes fondamentaux à l'échelle locale  
 Alimenter bases de données  
 Alimenter codes et outils de simulation  
 Alimenter expériences intégrales



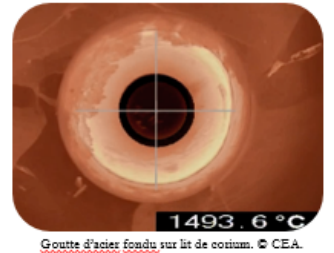
**Avancées & Applications**

Corium REP/REB/RNR-Na  
 Prototypique (avec U)  
 Aciers  
 Interne/Externe cuve  
 Couvertures fertiles ITER

Rétention en cuve [8, 13, 16]  
 Récupérateur & Etalement [7,10]  
*Fuel-Coolant Interaction*, Oxydation [3]  
 Soudage aciers primaires [17]  
 Aérosols & Terme-source Fukushima [15]  
 Ecoulements sous champs [1, 5]

Seuil des 3000°C atteint  
 Matériau actif (U) caractérisé  
 Milieu oxydant (O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O)  
 Fondus haute température  
 Incertitudes réduites

**Expériences originales & fonctionnelles:**  
 Propriétés: MBP [12], TPV [18], Madip [2], VISTRAT [9], VPA [7], Pyref [14]  
 Mécanismes: VITOX [11], VITAE [15], CORMET [6]  
 Modélisation *ad hoc*: chauffage inductif [4], Pendule à torsion [18], Oxydation [3]



**Défis**  
 Conditions extrêmes  
 Etat liquide méconnu  
 Agressivité & Activité  
 Précision des mesures

**Conclusion**  
 Amélioration significative des connaissances sur l'état liquide haute température de matériaux appliqués au nucléaire

**Moyens**  
 Instrumentation & métrologie innovantes  
 Simulation procédés & technique inverse





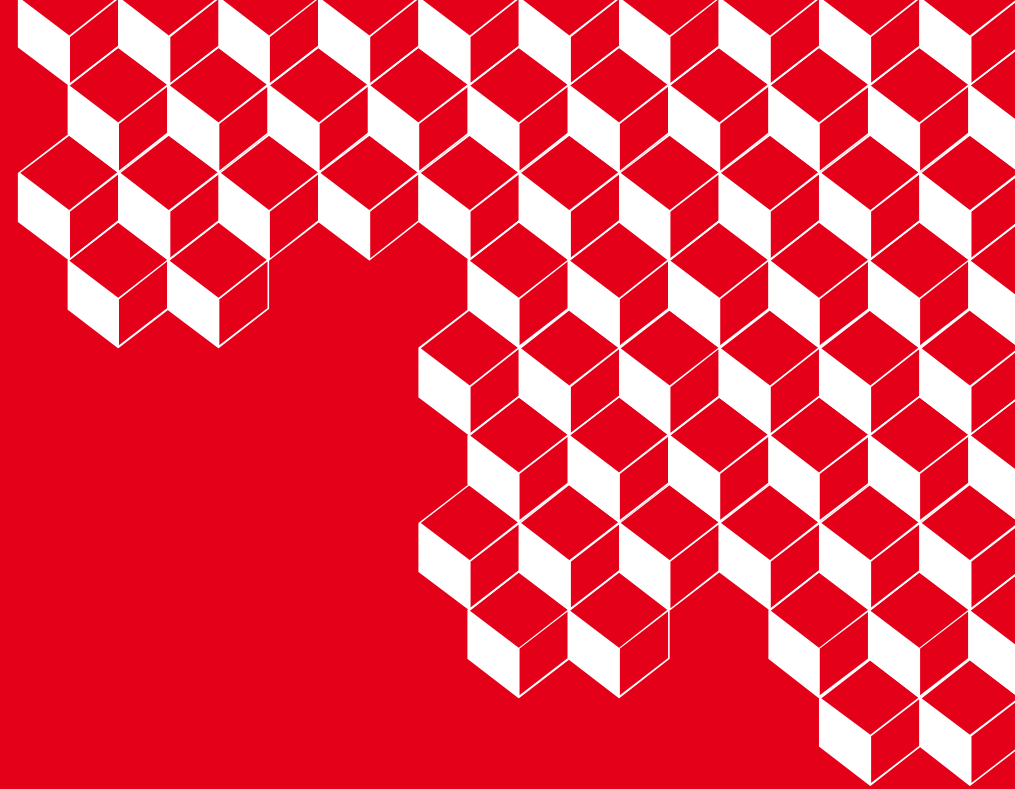
**“ La rose n’a d’épines que pour celui qui veut la cueillir.”**

*Proverbe chinois*



**Merci**

**JULES DELACROIX**  
CEA Cadarache, Bât. 219 D  
13108 Saint-Paul-lez-Durance Cedex  
France  
[jules.delacroix@cea.fr](mailto:jules.delacroix@cea.fr)



# Références

- [1] J. Delacroix and L. Davoust. Electrical activity of the Hartmann layers relative to surface viscous shearing in an annular magnetohydrodynamic flow. *Phys. Fluids*, 26:037102-1 – 037102-21, 2014.
- [2] J. Delacroix and L. Davoust. On the role of surface rheology in a magnetohydrodynamic swirling flow. *Phys. Fluids*, 27:062104-1 – 062104-22, 2015.
- [3] J. Delacroix, R. Le Tellier, and P. Piluso. Oxygen diffusion in liquid (over)stoichiometric corium. *Nucl. Eng. Des.*, 337:148 – 160, 2018.
- [4] J. Delacroix, P. Piluso, N. Chikhi, and P. Fouquart. Induction heating of cylindrical loads of arbitrary skin-depth by “current-sheet” inductors. *Electr. Eng.*, 100:811–822, 2018.
- [5] Jules Delacroix and Laurent Davoust. Drag upon a sphere suspended in a low magnetic-reynolds number mhd channel flow. *Phys. Rev. Fluids*, 3:123701, Dec 2018.
- [6] A. Pivano, P. Piluso, N. Chikhi, J. Delacroix, P. Fouquart, and R. Le Tellier. Experiments on interactions of molten steel with suboxidized corium crust for in-vessel melt retention. *Nucl. Eng. Des.*, 355:110271, 2019.
- [7] J. Delacroix, N. Chikhi, P. Fouquart, C. Journeau, K. Tatsahura, T. Tsukamoto, T. Toda, and S. Kamohara. Solidus and liquidus temperatures of corium-sacrificial material mixtures: experimental results and thermodynamic calculations. In *Proceedings of FDR2019, International Topical Workshop on Fukushima Decommissioning Research*, 2019.
- [8] N. Chikhi, P. Fouquart, J. Delacroix, and P. Piluso. Measurement of type 304l stainless steel and 16mnd5 ferritic steel density and surface tension: Possible impact for stratified molten pool. *Nucl. Technol.*, 205(1-2):200–212, 2019.
- [9] Tisseur, D., Cavaro, M., Rey, F., Paumel, K., Chikhi, N., Delacroix, J., Fouquart, P., Le Tellier, R., and Bouyer, V. Study of online measurements techniques of metallic phase spatial distribution into a corium pool. *EPJ Web Conf.*, 225:08003, 2020.
- [10] J. Delacroix, C. Journeau, N. Chikhi, P. Fouquart, and D. Zhan. Measurements of in-vessel and ex-vessel liquid corium surface tension and density in the viti-mbp test bench within alisa euro-chinese project. *Mechanical Engineering Journal*, 7(3):19–00611–19–00611, 2020.
- [11] S. Thilliez, P. Piluso, J. Delacroix, E. De Bilbao, and J. Poirier. Oxidation at liquid state of iron and zirconium under severe accident conditions. In *Proceedings of the European Nuclear Young Generation Forum ENYGF 2021*, 2021.
- [12] I. Korobeinikov, N. Chikhi, P. Fouquart, B. Turquais, J. Delacroix, S. Seetharaman, and O. Volkova. Surface tension and density of cr–mn–ni steels with transformation induced plasticity effect. *Steel Res Int*, 92(1):2000260, 2021.
- [13] N. Chikhi, J. Delacroix, P. Fouquart, and B. Turquais. Measurement of corium surface tension using the maximum bubble pressure. *Nuclear Engineering and Design*, 379:111266, 2021.
- [14] Benjamin Turquais, Jean-Louis Sans, Laurent Davoust, Jules Delacroix, Christophe Journeau, Pascal Piluso, and Nourdine Chikhi. Pyroreflectometry as a technique for the accurate measurement of very high temperatures in molten materials. *Review of Scientific Instruments*, 93(9):094901, 2022.
- [15] Hugo Laffolley, Christophe Journeau, Jules Delacroix, Bernd Grambow, and Christophe Suteau. Synthesis of fukushima daiichi cs-bearing microparticles through molten core-concrete interaction in nitrogen atmosphere. *Nuclear Materials and Energy*, 33:101253, 2022.
- [16] Jules Delacroix, Christophe Journeau, and Pascal Piluso. High-temperature characterization of melted nuclear core materials: Investigating corium properties through the case studies of in-vessel and ex-vessel retention. *Frontiers in Energy Research*, 10, 2022.
- [17] Jules Delacroix, Pascal Piluso, Nourdine Chikhi, Olivier Asserin, Damien Borel, Alexandre Brosse, and Stephen Cadiou. Measurements of liquid aisi 304l steel density and surface tension, and influence of surface-active elements at high temperatures. *Steel Research International*, n/a(n/a):2100624, 2022.
- [18] K. Patouillet and J. Delacroix. Viscosity of liquid metals measured at very high temperature using oscillating cup viscometry. *Under consideration of Submission to Int. J. Thermophys.*, To be submitted, 2023.