

Validation d'un code CFD couplant hydrodynamique et transfert de masse

Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives

Laboratoire de Modélisation des Accidents Graves, LMAG

Cadarache 13115 Saint-Paul-lès-Durance

27/02/2023 - 11/08/2023

Clément Plumecocq



POLYTECH Marseille - Mécanique Énergétique

Maître de stage : Romain Le Tellier, Ingénieur-Chercheur LMAG

Encadrant : Mirantsoa-Aimé Rasolofomanana, Doctorant LMAG

Tuteur école : Marc Médale, Professeur des universités IUSTI-AMU

Résumé

Qu'est que c'est?. C'est une phrase français avant le lorem ipsum. Lorem ipsum dolor sit amet, consectetur adipiscing elit. Etiam lobortis facilisis sem. Nullam nec mi et neque pharetra sollicitudin. Praesent imperdiet mi nec ante. Donec ullamcorper, felis non sodales commodo, lectus velit ultrices augue, a dignissim nibh lectus placerat pede. Vivamus nunc nunc, molestie ut, ultricies vel, semper in, velit. Ut porttitor. Praesent in sapien. Lorem ipsum dolor sit amet, consectetur adipiscing elit. Duis fringilla tristique neque. Sed interdum libero ut metus. Pellentesque placerat. Nam rutrum augue a leo. Morbi sed elit sit amet ante lobortis sollicitudin. Praesent blandit blandit mauris. Praesent lectus tellus, aliquet aliquam, luctus a, egestas a, turpis. Mauris lacinia lorem sit amet ipsum. Nunc quis urna dictum turpis accumsan semper.

Abstract

Qu'est que c'est?. C'est une phrase français avant le lorem ipsum. Lorem ipsum dolor sit amet, consectetur adipiscing elit. Etiam lobortis facilisis sem. Nullam nec mi et neque pharetra sollicitudin. Praesent imperdiet mi nec ante. Donec ullamcorper, felis non sodales commodo, lectus velit ultrices augue, a dignissim nibh lectus placerat pede. Vivamus nunc nunc, molestie ut, ultricies vel, semper in, velit. Ut porttitor. Praesent in sapien. Lorem ipsum dolor sit amet, consectetur adipiscing elit. Duis fringilla tristique neque. Sed interdum libero ut metus. Pellentesque placerat. Nam rutrum augue a leo. Morbi sed elit sit amet ante lobortis sollicitudin. Praesent blandit blandit mauris. Praesent lectus tellus, aliquet aliquam, luctus a, egestas a, turpis. Mauris lacinia lorem sit amet ipsum. Nunc quis urna dictum turpis accumsan semper.

Table des matières

1	Introduction et contexte	2
1.1	Introduction	2
1.2	Présentation du laboratoire d'accueil	2
1.3	Contexte de l'étude	2
1.3.1	Contexte industriel	2
1.3.2	Généralités sur la sûreté nucléaire	3
1.3.3	Formation du corium lors d'un accident	4
1.3.4	Stratégie de rétention du corium en fond de cuve (IVR)	4
1.3.4.1	Modélisation stationnaire	4
1.3.4.2	Modélisation du régime transitoire	5
1.4	Objectif du stage	6
2	Éléments théoriques sur la méthode de champ de phase	7
2.1	Présentation des principales méthodes de suivi et de capture d'interface	7
2.2	Méthode d'interface diffuse	7
2.2.1	Équation de Cahn-Hilliard généralisée	8
2.2.2	Couplage avec les équations de Navier-Stokes incompressible	9
2.2.3	Paysage thermodynamique analytique	10
3	Étude hydrodynamique	12
3.1	Expérience numérique	12
3.1.1	Choix des conditions initiales	12
4	Comparaison avec un cas de la littérature	14
4.1	Présentation du cas de référence	14
4.2	Simulation réalisées	15
4.2.1	Choix du paysage thermodynamique	15
4.2.2	Validation d'un paysage	17
A	Solution analytique pour une interface plane	21
B	Calcul du coefficient de gradient à partir de la tension de surface	23
C	Détermination des paramètres pour des simulations	25
D	Éléments de stabilité de phase	27
E	Séquence de dégradation du cœur	29

Remerciements

CHAPITRE 1

Introduction et contexte

1.1 Introduction

1.2 Présentation du laboratoire d'accueil

Ce stage a eu lieu au Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives (CEA), qui est un acteur majeur de la recherche au service de l'État et des industriels. Le CEA est divisé en quatre directions assurant des missions distinctes telles que la défense et la sécurité nationale (DAM - Direction des Applications Militaires), l'amélioration de la santé publique et l'assistance pour la transition numérique de la société (DRT - Direction de Recherche Technologique), la recherche fondamentale (DRF - Direction de la Recherche Fondamentale) et finalement l'étude des systèmes énergétiques bas-carbone (DES - Direction des Énergies). Ce stage s'est déroulé sur le centre de Cadarache, au Département de Technologie Nucléaire (DTN), appartenant à la Direction des Énergies, au sein du Laboratoire de Modélisation des Accidents Graves (LMAG). Les travaux du laboratoire portent sur le comportement du cœur fondu, que l'on nomme corium, en situation accidentelle. Les principaux axes de recherche du laboratoire sont : l'interaction corium-béton (ICB), l'interaction corium-sodium et le comportement du corium en fond de cuve. Ce laboratoire emploie quinze ingénieurs-chercheurs et quatre doctorants qui travaillent principalement sur la modélisation et la simulation numérique, étant ainsi complémentaire au Laboratoire d'Expérimentation des Accidents Graves (LEAG) qui exploite une plateforme expérimentale (PLI-NIUS) dédiée au corium prototypique. Le stage a été encadré par Mirantsoa-Aimé Rasolofomanana, doctorant et Romain Le Tellier, ingénieur-chercheur.

1.3 Contexte de l'étude

1.3.1 Contexte industriel

En France, 56 réacteurs nucléaires dispersés sur 18 sites sont actuellement en service, ce parc est uniquement composé de réacteurs à eau pressurisée (REP) et représente 70% de la production électrique française. Les puissances fournies par ces réacteurs dit de deuxième génération varient entre 900 MWe et 1450 MWe. Un réacteur de troisième génération d'une puissance de 1650 MWe (EPR - European pressurized reactor) est actuellement en construction sur le site de Flamanville, cette nouvelle génération de réacteur tient compte du retour d'expérience issu de l'exploitation des réacteurs actuels, intégrant notamment plus d'éléments de sûreté. La construction de six nouveaux EPR a été annoncée et huit autres pourraient voir le jour. Les REP sont des réacteurs de la famille des réacteurs à eau légère, de l'eau est utilisée comme fluide caloporteur et modérateur, de plus cette eau est pressurisée à 155 bars pour éviter un changement d'état liquide-gaz dans le circuit primaire et ainsi obtenir un meilleur coefficient d'échange thermique, le schéma de principe est présenté par la figure 1.1

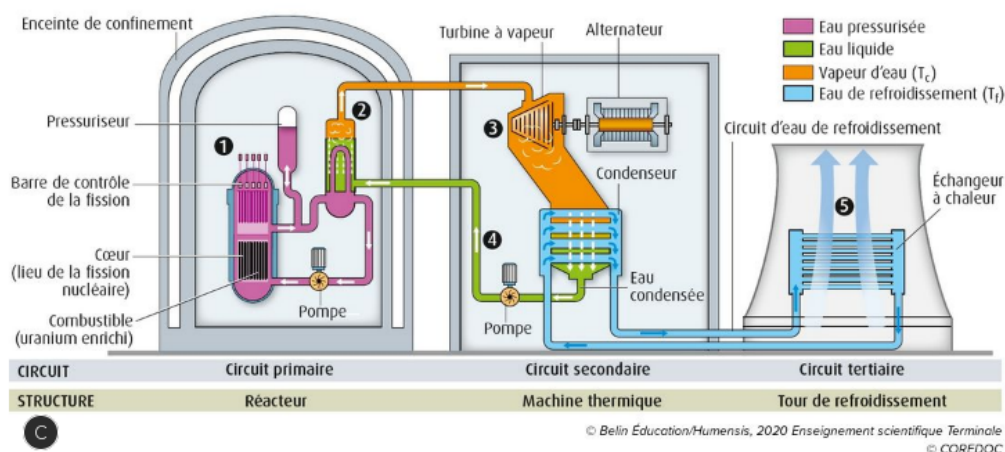


FIGURE 1.1 – Schéma de principe d'une centrale nucléaire de type REP, (d'après manuelnumerique-max.belin.education)

1.3.2 Généralités sur la sûreté nucléaire

Les questions de sûreté sont intrinsèquement liées à l'exploitation d'une centrale nucléaire tant les conséquences d'un potentiel accident peuvent être importantes. Ainsi dès le début des années 1970, le concept de défense en profondeur a été mis en place, ce concept se matérialise par la mise en place de lignes de défense successive indépendante. Pour les REP on compte trois barrières de confinement de la radioactivité :

1. La gaine combustible
2. La cuve et l'ensemble du circuit primaire
3. Le bâtiment réacteur placé sous atmosphère dépressurisée

Les variations par rapport au régime nominal sont classés selon l'échelle INES (International Nuclear Scale Event, figure 1.2), cette échelle permet de classer les accidents et leurs gravités, elle comporte huit échelons allant d'un simple écart (plusieurs centaines de cas par an en France) à l'accident majeur. Les accidents correspondent aux paliers 4 à 7 et se différencient de l'incident du fait de la perte d'intégrité de la première barrière résultante de la fusion du combustible, le produit de cette fusion est alors appelé corium.

	CONSEQUENCES À L'EXTÉRIEUR DU SITE	CONSEQUENCES À L'INTÉRIEUR DU SITE	DÉGRADATION DE LA DÉFENSE EN PROFONDEUR
7 ACCIDENT MAJEUR	Rejet majeur : effets considérables sur la santé et l'environnement		
6 ACCIDENT GRAVE	Rejet important susceptible d'exiger l'application intégrale des contre-mesures prévues		
5 ACCIDENT	Rejet limité susceptible d'exiger l'application partielle des contre-mesures prévues	Endommagement grave du cœur du réacteur / des barrières radiologiques	
4 ACCIDENT	Rejet mineur : exposition du public de l'ordre des limites prescrites	Endommagement important du cœur du réacteur / des barrières radiologiques / exposition mortelle d'un travailleur	
3 INCIDENT GRAVE	Très faible rejet : exposition du public représentant au moins un pourcentage des limites fixé par le guide AIEA*	Contamination grave / effets aigus sur la santé d'un travailleur	Accident évité de peu / perte des barrières
2 INCIDENT		Contamination importante / surexposition d'un travailleur	Incident assorti de défaillances importantes des dispositions de sécurité
1 ANOMALIE			Anomalie sortant du régime de fonctionnement autorisé
0 ÉCART		Aucune importance du point de vue de la sûreté	
ÉVÉNEMENT HORS ÉCHELLE	Aucune importance du point de vue de la sûreté		

FIGURE 1.2 – Echelle de classification des écarts au régime nominal INES (d'après ASN)

Les accidents possibles dans les REP sont séparés en deux grandes catégories, les accidents de criticité et les Accidents de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP). Les accidents de criticité sont dus à une accélération brutale de la réaction en chaîne, le cœur est alors en régime sur-critique entraînant une augmentation rapide de

puissance thermique produite, l'accident de Tchernobyl en 1986 est un exemple.

Les Accidents de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP) résultent quant à eux d'une fuite dans le circuit primaire ou d'un arrêt de la circulation du fluide caloporteur privant le cœur du refroidissement nécessaire à son fonctionnement, un cas d'accident de ce type est Fukushima Daiichi en 2011 où le tsunami a détruit l'alimentation électrique de la centrale, neutralisant ainsi l'ensemble des pompes. Dans la suite de ce rapport nous traiterons uniquement de cette seconde catégorie d'accident.

1.3.3 Formation du corium lors d'un accident

Lors d'un accident de type APRP, l'élévation de la température dans la cuve provoque l'oxydation fortement exothermique des gaines en zircaloy (alliage composé de 98% de zirconium), cette augmentation de température provoque un ensemble de réactions chimiques décrite en annexe E. Finalement un bain se forme comprenant de l'uranium, du zirconium et de l'acier ainsi que leurs oxydes respectif, la présence d'une lacune de miscibilité pour la phase liquide du système {U, O, Zr, Acier} entraîne une stratification de l'écoulement, ainsi on obtient un écoulement multiphasique et multicomposant. Le corium est un matériau fortement radioactif et produisant sa propre chaleur, l'objectif est alors de maîtriser sa propagation, pour cela deux stratégies existent : la rétention en fond de cuve avec refroidissement externe (explicité plus bas) et l'étalement sur un radier en béton, cette seconde stratégie est préférée pour les réacteurs de puissance élevée comme l'EPR par exemple. L'objectif est d'étaler le corium sur un radier en béton réfractaire, ce béton est alors progressivement ablaté. Pour limiter cette ablation un refroidissement passif est mis en place via le plancher puis une fois le corium partiellement refroidit, celui-ci est recouvert d'eau évitant ainsi une explosion de vapeur.

1.3.4 Stratégie de rétention du corium en fond de cuve (IVR)

Une fois le cœur fondu celui-ci se relocalise au fond de la cuve du réacteur. Pour limiter les conséquences d'un accident une stratégie vise à maintenir ce corium dans le fond de cette cuve, c'est la stratégie d'In-Vessel Retention (IVR). Pour cela on cherche à refroidir la cuve par l'extérieur. Cette stratégie est étudiée depuis les années 90 et mise en œuvre sur des réacteurs de faible puissance.

Le comportement du corium en fond de cuve est alors régi par deux principaux phénomènes : La thermohydraulique du bain, avec un écoulement turbulent soumis à des rouleaux de convection (instabilité de Rayleigh-Bénard) dans la phase oxyde, d'autre part la thermochimie régit quant à elle le comportement des phases et leurs équilibres.

1.3.4.1 Modélisation stationnaire

Les premières études du comportement du bain de corium ont été réalisées pour des bains stationnaires. Il a été montré qu'en régime stationnaire le bain est stratifié avec une phase oxyde et une phase métal, cependant en fonction de l'accident la couche de métal peut être lourde (i.e plus que l'oxyde et donc être en dessous) ou légère. Les différents cas sont obtenus via des différences de conditions initiales (fraction massique d'acier, degré d'oxydation du zirconium, le rapport molaire entre l'uranium et le zirconium dans la phase oxyde et la température du bain).

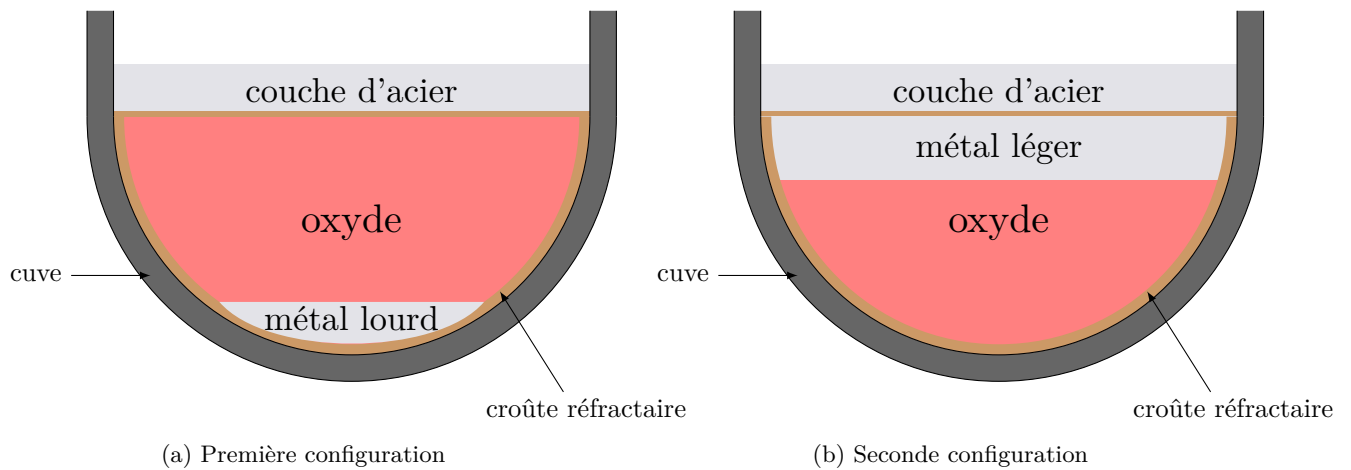


FIGURE 1.3 – Présentation des différents régimes de stratification possible

L'objectif de la rétention en cuve est alors de maintenir ce bain jusqu'à sa solidification, le refroidissement est assuré par convection naturelle sur la paroi de la cuve et par rayonnement sur la face supérieure de la couche d'acier. Cependant la couche supérieure d'acier étant très conductrice et ayant un contact direct avec la cuve sur une surface très faible (la couche d'acier est haute de quelques dizaines de centimètres), la densité de flux transmise est très importante. Cet effet est appelé *"focusing effect"* et représente la principale menace pour l'intégrité de la cuve.

1.3.4.2 Modélisation du régime transitoire

Comme expliqué précédemment, c'est au contact entre la cuve et la couche d'acier que le risque de percement est le plus important. Des études plus récentes ont montré que l'épaisseur de la couche d'acier pouvait être plus fine en régime transitoire qu'en régime stationnaire, diminuant ainsi la surface de contact et aggravant le *"focusing effect"*, c'est pourquoi une modélisation du régime transitoire est désormais préférée. Lors du transitoire des phénomènes d'inversion de phase sont observés, une partie du métal de la phase légère s'alourdit sous l'effet d'un transfert de masse et des gouttes tombent, puis sous l'effet d'un même transfert de masse la phase lourde remonte. On observe alors trois couches : une couche d'oxyde, une de métal léger localiser au dessus de la couche d'oxyde et une couche de métal lourd en fond de cuve ainsi, croûte réfractaire située entre les phases liquides et la cuve est également présente. Finalement on se retrouve dans la situation suivante :

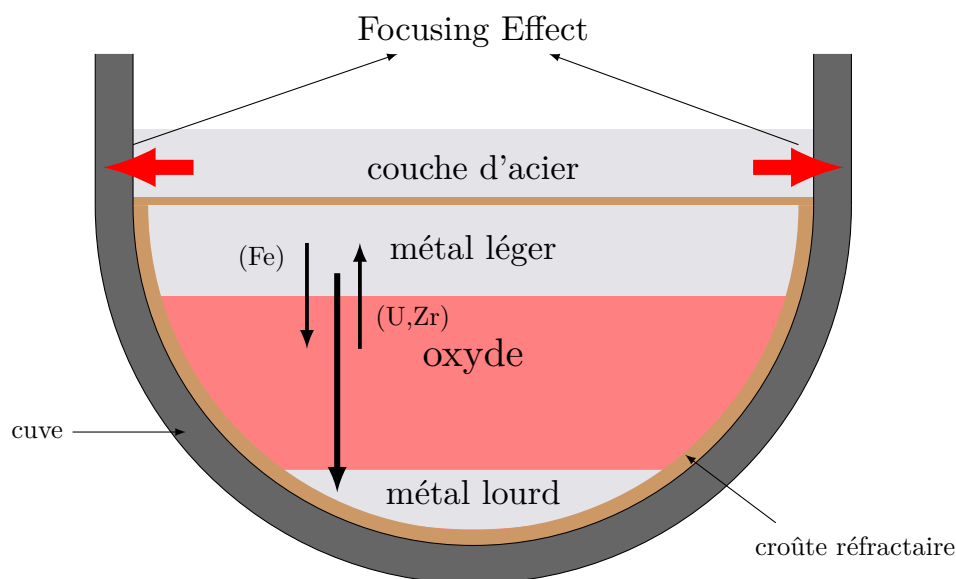


FIGURE 1.4 – Schéma du comportement du corium en fond de cuve en régime transitoire, d'après [1]

La couche de métal lourd se forme à partir d'un transfert de masse à l'interface des phases oxyde et métal léger créant des gouttes d'acier lourd se relocalisant en fond de cuve. L'essai expérimental MASCA RCW, au cours duquel 45kg de corium ont été mis en contact avec 4kg d'acier de telle sorte que le régime stationnaire soit caractérisé par la présence d'une phase métal lourd (configuration de la figure 1.3a), cependant la remontée de la phase lourde vers la phase légère n'a jamais été observée, l'essai ayant été arrêté au bout de 20 minutes le régime stationnaire n'a pas été atteint. Le résultat de cet essai est présenté en figure 1.5, on y observe la présence des gouttes de métal et les différentes phase (la largeur des lingots est d'environ 7cm).



FIGURE 1.5 – Résultat MASCA-RCW 100 ,d'après [2]

1.4 Objectif du stage

L'objectif du stage est de réaliser une validation qualitative du code CFD (*Computational Fluid Dynamic*) implémenté dans TrioCFD, code Open-Source du CEA, par M.A Rasolofomanana lors de sa thèse [1]. Ce code est une généralisation de la méthode champ de phase pour un système multicomposant. Cette implémentation fait suite aux thèses de Clément Cardon [3] et de Vaishnvi Tiwari [4] sur la modélisation par la méthode de champ de phase pour un système multicomposant. L'expérience reproduite est présentée dans [5], on y trouve une goutte qui sous l'effet d'un transfert de masse va subir une inversion de densité. Cette validation nécessite une paramétrisation cohérente du système pour obtenir des simulations consistante vis-a-vis d'un système binaire et du comportement thermodynamique. Le développement de ce type de code CFD a pour but de permettre la vérification et l'amélioration des lois de fermetures présente dans des codes intégraux, comme par exemple PROCOR développé au laboratoire.

CHAPITRE 2

Éléments théoriques sur la méthode de champ de phase

2.1 Présentation des principales méthodes de suivi et de capture d'interface

Le traitement numérique efficace des interfaces représente un enjeu majeur de la simulation numérique tant les applications faisant intervenir des interfaces sont importantes. On différencie les méthodes de suivi et de capture d'interface de part leurs philosophies différentes. En effet les méthodes de suivi d'interface sont par nature lagrangiennes, ces méthodes placent des marqueurs sur l'interface qui sont suivis au cours du temps. Les méthodes de capture d'interface quant à elles suivent implicitement l'interface au travers de l'évolution d'une fonction couleur. De nombreuses méthodes existent, on présente ici les principales :

- **Volume of fluid (VOF)** : Cette méthode utilise un maillage fixe découpé en cellules représentant des volumes. On associe alors à chacune de ces cellules une fraction volumique de fluide, cette proportion est alors résolue au cours du temps et la position de l'interface peut être reconstruite. Cette reconstruction a pour désavantage de ne fournir que peu d'informations viables sur l'interface. Cette méthode reste donc peu précise et est également difficile à mettre en œuvre en trois dimensions.
- **Méthode Level-Set (LS)** : Cette méthode repose sur la résolution implicite de l'interface au travers de la résolution d'une fonction auxiliaire dite fonction ligne de niveau, généralement la distance signée à l'interface. Cette fonction se doit d'admettre une valeur nulle à l'interface, ainsi au travers de la résolution d'une équation d'advection sur cette fonction ligne de niveau, l'interface est résolue. Cette méthode convient pour les problèmes à fort changement topologique mais présente le désavantage d'être non-conservative.
- **Arbitrary Lagrangian-Eulerian (ALE)** : La méthode repose sur une double description lagrangienne (maillage mobile) et eulérienne (maillage fixe), à chaque itération temporelle, le maillage autour de l'interface est reconstruit pour s'adapter à la forme de l'interface, ainsi chaque maille contient uniquement un fluide. L'ensemble de ces propriétés rend la méthode très précise mais difficile à mettre en œuvre en trois dimensions.
- **Front-Tracking (FT)** : La méthode utilise des marqueurs sans masse positionnés sur l'interface transportés suivant une description lagrangienne sur un maillage fixe. Cette méthode nécessite l'implémentation d'algorithmes pour les cas de coalescence et rupture d'interface et possède comme désavantage de ne pas conserver la masse.

2.2 Méthode d'interface diffuse

Les méthodes de suivi d'interface présentées précédemment décrivent toute l'interface comme une discontinuité, cependant il existe un second paradigme traitant l'interface comme une zone de transition continue, on parle alors d'interface diffuse. Dans ce second cas l'interface correspond donc à une zone de transition d'épaisseur connue et maîtrisée où cohabitent les deux phases, le traitement de l'interface est alors facilité, les gradients à l'interface étant finis. Ce concept d'interface diffuse date du XIX^{ème} siècle et est introduit par Van Der Waals.

L'intérêt de la communauté scientifique pour cette méthode apparaît dans les années 1950 avec la description de l'énergie libre par Ginzburg et Landau et son utilisation par Cahn et Hilliard en 1958 [6] pour obtenir une description thermodynamique de l'interface.

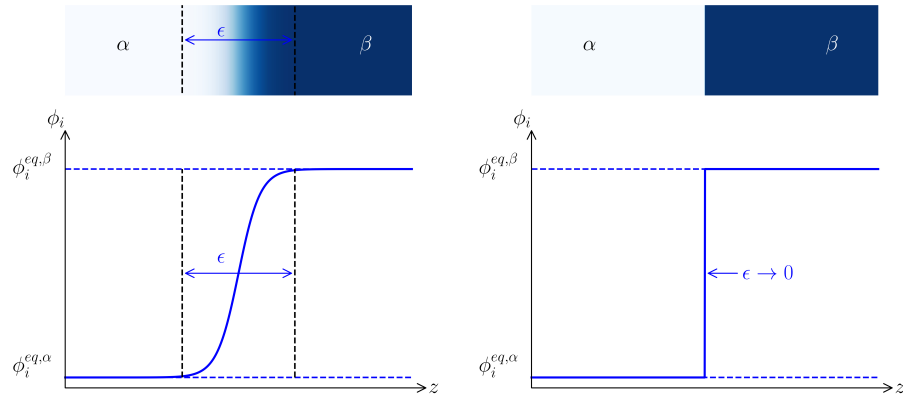


FIGURE 2.1 – Comparaison entre une interface raide et une interface diffuse

L'interface est alors suivie implicitement grâce à une fonction champ de phase définie à partir de grandeurs thermodynamiques au travers d'une variable champ de phase noté ϕ . Cette méthode aujourd'hui utilisée dans de nombreux domaines très divers.

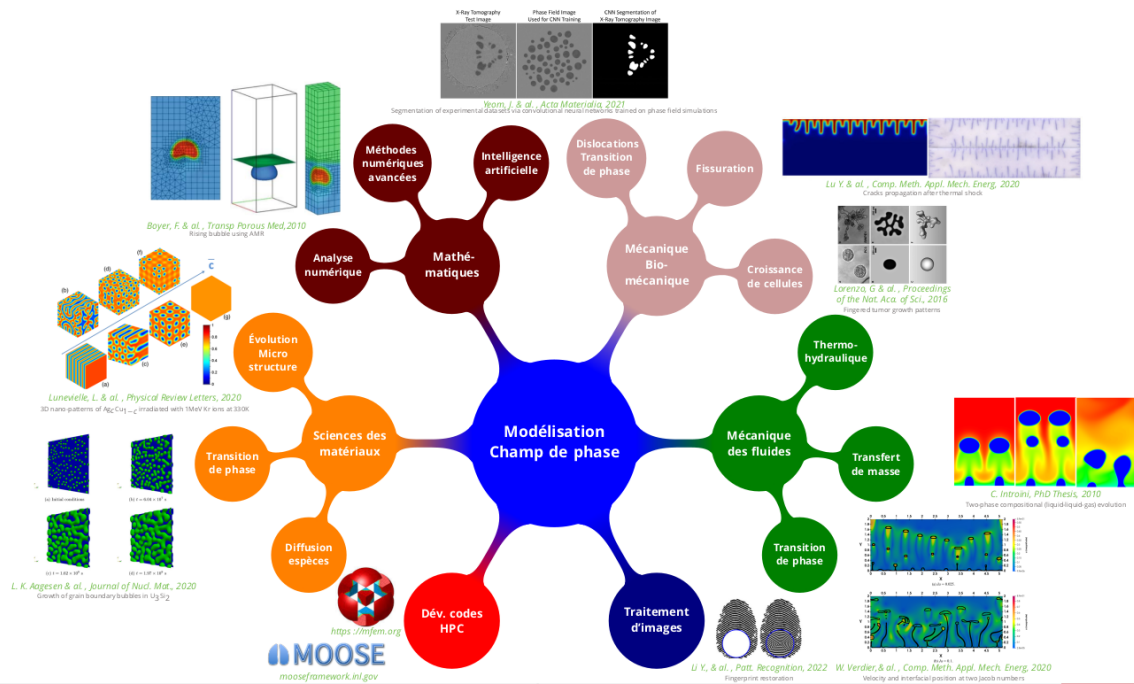


FIGURE 2.2 – Domaine d'application de la méthode champ de phase, tirée de [7]

2.2.1 Équation de Cahn-Hilliard généralisée

Comme expliqué précédemment la méthode de champ de phase repose sur le suivi d'une variable de phase (ou paramètre d'ordre) noté ϕ_i pour le composant i et contraint tel que :

$$\sum_i \phi_i = 1 \Rightarrow \phi_n = 1 - \sum_{i=1}^{n-1} \phi_i \quad (2.1)$$

Ainsi pour un mélange à n composants, seules $n - 1$ variables sont indépendantes nécessite un suivi. Dans certains cas le système peut également être décrit avec des variables non conservées telles que des indicatrices de phases ou des grandeurs liées à des réactions chimiques, cela peut être le cas pour le dioxyde de zirconium ZrO_2 présent dans le corium selon les conditions initiales. Le comportement de ces variables est alors régit par des équations de réaction-diffusion dites d'Allen-Cahn, dans notre étude ce type d'équation ne sera pas résolue car l'ensemble des paramètres d'ordre sont conservés. Dans le cadre de variables conservées les équations de Cahn-Hilliard pour n composants, avec $i \in \{1, \dots, n - 1\}$ s'écrivent sous la forme :

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \phi_i = \nabla \cdot \left(\sum_{j=1}^{n-1} \mathcal{M}_{ij} \nabla \left(\frac{\delta \mathbb{F}}{\delta \phi_j} \right) \right) \quad (2.2)$$

avec : \mathcal{M}_{ik} la mobilité (paramètre cinétique), ϕ le paramètre d'ordre, \mathbf{u} la vitesse et \mathbb{F} une fonctionnelle de Ginzburg-Landau généralisée [3] définit tel que :

$$\mathbb{F}[\phi_1, \dots, \phi_n] = \int_V \lambda \tilde{f}_0(\phi, \mathbf{x}, t) + \sum_{i=1}^{n-1} \sum_{j=1}^{n-1} \frac{1}{2} \kappa_{ij} \nabla \phi_i \cdot \nabla \phi_j dV \quad (2.3)$$

Où le premier terme représente la densité d'énergie liée aux valeurs locales de composition, traduisant l'équilibre des phases ainsi que leurs existences ou coexistence. Pour deux phases α et β , on rappelle l'équilibre thermodynamique donné par :

$$\left. \frac{\partial \tilde{f}}{\partial \phi_i} \right|_{\phi_i^{\alpha,eq}} = \left. \frac{\partial \tilde{f}}{\partial \phi_i} \right|_{\phi_i^{\beta,eq}} = \tilde{\mu}_i^{eq} \quad \Leftrightarrow \quad \tilde{\mu}_i^{\alpha,eq} = \tilde{\mu}_i^{\beta,eq} \quad (2.4a)$$

$$\tilde{f}_0^{\alpha,eq} - \sum_{i=1}^{n-1} \tilde{\mu}_i^{eq} \phi_i^{\alpha,eq} = \tilde{f}_0^{\beta,eq} - \sum_{i=1}^{n-1} \tilde{\mu}_i^{eq} \phi_i^{\beta,eq} \quad (2.4b)$$

$\tilde{\mu}_i^{eq}$ représente un potentiel de diffusion de l'élément i à l'équilibre.

Le second terme représente la contribution des interfaces, le coefficient κ , dit coefficient de gradient, tient compte du coût énergétique engendré par l'interface, par la suite ce paramètre pourra être relié à la tension de surface. Finalement la dérivé variationnelle de cette fonctionnelle d'énergie libre peut être définit comme un potentiel de diffusion $\tilde{\mu}$:

$$\frac{\delta \mathbb{F}}{\delta \phi_j} = \lambda \frac{\partial \tilde{f}_0}{\partial \phi_j} - \sum_{k=1}^{n-1} \kappa_{jk} \Delta \phi_k = \tilde{\mu}_j \quad (2.5)$$

avec λ un paramètre d'upsampling numérique ajouté pour augmenter l'épaisseur de l'interface, dans le cas où $\lambda = 1$ l'interface est d'épaisseur "réelle" soit de l'ordre de l'angström, les capacités de calcul ne permettant pas de pouvoir faire des calculs avec des maillages contenant de si petits éléments.

Le potentiel de diffusion peut être relié au potentiel chimique classique tel que :

$$\tilde{\mu}_i = \frac{1}{V_m} (\mu_i - \mu_n) \quad (2.6)$$

Avec $\tilde{\mu}_i$ (en $J.m^{-3}$) représente le potentiel de diffusion de l'élément i , et V_m le volume molaire supposé constant dans tout le système.

Dans le cas où $\tilde{\kappa} = \bar{0}$ on retrouve une équation d'advection-diffusion classique, dans le cas contraire on obtient une équation d'ordre 4. Une des principale difficulté dans la mise en place de méthode champ de phase repose sur le paramétrage des simulations.

2.2.2 Couplage avec les équations de Navier-Stokes incompressible

Dans le cadre de cette étude les équations de Cahn-Hilliard sont couplées aux équations de conservation de masse et de quantité de mouvement incompressible sous l'approximation de Boussinesq, d'après [8] le système d'équations s'écrit sous la forme :

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (2.7a)$$

$$\rho^* \left(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \right) = -\nabla P + \eta \Delta \mathbf{u} + \sum_{i=1}^{n-1} \tilde{\mu}_i \nabla \phi_i + \rho(\phi) \mathbf{g} \quad (2.7b)$$

avec \mathbf{u} la vitesse, P la pression, μ_i le potentiel chimique du composant i , $\mathbf{g} = \{0, 0, -g\}^T$, η la viscosité cinématique supposée constante, ρ^* la masse volumique du solvant
L'approximation de Boussinesq est utilisé pour calculé la densité dans le terme de flottabilité :

$$\rho(\phi) = \rho^* \left(1 + \sum_{i=1}^{n-1} \beta_i \phi_i \right) \quad (2.8)$$

Les paramètres β_i sont à déterminer en fonction du système étudié, ρ^* correspond à une masse volumique de référence, généralement celle du solvant. L'équation de Cahn-Hilliard étant d'ordre 4, une résolution implicite est alors préférée pour les simulations.

2.2.3 Paysage thermodynamique analytique

L'objectif présenté dans [9] est de d'obtenir une formulation analytique du terme homogène de la fonctionnelle de Ginzburg-Landau. Dans le cas binaire, cette contribution est de la forme d'un double puits, généralement un polynôme de degré 4 :

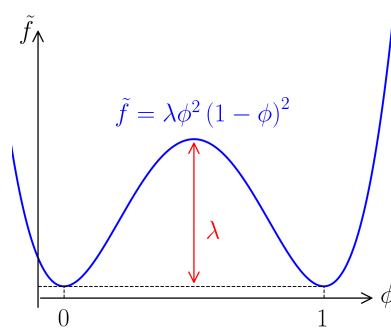


FIGURE 2.3 – Description classique du terme homogène de la description de l'énergie pour un système binaire complètement immiscible

L'objectif est de généraliser ce double puits pour un système n-aire, ainsi on introduit un pseudo grand potentiel correspondant à la hauteur énergétique nécessaire pour changer de minimum d'énergie [3].

$$\Omega^* = \Omega - \Omega^{eq} = \tilde{g}^{liq} - \sum_i \tilde{\mu}_i^{eq} \phi_i - \left(\tilde{g}^{liq,eq} - \sum_i \tilde{\mu}_i^{eq} \phi_i^{eq} \right) \quad (2.9)$$

avec \tilde{g}^{liq} l'énergie libre de Gibbs, utilisé comme grandeur d'intérêt ici puisque le système est supposé isotherme et isobare. Les bases thermodynamiques étant peu développées aux points d'intérêt (Température supérieure à 2000 °C) on cherche à définir ce potentiel grâce à une formulation analytique en double puits que l'on note :

$$\Omega^* = P^{dis} \times P^{cont} \quad (2.10)$$

Où P^{dis} , P^{cont} représente deux paraboloïdes correspondant à la phase dispersée et continue. Dans le cas ternaire, avec les éléments A et B d'intérêt, les paraboloïdes sont de la forme :

$$P^k = \left(\frac{\cos(\theta^k) (\phi_A - \phi_A^{eq,k}) + \sin(\theta^k) (\phi_B - \phi_B^{eq,k})}{a^k} \right)^2 + \left(\frac{-\sin(\theta^k) (\phi_A - \phi_A^{eq,k}) + \cos(\theta^k) (\phi_B - \phi_B^{eq,k})}{b^k} \right)^2 \quad (2.11)$$

Avec $k = \{dis, cont\}$ la phase (dispersée ou continue), a (resp. b) le demi-petit (resp. demi-grand) puits, θ^k l'angle de rotation associé au puits de la phase k .

On trace alors en exemple le cas le plus simple de paysage :

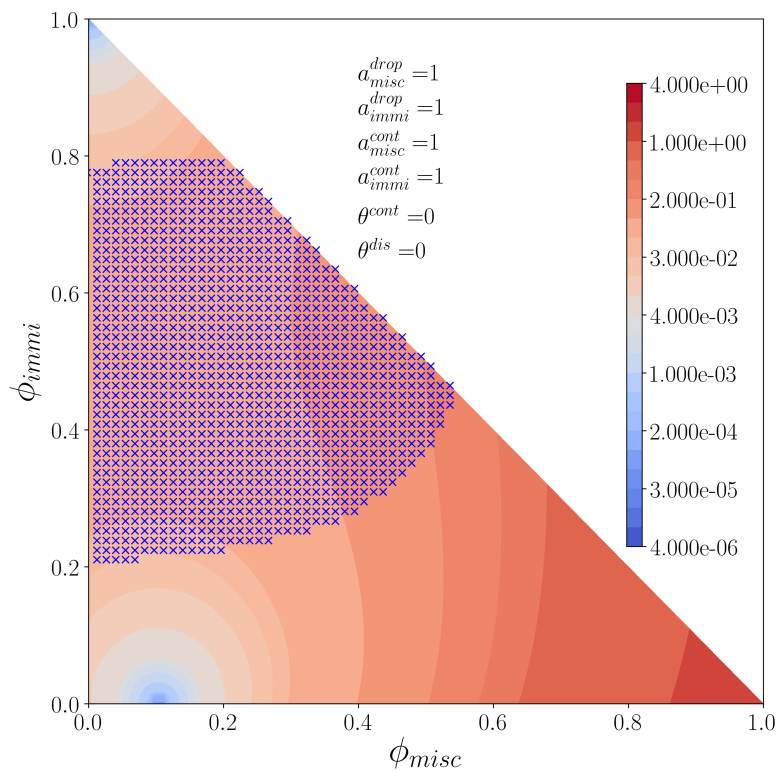


FIGURE 2.4 – Exemple de paysage thermodynamique, la zone bleu représente la zone instable

Les éléments de calculs pour la détermination de la zone instable sont présentés en annexe D. Une représentation dans le plan est possible pour le cas ternaire, pour les cas comprenant un nombre plus important de paramètre d'ordre la visualisation semble plus complexe. Ainsi cette formulation possède deux avantages, en premier lieu elle évite un couplage entre le code CFD et un solveur d'équilibre thermodynamique (Open-Calphad par exemple) réduisant significativement le temps de développement. En effet pour les cas où le paysage est connu il est alors possible de calibrer les paramètres des paraboloïdes pour obtenir une forme analytique proche du paysage réel. Dans le cas d'un paysage inconnu, par manque d'information thermodynamique, ce paysage permet d'avoir une description cohérente pour des simulations qualitatives.

CHAPITRE 3

Étude hydrodynamique

3.1 Expérience numérique

L'objectif est de réaliser numériquement l'expérience proposée par Abhijit Rao et al. dans [5]. Pour cette expérience une goutte composée d'Acetonitrile et de Chlorobenzene est placée dans de l'eau. l'acetonitrile est miscible dans l'eau contrairement au chlorobenzene qui est immiscible. Initialement la goutte est plus légère que l'eau environnante et monte puis sous l'effet du transfert de masse la densité de la goutte augmente jusqu'à une inversion du rapport de densité conduisant à la redescende de la goutte.

3.1.1 Choix des conditions initiales

Les conditions initiales choisies pour la concentration sont de la forme tangente hyperbolique.

$$\phi_i(\mathbf{x}, t = 0) = \frac{\phi_i^{init,cont} + \phi_i^{init,disp}}{2} + \frac{\phi_i^{init,cont} - \phi_i^{init,disp}}{2} \tanh\left(\frac{\sqrt{(x - x_0)^2 + (y - y_0)^2} - R}{\varepsilon}\right) \quad (3.1)$$

Avec (x_0, y_0) les coordonnées du centre de la goutte, R le rayon de la goutte, ε l'épaisseur de l'interface (paramètre numérique) et $\phi_i^{init,cont}$ (resp. $\phi_i^{init,disp}$) la concentration initiale de l'élément i dans la phase continue (resp. dispersée) .

Cette solution analytique provient d'un problème avec une interface plane (sans courbure), dans la littérature il n'existe pas de solution analytique pour une interface courbée, l'effet de Gibbs-Thomson n'est donc pas pris en compte, ainsi on observe un léger mouvement de l'interface lors du premier pas de temps.

Pour s'assurer de la sphéricité de la goutte lors de la simulation on calcule le nombre adimensionné de Bond représentant le ratio entre les forces de gravité et la tension de surface tel que :

$$Bo = \frac{\Delta\rho g D^2}{\sigma} \quad (3.2)$$

avec $\Delta\rho$ la différence de densité entre les deux phases, D le diamètre de la goutte et σ la tension de surface. On considère que pour $Bo \ll 1$ la tension de surface domine et la goutte reste sphérique.

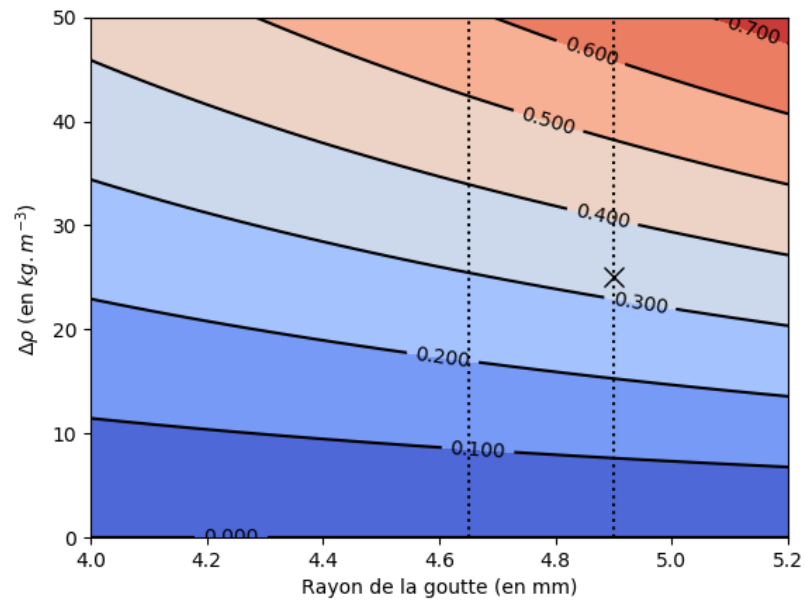


FIGURE 3.1 – Valeur du nombre de Bond en fonction de la différence de densité entre les phases et le rayon de la goutte, le marqueur représente l'état initial

Il est alors possible, dans notre cas, de discuter de la sphéricité de la goutte au vu de la valeur ici $Bo = 0.32$

CHAPITRE 4

Comparaison avec un cas de la littérature

L'objectif de cette partie est de comparer les résultats obtenus par TrioCFD avec ceux présentés par Rao et al. [5]. Dans leur article Rao et al. présentent une expérience ainsi qu'un modèle CFD associé à l'expérience permettant de modéliser le transfert de masse pour un cas ternaire.

4.1 Présentation du cas de référence

L'objectif de l'expérience est de visualiser la diffusion dans de l'eau de l'acétonitrile (miscible) contenue initialement dans une goutte composée également de chlorobenzène (non miscible). Ainsi à l'instant initial une goutte contenant un mélange d'acétonitrile et de chlorobenzène est formée, cette dernière étant plus légère que l'eau dans laquelle elle se trouve va commencer à monter, puis sous l'effet de la diffusion massique un changement de rapport de densité va subvenir et la goutte va redescendre.

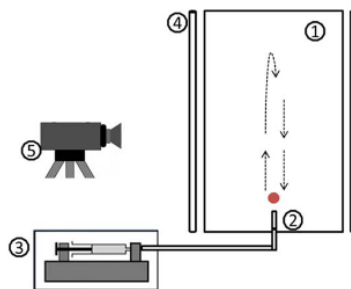


FIGURE 4.1 – Schéma de l'expérience, d'après [5]

L'article présente également un modèle CFD, dans celui-ci le transfert de masse est calculé semi-empiriquement, à chaque itération la position de la goutte obtenue numériquement est comparée à la position obtenue expérimentalement, puis une régulation est mise en place pour déterminer un coefficient de transfert de masse via des corrélations pour faire diminuer cet écart, le "modèle" alors obtenu n'est pas prédictible et une expérience physique est toujours nécessaire pour réaliser une simulation. L'algorithme est présenté en figure 4.2,

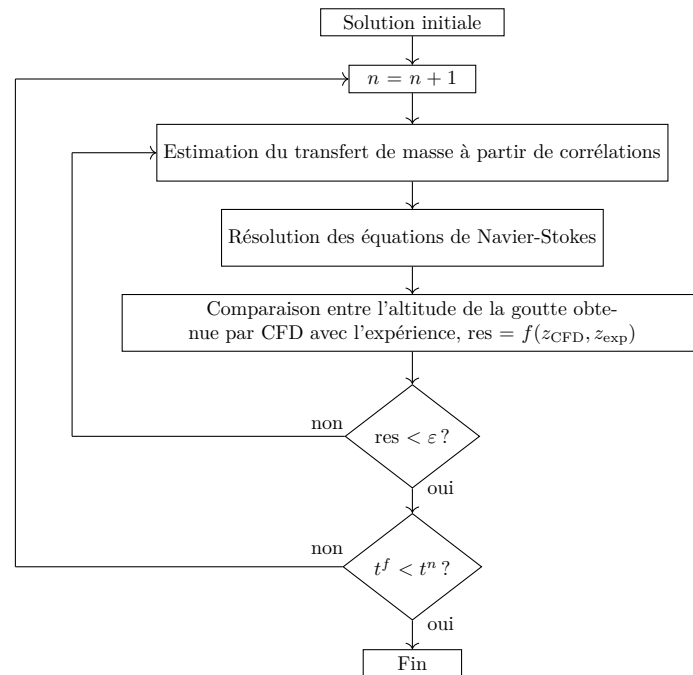


FIGURE 4.2 – Algorithme de résolution développé par Rao et al.[5]

4.2 Simulation réalisées

4.2.1 Choix du paysage thermodynamique

L'objectif est alors d'utiliser un paysage de ce type pour résoudre un problème donné, pour cela quelques règles sont à garder en tête pour le choix d'un paysage thermodynamique. Dans un premier temps il est essentiel que les conditions initiales ne soient pas incluse dans la lacune de miscibilité, ce qui entraînerait une séparation de phase immédiate, un exemple de paysage de ce type est donnée en figure 4.3 et les résultats sont présentés par la figure 4.4, on y observe une séparation de phase dès les premiers instants du calcul .

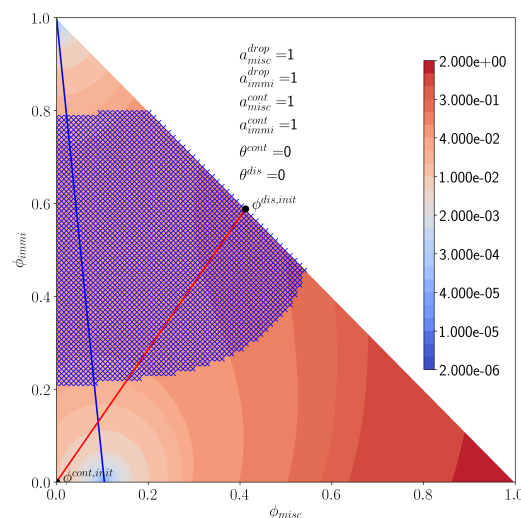


FIGURE 4.3 – Paysage thermodynamique, la droite bleu relie les deux concentrations d'équilibre, la droite rouge relie les deux concentrations initiales

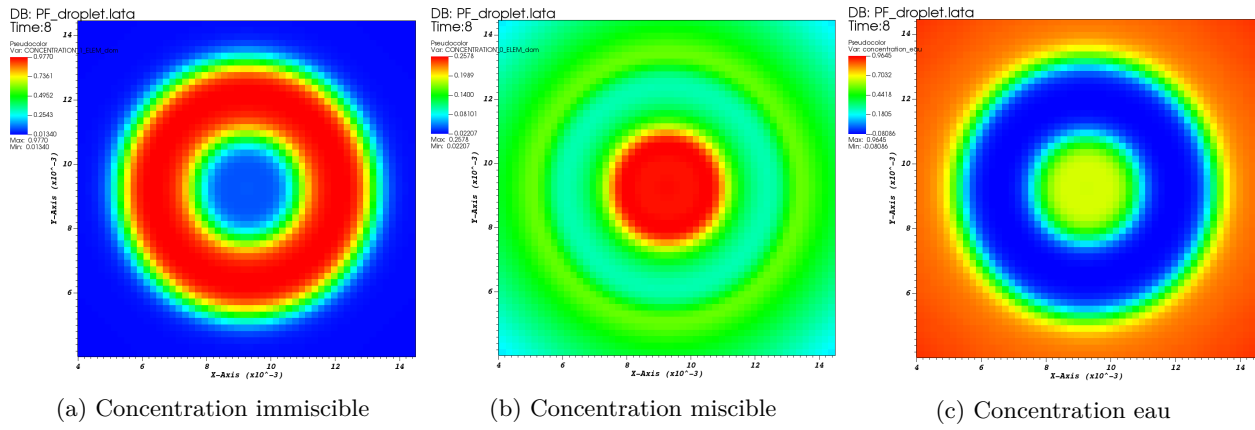


FIGURE 4.4 – Séparation de phase dans la goutte

Sur la figure 4.4 on observe la présence de deux phases à l'intérieur de la goutte, une première uniquement composée de l'élément immiscible et la seconde composée d'eau et de l'élément miscible. On présente un deuxième paysage en figure 4.5 Comme expliqué précédemment ce paysage représente l'énergie libre volumique liée à l'équilibre des phases, ainsi on cherche à ce que les conditions initiales (ici aux extrémités de la droite rouge) soit hors de la zone instable et que la composition d'équilibre globale (placé à l'intersection des droites bleu et rouge) soit placée dans la lacune de miscibilité. Ainsi ce paysage semble correspondre parfaitement à ces deux critères. On souhaite également limiter l'entrée d'eau dans la goutte en régime transitoire, cette condition se traduit par égalité entre la somme des deux compositions et l'unité. Hors ici le gradient d'énergie favorise un "chemin" différent. Pour vérifier cette présence d'eau, on considère alors un calcul statique (sans résolution des équations de Navier-Stokes) et on trace les concentrations à différents instants. On observe dès lors une importante intrusion d'eau dans la goutte dès les premiers instants, puis une séparation de phase est observable à l'intérieur de la goutte, phénomène que l'on souhaite absolument éviter.

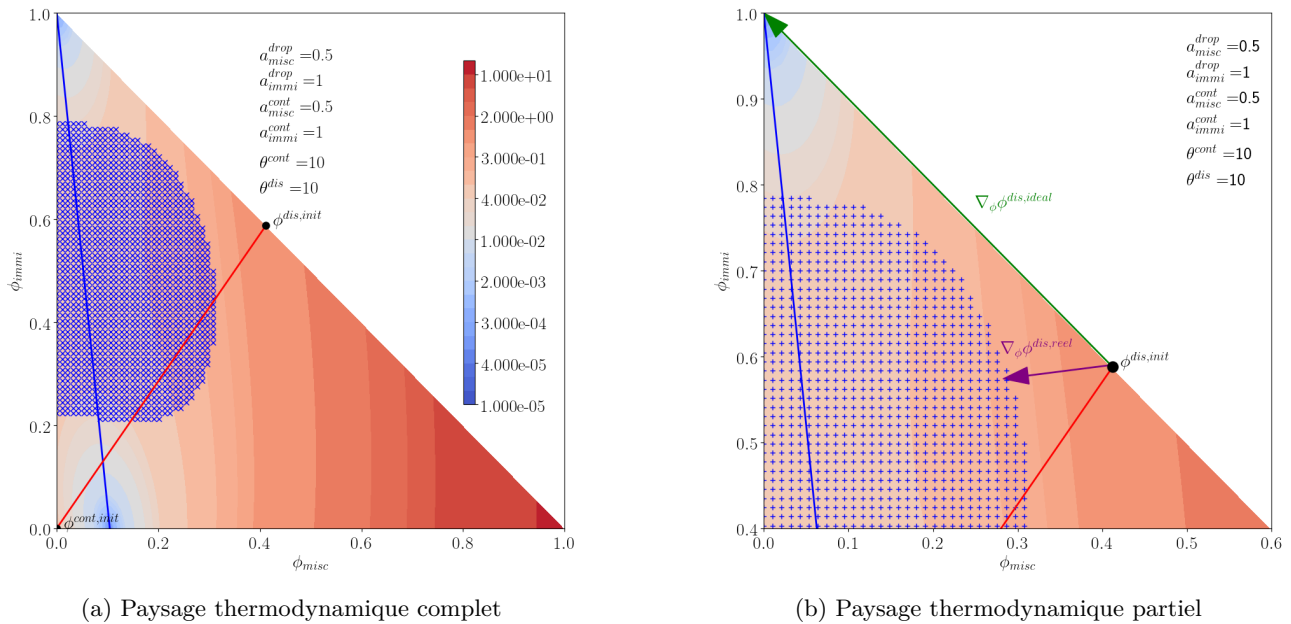


FIGURE 4.5 – Paysage thermodynamique et direction privilégiée par le système, la flèche verte représente le cas idéal sans intrusion d'eau et la flèche violette le cas associé au paysage thermodynamique, la zone bleu correspond à la zone instable

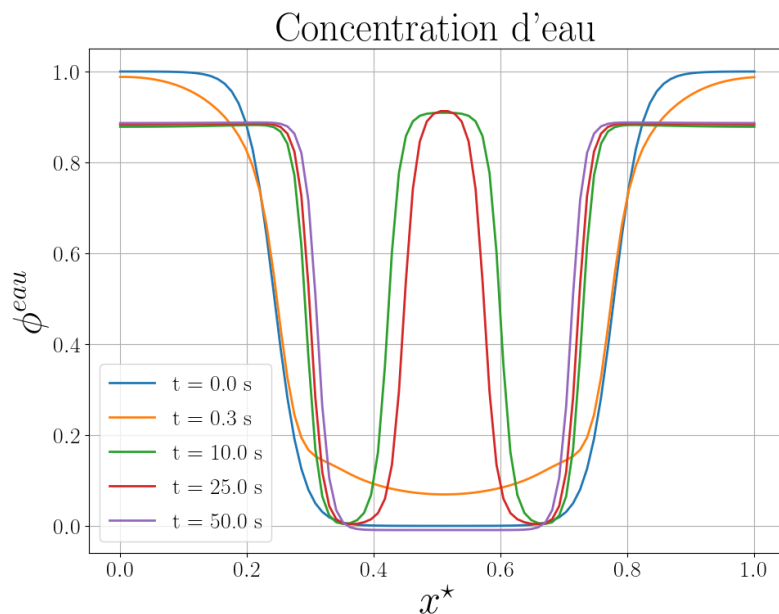


FIGURE 4.6 – Concentration d'eau dans le domaine, $x^* = x/L_x$ représente une longueur adimensionnée

Finalement au travers de ces deux exemples, nous avons montré que pour qu'un paysage soit cohérent et potentiellement utilisable certaines conditions sont à remplir. Les critères concernent la position des conditions initiales, qui doivent être en dehors de la zone instable, un second critère concerne l'absence nécessaire de la zone instable sur le "chemin" de chacune des phases et finalement une direction initiale privilégiant une imperméabilité à l'eau dans la goutte.

4.2.2 Validation d'un paysage

Dans la suite on utilisera le paysage présenté en figure 4.7 répondant à l'ensemble de ces critères.

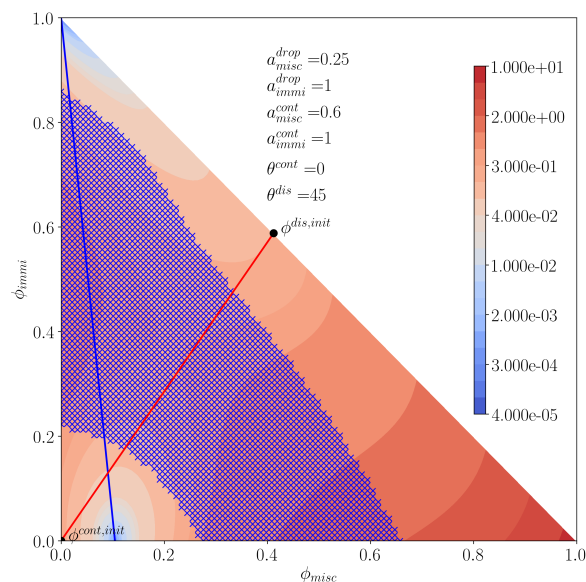


FIGURE 4.7 – Paysage thermodynamique choisi pour la simulation

On cherche à tracer la solution stationnaire, sans couplage avec les équations de Navier-Stokes, on observe alors une non-monotonie de l'interface pour le composant miscible, de plus à l'intérieur de la goutte la concentration de composant miscible est négative et la composition d'élément immiscible est quant à elle supérieure à 1, de façon à obtenir une somme des deux concentrations égale à l'unité.

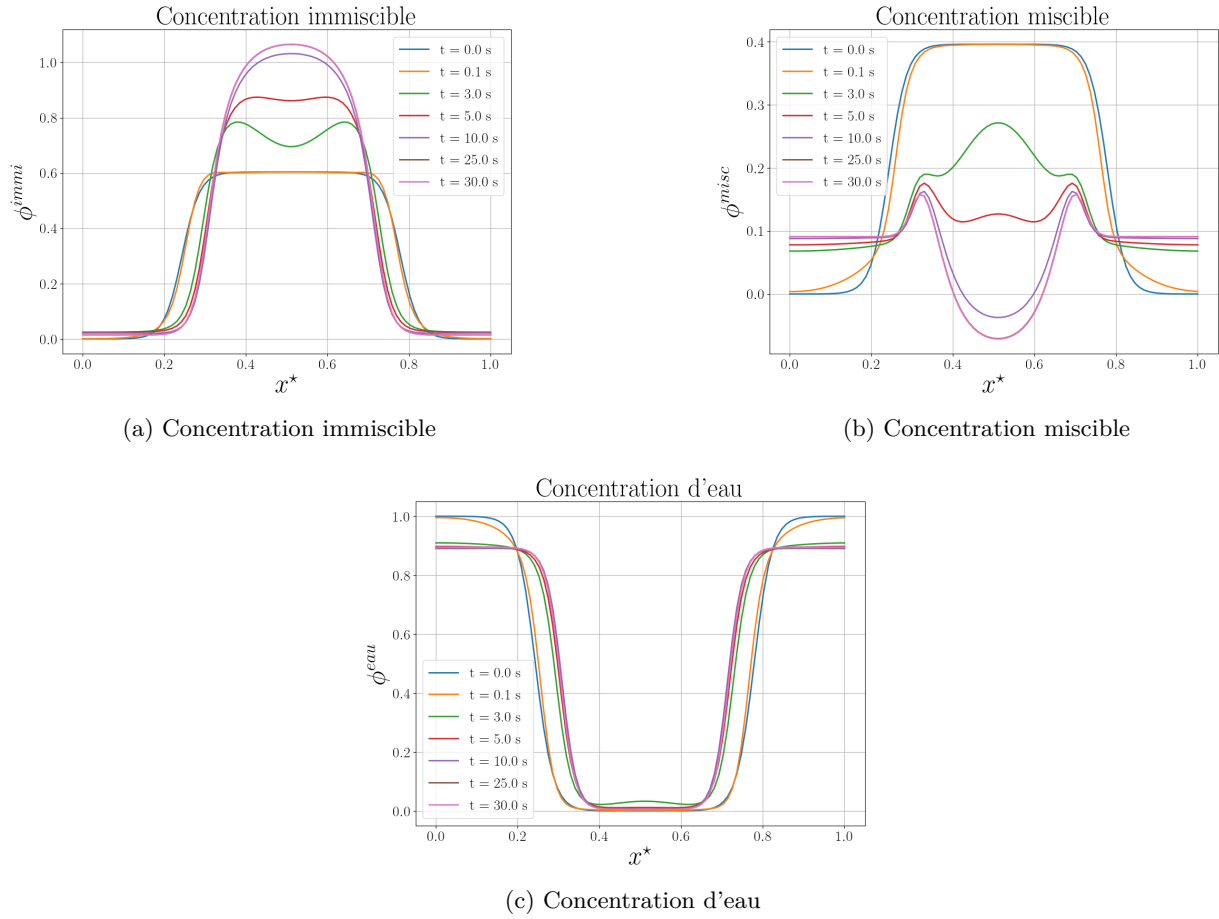


FIGURE 4.8 – Variation de la concentration des différents composants au cours du temps

On remarque alors une non-monotonie de l'interface. L'article [10] présente une paramétrisation du coefficient de gradient pour traiter les non monotonicité d'interface, cette paramétrisation utilise la symétrie de la matrice coefficient de gradient pour la réécrire sous la forme :

$$\bar{\kappa} = \alpha \mathbf{R} \mathbf{D} \mathbf{R}^T \quad (4.1)$$

avec : \mathbf{R} une matrice de rotation et \mathbf{D} une matrice diagonale de la forme :

$$\mathbf{R} = \begin{pmatrix} \cos \varphi & -\sin \varphi \\ \sin \varphi & \cos \varphi \end{pmatrix} \quad (4.2)$$

$$\mathbf{D}(d) = \begin{pmatrix} 2 & 0 \\ 0 & d \end{pmatrix} \quad (4.3)$$

La cohérence avec le système binaire est assurée par le coefficient α obtenu tel que :

$$\alpha = \frac{\kappa^{bin}}{2 \cos^2 \varphi + d \sin^2 \varphi} \quad (4.4)$$

On présente les différents résultats issus de la paramétrisation du coefficient de gradient :

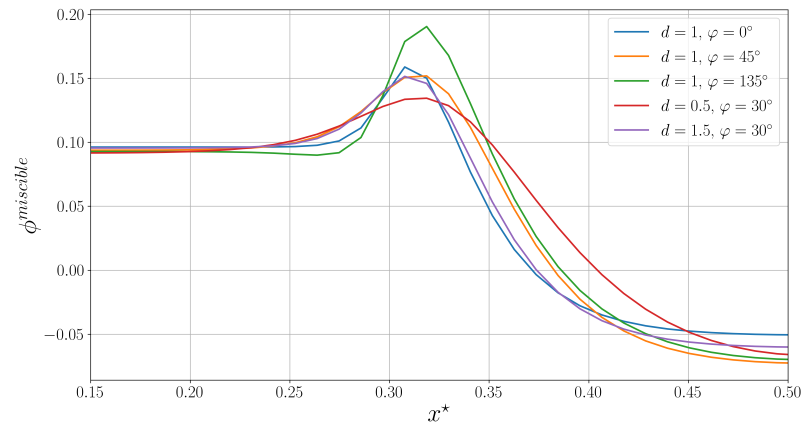


FIGURE 4.9 – Profils de l'interface pour différents paramétrages du coefficient de gradient

Bibliographie

- [1] M.A. RASOLOFOMANANA. « Modélisation à interface diffuse et simulation numérique de la thermohydraulique d'un bain liquide diphasique avec transfert de masse interfacial ». Thèse de doct.
- [2] Romain Le TELLIER. « Interfaces en physique des réacteurs nucléaires - Contribution à la modélisation et au développement de méthodes numériques associées en neutronique et physique du corium ». In : (2019). Publisher : Unpublished. DOI : [10.13140/RG.2.2.27006.84801](https://doi.org/10.13140/RG.2.2.27006.84801). URL : <http://rgdoi.net/10.13140/RG.2.2.27006.84801> (visité le 05/06/2023).
- [3] Clément CARDON. « Modélisation de la diffusion multi-composants dans un bain de corium diphasique oxyde-métal par une méthode d'interface diffuse ». Thèse de doctorat. Université Paris-Saclay (ComUE), 21 nov. 2016. URL : <https://www.theses.fr/2016SACLX096> (visité le 12/04/2023).
- [4] Vaishnavi TIWARI. « A consistent approach for coupling lumped-parameter and phase-field models for in-vessel corium to thermodynamic databases. » Thèse de doct. Université Paris Saclay (COMUE), 26 nov. 2019. URL : <https://theses.hal.science/tel-02489384> (visité le 06/06/2023).
- [5] Abhijit RAO et al. « Influence of unsteady mass transfer on dynamics of rising and sinking droplet in water : Experimental and CFD study ». In : *AIChE Journal* 61.1 (2015). _eprint : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/aic.14612>, p. 342-354. ISSN : 1547-5905. DOI : [10.1002/aic.14612](https://doi.org/10.1002/aic.14612). URL : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/aic.14612> (visité le 29/03/2023).
- [6] John W. CAHN et John E. HILLIARD. « Free Energy of a Nonuniform System. I. Interfacial Free Energy ». In : *The Journal of Chemical Physics* 28.2 (fév. 1958), p. 258-267. ISSN : 0021-9606, 1089-7690. DOI : [10.1063/1.1744102](https://doi.org/10.1063/1.1744102). URL : <https://pubs.aip.org/aip/jcp/article/28/2/258-267/74794> (visité le 07/06/2023).
- [7] Clément INTROÏNI et Romain LE TELLIER. *Suivi d'interfaces diffuses par une méthode de champ de phase, Séminaire Méthodes d'Interfaces, organisé par le réseau de numériciens de Cadarache/IRESNE*.
- [8] Junseok KIM. « Phase-Field Models for Multi-Component Fluid Flows ». In : *Communications in Computational Physics* 12.3 (sept. 2012). Publisher : Cambridge University Press, p. 613-661. ISSN : 1815-2406, 1991-7120. DOI : [10.4208/cicp.301110.040811a](https://doi.org/10.4208/cicp.301110.040811a). URL : <https://www.cambridge.org/core/journals/communications-in-computational-physics/article/phasefield-models-for-multicomponent-fluid-flows/0672FBD318BBE2621A51AE0F2C9C2FE3> (visité le 04/05/2023).
- [9] *Numerical Simulation of the Dynamics of a Multicomponent Droplet in Water using the Phase-Field Model of TrioCFD Code*. URL : <https://fr.overleaf.com/project/63fc85bf75cafd151f3ae56b> (visité le 04/05/2023).
- [10] M. A. RASOLOFOMANANA et al. « Diffuse-interface modelling of multicomponent diffusion and phase separation in the U-O-Zr ternary system ». In : *Computational Materials Science* 214 (1^{er} nov. 2022), p. 111650. ISSN : 0927-0256. DOI : [10.1016/j.commatsci.2022.111650](https://doi.org/10.1016/j.commatsci.2022.111650). URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S092702562200386X> (visité le 09/03/2023).
- [11] Peder AURSAND et al. « The spinodal of single- and multi-component fluids and its role in the development of modern equations of state ». In : *Fluid Phase Equilibria* 436 (25 mar. 2017), p. 98-112. ISSN : 0378-3812. DOI : [10.1016/j.fluid.2016.12.018](https://doi.org/10.1016/j.fluid.2016.12.018). URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0378381216306227> (visité le 17/04/2023).
- [12] Nikolay Ivanov KOLEV. *Multiphase Flow Dynamics 5 : Nuclear Thermal Hydraulics*. Cham : Springer International Publishing, 2015. ISBN : 978-3-319-15155-7 978-3-319-15156-4. DOI : [10.1007/978-3-319-15156-4](https://doi.org/10.1007/978-3-319-15156-4). URL : <https://link.springer.com/10.1007/978-3-319-15156-4> (visité le 12/04/2023).

ANNEXE A

Solution analytique pour une interface plane

La solution analytique stationnaire permet de donner des conditions initiales cohérentes, ainsi on s'intéresse au cas binaire "classique" (avec un seul paramètre d'ordre noté ϕ) avec des points d'équilibres placés aux extremums, le composé est choisi comme complètement miscible. La densité d'énergie est alors choisit sous une forme analytique polynomiale d'ordre 4 en double puits :

$$f(\phi) = \phi^2(1 - \phi)^2 \quad (\text{A.1})$$

On rappelle fonctionnelle de Ginzburg-Landau :

$$\mathbb{F} = \int_V \lambda f(\phi) + \frac{1}{2} \kappa ||\nabla \phi||^2 dV \quad (\text{A.2})$$

Avec λ un paramètre d'upsampling présenté précédemment, κ un coefficient de gradient. La condition d'équilibre est défini tel que :

$$\kappa \frac{d^2 \phi}{dz^2} = \lambda \frac{df(\phi)}{d\phi} \quad (\text{A.3})$$

L'astuce consiste alors par multiplier l'équation par $\frac{d\phi}{dz}$ puis d'intégrer entre 0 et z , soit :

$$\kappa \frac{d^2 \phi}{dz^2} \frac{d\phi}{dz} = \lambda \frac{df(\phi)}{d\phi} \frac{d\phi}{dz} \quad (\text{A.4})$$

$$\Rightarrow \kappa \int_0^z \frac{d^2 \phi}{dz^2} \frac{d\phi}{dz} dz = \int_0^z \frac{df(\phi)}{dz} dz \quad (\text{A.5})$$

Loin de l'interface, en $z = 0$ on considère le système à l'équilibre soit $\frac{d\phi}{dz} = 0$ et on fixe une condition au limite de type Dirichlet homogène :

$$\phi(z = 0) = 0 \Rightarrow f(0) = 0 \quad (\text{A.6})$$

Finalement le résultat de l'intégration précédente nous donne :

$$\frac{\kappa d\phi}{2 dz} = \lambda f(\phi) \quad (\text{A.7})$$

En remplaçant $f(\phi)$ par sa formulation analytique A.1 :

$$\frac{d\phi}{\phi(1 - \phi)} = \sqrt{\frac{2\lambda}{\kappa}} dz \quad (\text{A.8})$$

Classiquement, la résolution s'effectue grâce un changement de variable en posant $u = 2\phi - 1$ soit $du = 2d\phi$

$$\begin{aligned}\frac{d\phi}{\phi(1-\phi)} &= \frac{\frac{du}{2}}{\left(\frac{u+1}{2}\right)\left(1-\frac{u+1}{2}\right)} \\ &= \frac{2du}{(1+u)(1-u)} \\ &= 2\frac{du}{1-u^2}\end{aligned}$$

Finalement l'équation A.8 devient :

$$\frac{du}{1-u^2} = \frac{1}{2}\sqrt{\frac{2\lambda}{\kappa}}dz \quad (\text{A.9})$$

On remarque que le termes de gauche correspond à la dérivée de la fonction réciproque de la tangente hyperbolique, soit :

$$\operatorname{arctanh}(u) = \frac{1}{2}\sqrt{\frac{2\lambda}{\kappa}}z + C \quad (\text{A.10})$$

Avec C une constante d'intégration. En réutilisant le changement de variable il est immédiat que :

$$\phi(z) = \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \tanh\left(\frac{1}{2}\sqrt{\frac{2\lambda}{\kappa}}z + C\right) \quad (\text{A.11})$$

La constante C peut être déterminé à partir d'une valeur moyenne du paramètre d'ordre, cette résolution ne sera pas explicité ici.

ANNEXE B

Calcul du coefficient de gradient à partir de la tension de surface

Cette deuxième annexe présente la méthode de calcul des coefficients de gradient à partir de la tension de surface qui est une donnée physique du système. Physiquement la tension interfaciale σ représente l'excès d'énergie libre par unité de surface associé à la présence d'une interface entre deux phases distinctes, on peut ainsi la écrire :

$$\sigma = \frac{\mathbb{F} - \mathbb{F}^{hom}}{S} \quad (\text{B.1})$$

Où S représente la surface de l'interface, \mathbb{F} l'énergie libre du système et \mathbb{F}^{hom} l'énergie libre homogène du système, c'est-à-dire l'énergie libre du système dénuée d'interface. Dans un premier temps on rappelle la forme des fonctionnelles de Ginzburg-Landau associées à ses deux systèmes :

$$\begin{aligned} \mathbb{F} &= \int_V \sum_{i=1}^{n-1} \sum_{j=1}^{n-1} \frac{\kappa_{ij}}{2} \nabla \phi_i \cdot \nabla \phi_j + f(\phi_1, \dots, \phi_{n-1}) - \sum_1^{n-1} \tilde{\mu}_i^{eq} \phi_i dV \\ \mathbb{F}^{hom} &= \int_V f^{\alpha, eq} - \sum_1^{n-1} \tilde{\mu}_i^{eq} \phi_i^{\alpha, eq} dV \end{aligned}$$

Ainsi en combinant les deux équations précédentes :

$$\sigma = \int_V \sum_{i=1}^{n-1} \sum_{j=1}^{n-1} \frac{\kappa_{ij}}{2} \nabla \phi_i \cdot \nabla \phi_j + f(\phi_1, \dots, \phi_{n-1}) - f^{\alpha, eq} - \sum_1^{n-1} \tilde{\mu}_i^{eq} (\phi_i - \phi_i^{\alpha, eq}) dV \quad (\text{B.2})$$

Dans le cas unidimensionnel suivant z l'équation précédente devient :

$$\sigma = \int_0^L \sum_{i=1}^{n-1} \sum_{j=1}^{n-1} \frac{\kappa_{ij}}{2} \frac{d\phi_i}{dz} \frac{d\phi_j}{dz} + f(\phi_1, \dots, \phi_{n-1}) - f^{\alpha, eq} - \sum_1^{n-1} \tilde{\mu}_i^{eq} (\phi_i - \phi_i^{\alpha, eq}) dz \quad (\text{B.3})$$

La condition d'équilibre s'écrit :

$$\sum_{j=1}^{n-1} \kappa_{i,j} \frac{d^2 \phi_j}{dz^2} = \left. \frac{\partial f}{\partial \phi_i} \right|_{\phi_j \neq i} - \tilde{\mu}_i^{eq} \quad (\text{B.4})$$

Après multiplication par $\frac{d\phi_i}{dz}$ et intégration on trouve :

$$\sigma = \int_0^L \sum_{i=1}^{n-1} \sum_{j=1}^{n-1} \kappa_{i,j} \frac{d\phi_i}{dz} \frac{d\phi_j}{dz} dz \quad (\text{B.5})$$

On retrouve alors la relation permettant la détermination de ce coefficient dans le cas binaire en posant $n = 2$

$$\sigma = \int_0^L \kappa^{bin} \left(\frac{d\phi}{dz} \right)^2 dz \quad (\text{B.6})$$

On cherche alors une formulation analytique du terme $\frac{d\phi}{dz}$, pour cela on rappelle l'équation du profil du paramètre d'ordre ϕ à l'équilibre :

$$\kappa^{bin} \frac{d^2\phi}{dz^2} = \lambda \left(\frac{\partial \tilde{f}}{\partial \phi} - \tilde{\mu}^{eq} \right) \quad (\text{B.7})$$

Cette équation est alors multiplié par $\frac{d\phi}{dz}$, puis intégrée de 0 à z :

$$\begin{aligned} \kappa^{bin} \frac{d\phi}{dz} \frac{d^2\phi}{dz^2} &= \lambda \frac{d\phi}{dz} \frac{\partial \tilde{f}}{\partial \phi} - \lambda \frac{d\phi}{dz} \tilde{\mu}^{eq} \\ \int_0^z \kappa^{bin} \frac{d\phi}{dz} \frac{d^2\phi}{dz^2} dz &= \lambda \int_0^z \frac{d\phi}{dz} \frac{\partial \tilde{f}}{\partial \phi} - \frac{d\phi}{dz} \tilde{\mu}^{eq} dz \\ \int_0^z \kappa^{bin} \frac{d\phi}{dz} \frac{d^2\phi}{dz^2} dz &= \lambda \left(\int_0^z \frac{\partial \tilde{f}}{\partial z} dz - \int_{\phi^{\alpha,eq}}^{\phi} \tilde{\mu}^{eq} d\phi \right) \\ \left[\frac{1}{2} \kappa^{bin} \left(\frac{d\phi}{dz} \right)^2 \right]_0^z &= \lambda \left([\tilde{f}]_0^z - [\tilde{\mu}^{eq} \phi]_{\phi^{\alpha,eq}}^{\phi} \right) \end{aligned}$$

Par hypothèse, en $z = 0$, loin de l'interface, la phase est à l'équilibre $\phi = \phi^{\alpha,eq}$ soit $\frac{d\phi}{dz} \Big|_{z=0} = 0$, finalement on trouve :

$$\frac{d\phi}{dz} = \sqrt{\frac{2\lambda}{\kappa^{bin}} \left(\tilde{f} - \tilde{\mu}^{eq} \phi - (\tilde{f}^{\alpha,eq} - \tilde{\mu}^{eq} \phi^{\alpha,eq}) \right)} = \sqrt{\frac{2\lambda \Omega^*}{\kappa^{bin}}} \quad (\text{B.8})$$

L'équation (B.6) peut alors se réécrire :

$$\sigma = \int_{\phi^{\alpha,eq}}^{\phi^{\beta,eq}} \sqrt{2\lambda \kappa^{bin} \Omega^*} d\phi \quad (\text{B.9})$$

Sauf mention contraire, dans le cadre de l'étude on considère :

$$\bar{\kappa} = \begin{pmatrix} \kappa^{bin} & 0 \\ 0 & \kappa^{bin} \end{pmatrix} \quad (\text{B.10})$$

ANNEXE C

Détermination des paramètres pour des simulations

L'objectif est de se placer dans le cas binaire, ainsi on pose $\phi_B^k = \phi_B^{eq,k}$ et $\phi_A^k = \phi^k$.

$$\Omega^* = P^{disp} \times P^{cont}$$

$$= (\phi - \phi^{eq,disp})^2 (\phi - \phi^{eq,cont})^2 \left[\left(\frac{\cos(\theta^{disp})}{a^\alpha} \right)^2 + \left(\frac{\sin(\theta^{disp})}{b^\alpha} \right)^2 \right] \left[\left(\frac{\cos(\theta^{cont})}{a^\beta} \right)^2 + \left(\frac{\sin(\theta^{cont})}{b^\beta} \right)^2 \right]$$

Par soucis de simplification on définit une constante Λ tel que :

$$\Lambda^2 = \left[\left(\frac{\cos(\theta^{disp})}{a^\alpha} \right)^2 + \left(\frac{\sin(\theta^{disp})}{b^\alpha} \right)^2 \right] \left[\left(\frac{\cos(\theta^{cont})}{a^\beta} \right)^2 + \left(\frac{\sin(\theta^{cont})}{b^\beta} \right)^2 \right] \quad (C.1)$$

On rappelle la formule reliant la tension de surface et le paramètre d'ordre dans le cas binaire :

$$\sigma = \int_0^L \kappa^{bin} \left(\frac{d\phi}{dz} \right)^2 dz \quad (C.2)$$

Ainsi on peut écrire :

$$\begin{aligned} \sigma &= \sqrt{2\kappa\lambda} \int_{\phi^{disp,eq}}^{\phi^{cont,eq}} \sqrt{\Omega^*} d\phi \\ &= \sqrt{2\kappa\lambda} \int_{\phi^{disp,eq}}^{\phi^{cont,eq}} (\phi - \phi^{eq,disp}) (\phi - \phi^{eq,cont}) \Lambda d\phi \\ &= \sqrt{2\kappa\lambda} \int_{\phi^{disp,eq}}^{\phi^{cont,eq}} \{ \phi^2 - \phi (\phi^{eq,disp} + \phi^{eq,cont}) + \phi^{eq,disp} \phi^{eq,cont} \} \Lambda d\phi \\ &= \sqrt{2\kappa\lambda} \Lambda \left[\frac{\phi^3}{3} - \frac{\phi^2}{2} (\phi^{eq,disp} + \phi^{eq,cont}) + \phi \phi^{eq,disp} \phi^{eq,cont} \right]_{\phi^{disp,eq}}^{\phi^{cont,eq}} \end{aligned} \quad (C.3)$$

Dans les cas où les composants ne sont pas totalement miscible/immiscible on obtient un résultat de la forme :
On rappelle également la définition de l'épaisseur d'interface :

$$\epsilon = \frac{\phi^{eq,cont} - \phi^{eq,dis}}{\max \left(\frac{d\phi}{dz} \right)} \quad (C.4)$$

$$= \sqrt{\frac{\kappa}{2\lambda}} \frac{\phi^{eq,cont} - \phi^{eq,dis}}{\max (\sqrt{\Omega^*})} \quad (C.5)$$

Cette définition peut s'observer géométriquement :

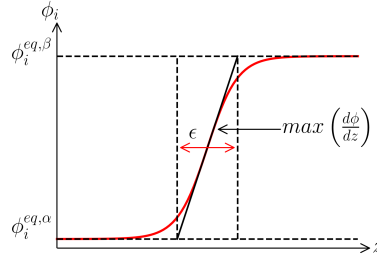


FIGURE C.1 – Définition de l'interface choisie

Ainsi on pose :

$$\xi_2 = \frac{\phi^{eq,cont} - \phi^{eq,dis}}{\max(\sqrt{\Omega^*})} \quad (C.6)$$

$$= \frac{\phi^{eq,cont} - \phi^{eq,dis}}{\max((\phi - \phi^{eq,disp})(\phi - \phi^{eq,cont})\Lambda)} \quad (C.7)$$

Finalement les coefficients de gradient et facteur d'agrandissement sont obtenus tel que :

$$\kappa = \frac{\sigma \epsilon}{\xi_1 \xi_2} \quad (C.8)$$

$$\lambda = \frac{\xi_2 \sigma}{2 \epsilon \xi_1} \quad (C.9)$$

ANNEXE D

Éléments de stabilité de phase

Dans le cadre de notre étude nous nous intéressons à deux phases en coexistence, une phase dite continue et l'autre dispersée. La détermination de la stabilité des phases est essentielle pour pouvoir tracer le paysage thermodynamique. La courbe binodale correspond à la condition pour laquelle deux phases peuvent coexister, c'est-à-dire que sous la courbe binodale le système peut être composé d'une seule phase, il le sera dans la zone instable et pourra l'être dans la zone métastable. Cependant le calcul de la zone instable est beaucoup plus

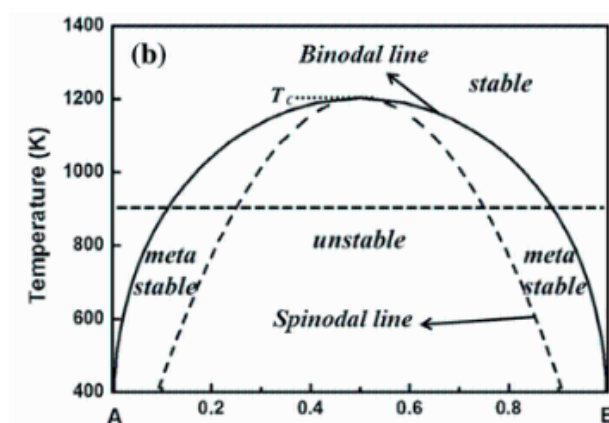


FIGURE D.1 – Exemple de diagramme de stabilité de phase pour un cas binaire, d'après

simple que celui de la zone métastable. Pour déterminer cette zone instable on calcule la matrice Hessienne définie tel que :

$$\bar{\bar{\mathbf{H}}}_{g^{liq}} = \frac{\partial^2 g^{liq}}{\partial \phi_i \partial \phi_j} \Big|_{T,P,\phi_k \neq i,j} = \frac{\partial^2 \Omega^*}{\partial \phi_i \partial \phi_j} \Big|_{T,P,\phi_k \neq i,j} \quad (D.1)$$

L'égalité des matrices hessienne du pseudo-grand potentiel et de l'énergie libre de Gibbs est ici immédiate. D'après [11] les zones spinodale, instable et stable sont définies tel que :

- zone stable : $\text{eig} \left\{ \bar{\bar{\mathbf{H}}}_{g^{liq}} \right\} > 0$, deux phases coexistent
- spinodale : $\min \left(\text{eig} \left\{ \bar{\bar{\mathbf{H}}}_{g^{liq}} \right\} \right) > 0$, décomposition spinodale
- zone instable : $\text{eig} \left\{ \bar{\bar{\mathbf{H}}}_{g^{liq}} \right\} < 0$, une phase en présence

Le calcul des valeurs propres en chaque point du paysage pouvant être coûteux on rappelle que par théorème le produit des valeurs propres d'une matrice est égale au déterminant de cette matrice. Ainsi si on note λ_i les valeurs propres de $\bar{\bar{\mathbf{H}}}_{g^{liq}}$ on a :

$$\det \bar{\bar{\mathbf{H}}}_{g^{liq}} = \prod_i \lambda_i \quad (D.2)$$

Pour le cas ternaire le calcul du déterminant est direct :

$$\det \bar{\bar{\mathbf{H}}}_{g^{liq}} = \frac{\partial^2 g^{liq}}{\partial \phi_i^2} \frac{\partial^2 g^{liq}}{\partial \phi_j^2} - \left(\frac{\partial^2 g^{liq}}{\partial \phi_i \partial \phi_j} \right)^2 \quad (\text{D.3})$$

Ainsi la zone instable correspond à la zone où le déterminant de la matrice hessienne est négatif.

ANNEXE E

Séquence de dégradation du cœur

D'après [12] voici le scénario de fonte du cœur :

- Entre 800 et 900 °C : L'augmentation de la pression à l'intérieur de la gaine en zirconium provoque un gonflement puis une rupture de cette dernière.
- Entre 900 et 1300 °C : Début de la réaction fortement exothermique d'oxydation de la gaine. A cet instant une forte proportion de la puissance thermique dégagée provient de cette réaction. La molécule d'eau est dissociée, l'oxygène est absorbé par la surface métallique et l'hydrogène est libéré. L'absorption de l'hydrogène dans les fissures du métal le fragilise davantage et accélère le processus de défaillance de la gaine. De plus l'apparition de fissure augmente la surface de réaction provoquant une accélération de la réaction.
- Entre 1300 et 1400 °C : Apparition d'alliages constitués des matériaux composant la gaine (principalement Zr) et de l'acier présent dans la cuve.
- Entre 1400 et 1500 °C : Fusion et rupture des structures métallique du cœur. Libération des composant en phase gazeuse du combustible.
- Entre 1500 et 1850 °C : Point de fusion du zirconium, dissolution du dioxyde d'uranium UO_2 par le zirconium en fusion, apparition de l'alliage (U,O,Zr)
- Entre 2000 et 2650 °C : Fusion du ZrO_2 , dissolution de l' UO_2 dans le ZrO_2 fondu et formation de la solution liquide $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$.