

# 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 :

## 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

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>3</b>
<b>2</b>	<b>Présentation des accidents graves dans les réacteurs à eau pressurisée</b>	<b>4</b>
2.1	Fonctionnement d'un réacteur à eau pressurisée . . . . .	4
2.2	Sûreté et accidents graves pour les REP . . . . .	5
2.3	Stratégie de rétention du corium en fond de cuve (IVR) . . . . .	6
<b>3</b>	<b>Éléments théoriques sur la méthode de champ de phase</b>	<b>9</b>
3.1	Présentation des principales méthodes de suivi et de capture d'interface . . . . .	9
3.2	Méthode d'interface diffuse . . . . .	9
3.3	Équation de Cahn-Hilliard généralisée . . . . .	10
3.4	Couplage avec les équations de Navier-Stokes incompressible . . . . .	12
3.5	Paysage thermodynamique analytique . . . . .	12
3.6	Éléments de stabilité de phase . . . . .	14
3.7	Expérience numérique . . . . .	15
3.7.1	Choix des conditions initiales . . . . .	15
<b>A</b>	<b>Solution analytique pour une interface plane</b>	<b>19</b>
A.1	Méthode de calcul . . . . .	20
<b>B</b>	<b>De la tension de surface au coefficients de gradient</b>	<b>21</b>
B.1	Méthode générale . . . . .	21

## Contexte et remerciements

# CHAPITRE 1

## Introduction

## CHAPITRE 2

# Présentation des accidents graves dans les réacteurs à eau pressurisée

## 2.1 Fonctionnement d'un réacteur à eau pressurisée

En France 56 réacteurs nucléaires dispersés sur 18 sites sont actuellement en service, ce parc est uniquement composé de réacteur à eau pressurisée (REP). Ces réacteurs représentent 70% de la production électrique dans l'hexagone en 2019 d'après RTE, la France étant le deuxième plus gros producteur d'énergie nucléaire dans le monde après les États-Unis. 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, ce type de réacteur prend en compte le retour d'expérience des réacteurs actuels intégrant notamment plus d'éléments de sûreté. La construction de 6 nouveaux EPR a été annoncée et 8 autres pourraient voir le jour.

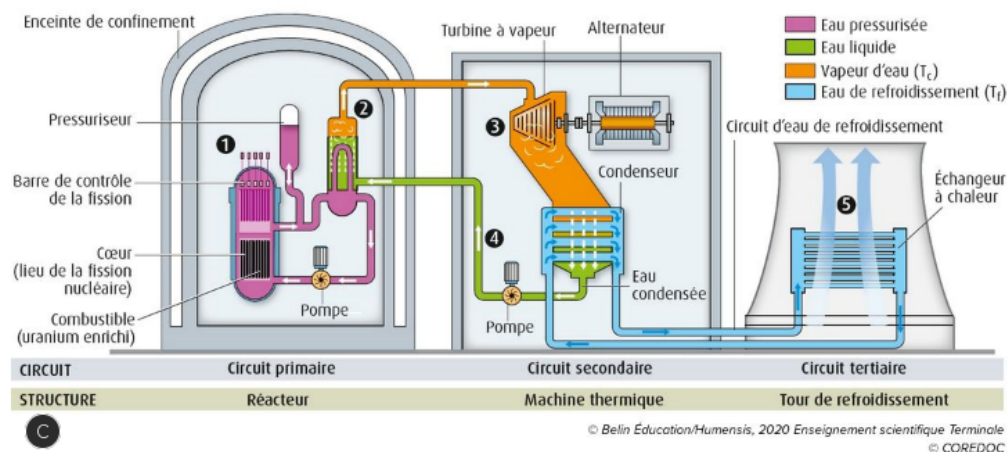
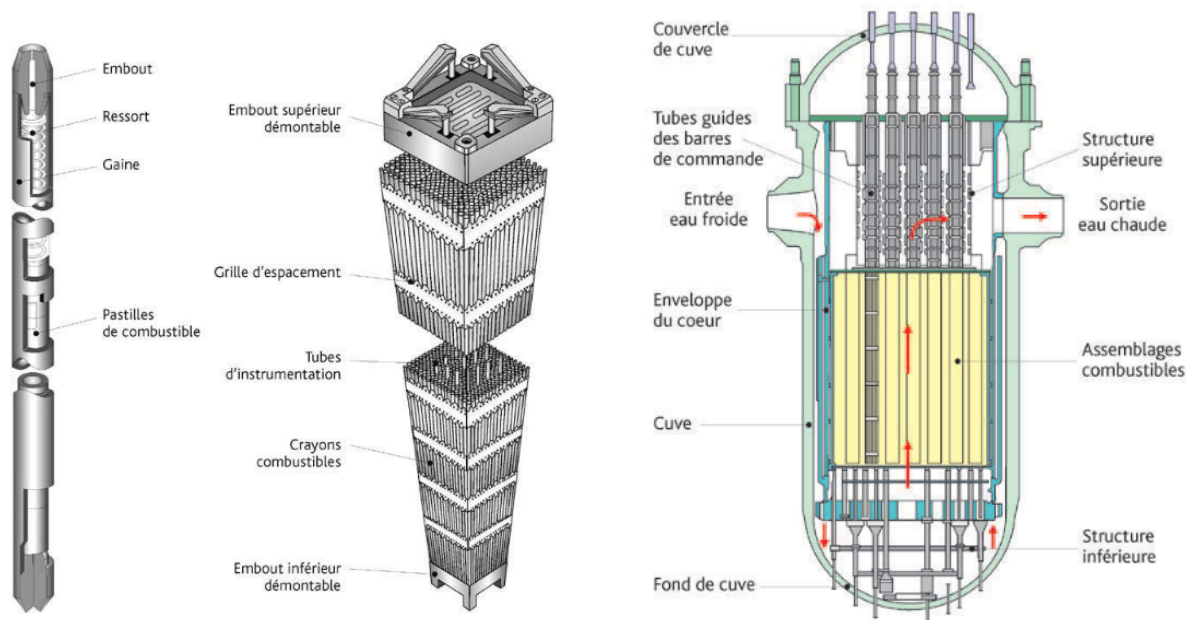


FIGURE 2.1 – Schéma de principe d'une centrale nucléaire de type REP, (d'après manuelnumerique-max.belin.education)

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, à l'entrée de la cuve la température de l'eau est 290°C et la température de sortie de cuve en fonctionnement nominal est de 330°C.

Le cœur du réacteur est composé d'assemblages combustibles comportant chacun 264 crayons combustibles, 24 tubes pouvant contenir les crayons d'une grappe de commande ainsi qu'un tube servant à l'instrumentation. La gaine est constituée de Zircaloy qui est un alliage composé principalement de zirconium ( $Zr$ ), les pastilles ont un diamètre de 8.2mm et sont empilées dans une gaine d'épaisseur 0.6mm et d'une longueur d'environ 4m (dépendante du palier du réacteur). Le zirconium est utilisé pour sa bonne résistance à la corrosion et sa faible absorption neutronique. Chaque cœur est composé d'un ensemble d'assemblage combustible (241 pour l'EPR, embarquant au total 144.2 tonnes d'uranium enrichi) qui doivent être renouvelés périodiquement tous les 12 à 18 mois par quart ou tiers de cœur.



(a) Schéma d'un crayon combustible et d'un assemblage combustible

(b) Schéma d'ensemble de d'une cuve d'un REP

FIGURE 2.2 – Schéma des constituants d'un cœur de réacteur de type REP d'après [1]

## 2.2 Sûreté et accidents graves pour les REP

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 3 barrières de confinement de la radioactivité :

1. La gaine combustible
2. La cuve
3. Le bâtiment réacteur

De plus les variations par rapport au régime nominal sont classés selon l'échelle INES (International Nuclear Scale Event), 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 cœur, le produit de cette fusion est alors appelé corium.

Les accidents possibles dans les REP sont séparés en deux grandes catégories, les accidents de réactivité

	CONSEQUENCES À L'EXTÉRIEUR DU SITE	CONSEQUENCES À L'INTÉRIEUR DU SITE	DÉGRADATION DE LA DÉFENSE EN PROFONDEUR
<b>7 ACCIDENT MAJEUR</b>	Rejet majeur : effets considérables sur la santé et l'environnement		
<b>6 ACCIDENT GRAVE</b>	Rejet important susceptible d'exiger l'application intégrale des contre-mesures prévues		
<b>5 ACCIDENT</b>	Rejet limité susceptible d'exiger l'application partielle des contre-mesures prévues	Endommagement grave du cœur du réacteur / des barrières radiologiques	
<b>4 ACCIDENT</b>	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	
<b>3 INCIDENT GRAVE</b>	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
<b>2 INCIDENT</b>		Contamination importante / surexposition d'un travailleur	Incident assorti de défaillances importantes des dispositions de sécurité
<b>1 ANOMALIE</b>			Anomalie sortant du régime de fonctionnement autorisé
<b>0 ÉCART</b>		Aucune importance du point de vue de la sûreté	
<b>ÉVÉNEMENT HORS ÉCHELLE</b>	Aucune importance du point de vue de la sûreté		

FIGURE 2.3 – Echelle de classification des écarts aux régimes nominal INES (d'après ASN)

et les Accidents de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP). Les accidents de réactivité sont dû à une accélération brutale de la réaction en chaîne entraînant une augmentation de puissance thermique produite. Les Accidents de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP) résultent quant à eux d'une fuite dans le circuit primaire ou un arrêt de la circulation du fluide caloporteur. Dans la suite nous traiterons uniquement de cette seconde famille d'accident. D'après [2] 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  $\text{UO}_2$  par le zirconium en fusion, apparition de l'alliage  $(\text{U}, \text{O}, \text{Zr})$
- Entre 2000 et 2650 °C : Fusion du  $\text{ZrO}_2$ , dissolution de l' $\text{UO}_2$  dans le  $\text{ZrO}_2$  fondu et formation de la solution liquide  $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ .

Une fois le cœur fondu celui-ci se relocalise dans le fond de la cuve réacteur et il devient nécessaire d'adopter une stratégie pour refroidir ce bain.

## 2.3 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.

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). Des études plus récentes ont montré que le transitoire reste plus contraignant et fait donc l'objet d'étude plus poussée. 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 qu'une croûte située entre les phases liquides et la cuve est également présente. Finalement on se retrouve dans la situation suivante :

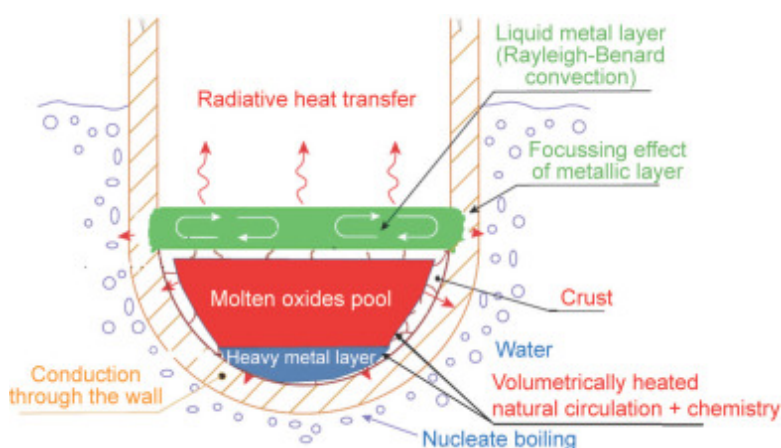


FIGURE 2.4 – Schéma du comportement du corium en fond de cuve, d'après pourlascience.fr

La couche de métal lourd se forme à partir d'un transfert de masse entre la phase 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 l'ensemble soit sous équilibre thermochimique dans un état de stratification comportant une phase lourde, a permis d'observer les gouttes lors de la descente, 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 (voir figure 2.5).

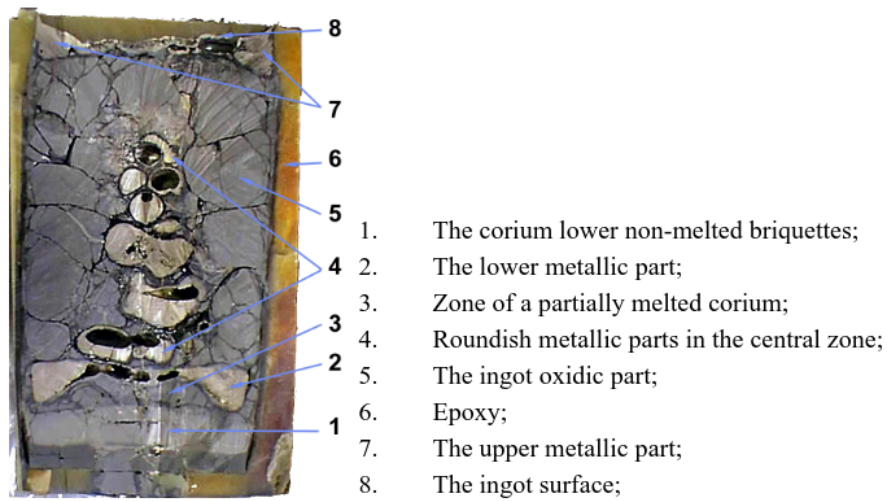


FIGURE 2.5 – Résultat MASCA-RCW 100 ,d'après []

## CHAPITRE 3

# Éléments théoriques sur la méthode de champ de phase

## 3.1 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, de nombreuses méthodes existent mais les principales étant :

- **Volume of fluid (VOF) :** Cette méthode utilise un maillage fixe découpé en cellule 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 :** 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.

## 3.2 Méthode d'interface diffuse

Les méthodes de suivi d'interfaces peuvent se découper en deux principaux paradigmes concernant le traitement de l'interface, cette dernière peut être raide ou diffuse. Dans le second cas l'interface est modélisée comme une zone de transition d'épaisseur connue entre les deux phases ou les deux fluides cohabitent de manière à ce que les variables observées varient continuellement, facilitant ainsi le traitement numérique de l'interface, les gradients à l'interface n'étant plus infinis. Le concept d'interface

diffuse date du XIX-ième siècle et est introduit par Van Der Walls sans susciter d'intérêt jusqu'au années 1950 avec la description de l'énergie libre par Ginzburg et Landau et la description thermodynamique de l'interface en utilisant cette description par Cahn et Hilliard en 1958 et 1959.

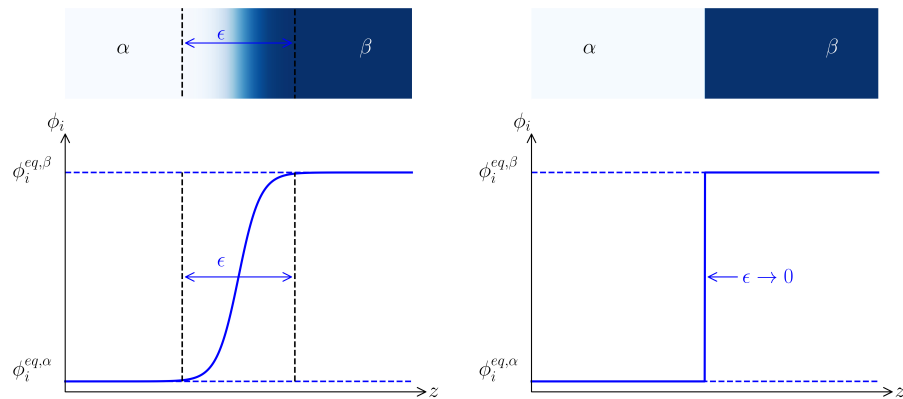


FIGURE 3.1 – Comparaison entre une interface raide et une interface diffuse

L'interface est alors suivie implicitement grâce à une fonction champ de phase qui est définie à partir de grandeurs thermodynamiques. Cette fonction champ de phase prend des valeurs constantes et connues dans chaque phase. Dans la suite on notera cette variable champ de phase  $\phi$ . Cette méthode est utilisée dans de nombreux domaines.

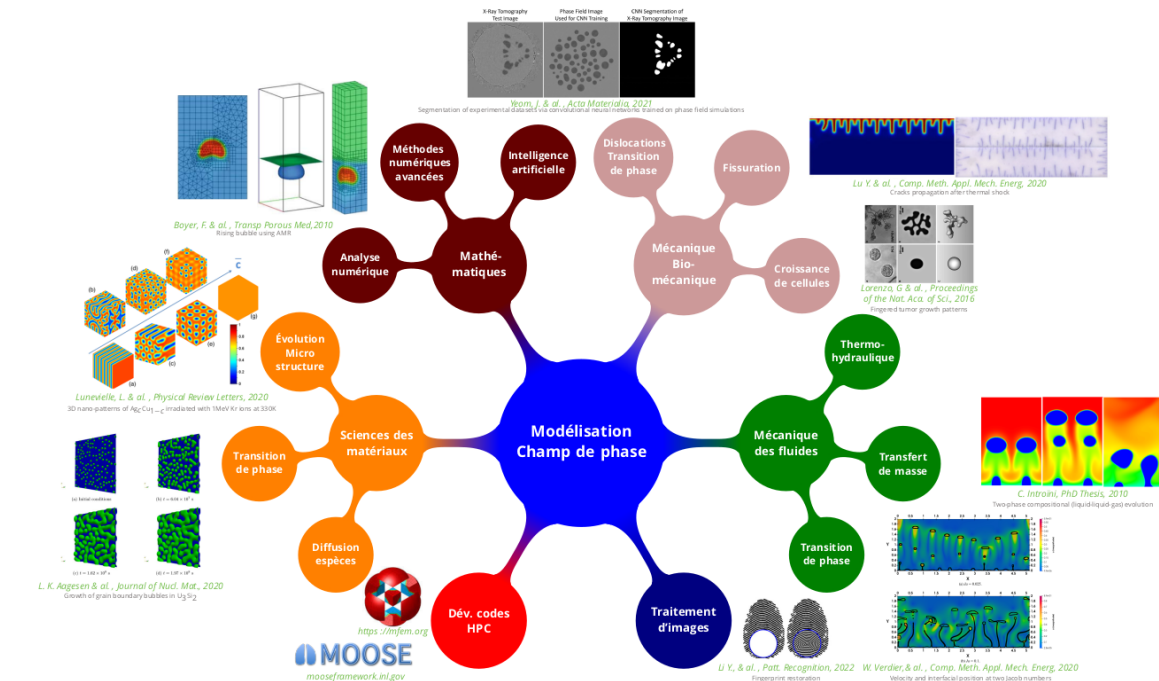


FIGURE 3.2 – Domaine d'application de la méthode champ de phase, tirée de [4]

### 3.3 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  $\phi_i$  pour la phase  $i$  et contraint tel que :

$$\sum_i \phi_i = 1 \Rightarrow \phi_n = 1 - \sum_{i=1}^{n-1} \phi_i \quad (3.1)$$

Ainsi pour un mélange à  $n$  composants, seul  $n-1$  variables sont indépendantes et autant d'équations de Cahn-Hilliard sont à écrire. 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, les comportements de ces variables sont alors régis par une équation de réaction-diffusion dite d'Allen-Cahn, dans notre étude cette 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 :

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \phi_i = \nabla \cdot \left( \sum_{j=1}^{n-1} \mathcal{M}_{ij} \nabla \left( \frac{\partial \mathbb{F}}{\partial \phi_j} \right) \right) \quad (3.2)$$

avec :  $\mathcal{M}_{ik}$  la mobilité (paramètre cinétique),  $\phi$  le paramètre d'ordre,  $\mathbf{u}$  la vitesse et  $\mathbb{F}$  une fonctionnelle de Ginzburg-Landau généralisée [5] définit tel que :

$$\mathbb{F}[\phi_1, \dots, \phi_n] = \int_V \tilde{f}_0(\phi, \mathbf{x}, t) + \sum_{i=1}^{n-1} \sum_{j=1}^{n-1} \frac{\kappa_{ij}}{2} \nabla \phi_i \cdot \nabla \phi_j dV \quad (3.3)$$

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  $\alpha$  et  $\beta$ , on rappelle l'équilibre thermodynamique donné par :

$$\left. \frac{\partial \tilde{f}}{\partial \phi_i} \right|_{\phi_i^{\alpha,eq}} = \left. \frac{\partial \tilde{f}}{\partial \phi_i} \right|_{\phi_i^{\beta,eq}} = \tilde{\mu}_i^{eq} \quad \Leftrightarrow \quad \tilde{\mu}_i^{\alpha,eq} = \tilde{\mu}_i^{\beta,eq} \quad (3.4a)$$

$$\tilde{f}_0^{\alpha,eq} - \sum_{i=1}^{n-1} \tilde{\mu}_i^{eq} \phi_i^{\alpha,eq} = \tilde{f}_0^{\beta,eq} - \sum_{i=1}^{n-1} \tilde{\mu}_i^{eq} \phi_i^{\beta,eq} \quad (3.4b)$$

Le second terme représente la contribution des interfaces, le coefficient  $\kappa$ , 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  $\tilde{\mu}$  :

$$\frac{\partial \mathbb{F}}{\partial \phi_j} = \lambda \frac{\partial \tilde{f}_0}{\partial \phi_j} - \sum_{k=1}^{n-1} \kappa_{jk} \Delta \phi_k = \tilde{\mu}_j \quad (3.5)$$

avec  $\lambda$  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 tel que :

$$\tilde{\mu}_i = \frac{1}{V_m} (\mu_i - \mu_n) \quad (3.6)$$

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

Le potentiel chimique étant classiquement définit tel que :

$$\mu_i = \left. \frac{\partial G}{\partial n_i} \right|_{P,T,n_{j \neq i}} = \left. \frac{\partial F}{\partial n_i} \right|_{V,T,n_{j \neq i}} \quad \text{où } F = V_m f_0 \quad (3.7)$$

Avec  $F$  (resp.  $G$ ) l'énergie libre d'Helmholtz (resp. Gibbs) (en J) et  $n_i$  la quantité de matière de l'élément  $i$  (en mol). Dans notre cas on se place dans une transformation isobare et isotherme, on privilégiera donc l'énergie de libre de Gibbs. Dans le cas où  $\bar{\kappa} = \bar{0}$  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.

### 3.4 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 [6] le système d'équations s'écrit sous la forme :

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (3.8a)$$

$$\rho^* \left( \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \right) = -\nabla P + \eta \Delta \mathbf{u} + \sum_{i=1}^{n-1} \tilde{\mu}_i \nabla \phi_i + \rho(\phi) \mathbf{g} \quad (3.8b)$$

avec  $\mathbf{u}$  la vitesse,  $P$  la pression,  $\mu_i$  le potentiel chimique du composant  $i$ ,  $\mathbf{g} = \{0, 0, -g\}^T$ ,  $\eta$  la viscosité cinématique supposée constante,  $\rho^*$  la masse volumique du solvant

La densité est alors calculé :

$$\rho(\phi) = \rho^* \left( 1 + \sum_{i=1}^{n-1} \beta_i \phi_i \right) \quad (3.9)$$

Les paramètres  $\beta$  sont à déterminer en fonction du système étudié,  $\rho_0$  correspond à une masse volumique de référence. L'équation de Cahn-Hilliard étant d'ordre 4, une résolution implicite est alors préférée pour les simulations.

### 3.5 Paysage thermodynamique analytique

L'objectif présenté dans [7] 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 puit d'ordre 4.

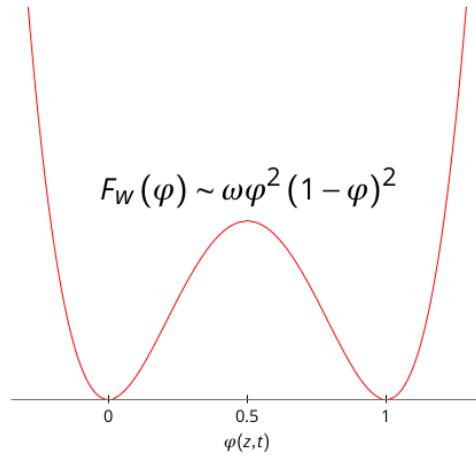


FIGURE 3.3 – Exemple d'une contribution homogène à l'énergie, d'après [4]

L'objectif est de généraliser ce double puit pour un système ternaire, ainsi on introduit un pseudo grand potentiel correspondant à l'énergie nécessaire pour changer de minimum d'énergie [5].

$$\Omega^* = \Omega - \Omega^{eq} = \tilde{g}^{liq} - \sum_i \tilde{\mu}_i^{eq} \phi_i - \left( \tilde{g}^{liq,eq} - \sum_i \tilde{\mu}_i^{eq} \phi_i^{eq} \right) \quad (3.10)$$

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 que l'on note :

$$\Omega^* = P^{dis} \times P^{cont} \quad (3.11)$$

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 :

$$P^k = \left( \frac{\cos(\theta^k) (\phi_A - \phi_A^{eq,k}) + \sin(\theta^k) (\phi_B - \phi_B^{eq,k})}{a_A^k} \right)^2 + \left( \frac{-\sin(\theta^k) (\phi_A - \phi_A^{eq,k}) + \cos(\theta^k) (\phi_B - \phi_B^{eq,k})}{a_B^k} \right)^2 \quad (3.12)$$

Avec  $k = \{disp, cont\}$  la phase (dispersée ou continue),  $a_A$  (respectivement  $a_B$ ) le demi-grand (resp petit) puits,  $\theta_k$  l'angle de rotation associé au puits de la phase  $k$

On cherche alors à tracer ce paysage. On peut dès lors calculer le potentiel de diffusion homogène

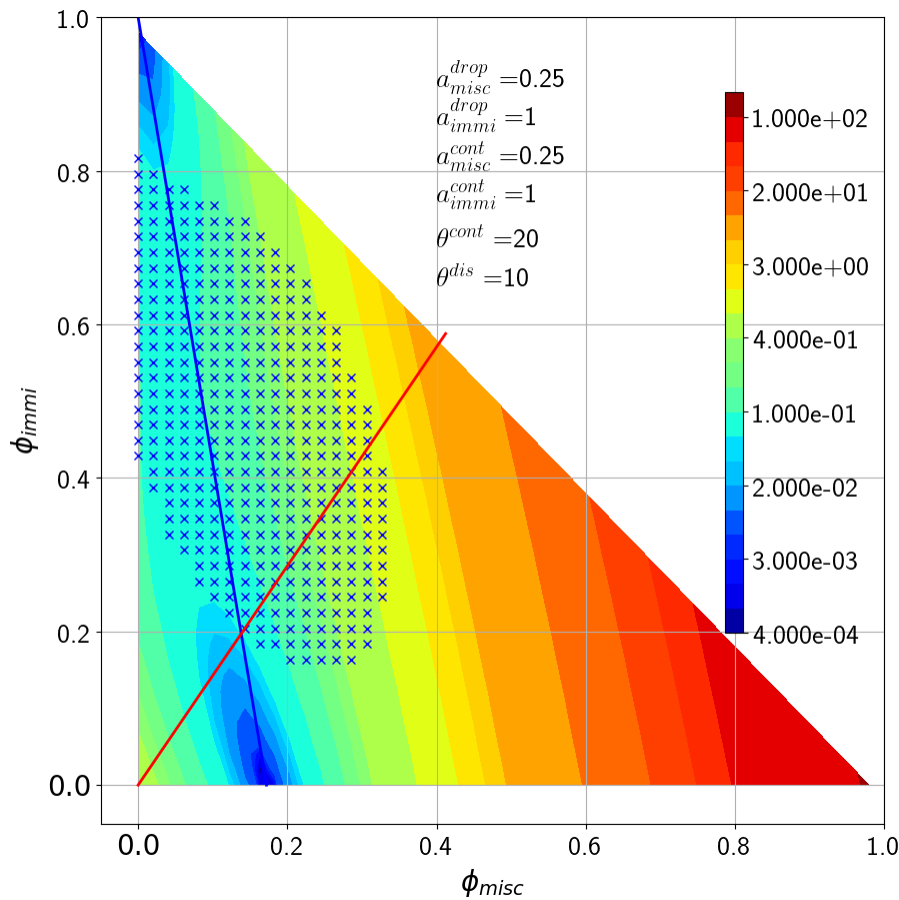


FIGURE 3.4 – Exemple de paysage thermodynamique, en rouge la droite reliant les concentration initiales et en bleu la droite reliant les concentrations à l'équilibre, les pointillés représentant la zone instable présenté ci-dessous

grâce à la formulation analytique (3.11) :

$$\begin{aligned} \tilde{\mu}_i &= \frac{\partial}{\partial \phi_i} \left\{ \Omega^* + \sum_j \tilde{\mu}_j^{eq} \phi_j + \left( g^{liq,eq} - \sum_j \tilde{\mu}_j^{eq} \phi_j^{eq} \right) \right\} \\ &= \frac{\partial \Omega^*}{\partial \phi_i} + \frac{\partial g^{liq,eq}}{\partial \phi_i} + \sum_j \frac{\partial \tilde{\mu}_j^{eq} (\phi_j - \phi_j^{eq})}{\partial \phi_i} \\ \tilde{\mu}_i &= P^{dis} \frac{\partial P^{cont}}{\partial \phi_i} + P^{cont} \frac{\partial P^{dis}}{\partial \phi_i} + \tilde{\mu}_i^{eq} \end{aligned} \quad (3.13)$$

L'objectif est alors de déterminer les paramètres des paraboloïdes pour obtenir des résultats consistants thermodynamiquement.

### 3.6 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

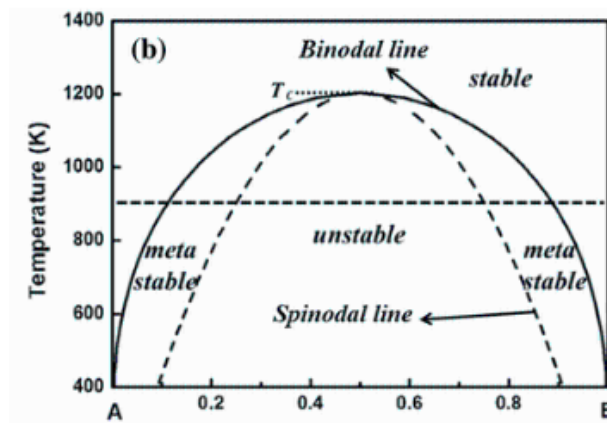


FIGURE 3.5 – Exemple de diagramme de stabilité de phase pour un cas binaire, d'après

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

$$\bar{\bar{\mathbf{H}}}_{g^{liq}} = \frac{\partial^2 g^{liq}}{\partial \phi_i \partial \phi_j} \Big|_{T,P,\phi_k \neq i,j} = \frac{\partial^2 \Omega^*}{\partial \phi_i \partial \phi_j} \Big|_{T,P,\phi_k \neq i,j} \quad (3.14)$$

L'égalité des matrices hessienne du pseudo-grand potentiel et de l'énergie libre de Gibbs est ici immédiate. D'après [8] 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  $\lambda_i$  les valeurs propres de  $\bar{\bar{\mathbf{H}}}_{g^{liq}}$  on a :

$$\det \bar{\bar{\mathbf{H}}}_{g^{liq}} = \prod_i \lambda_i \quad (3.15)$$

Pour le cas ternaire le calcul du déterminant est direct :

$$\det \bar{\bar{\mathbf{H}}}_{g^{liq}} = \frac{\partial^2 g^{liq}}{\partial \phi_i^2} \frac{\partial^2 g^{liq}}{\partial \phi_j^2} - \left( \frac{\partial^2 g^{liq}}{\partial \phi_i \partial \phi_j} \right)^2 \quad (3.16)$$



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

### 3.7 Expérience numérique

L'objectif est de réaliser numériquement l'expérience proposée par Abhijit Rao et al. dans [9]. Pour cette expérience une goutte composée d'Acetonitrile et de Chlorobenzène est placée dans de l'eau. L'acetonitrile est miscible dans l'eau contrairement au chlorobenzène 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.

#### 3.7.1 Choix des conditions initiales

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

$$\phi_i(\mathbf{x}, t = 0) = \frac{\phi_i^{init,cont} + \phi_i^{init,disp}}{2} + \frac{\phi_i^{init,cont} - \phi_i^{init,disp}}{2} \tanh \left( \frac{\sqrt{(x - x_0)^2 + (y - y_0)^2} - R}{\varepsilon} \right) \quad (3.17)$$

Avec  $(x_0, y_0)$  les coordonnées du centre de la goutte,  $R$  le rayon de la goutte,  $\varepsilon$  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 :

$$Bo = \frac{\Delta \rho g D^2}{\sigma} \quad (3.18)$$

avec  $\Delta \rho$  la différence de densité entre les deux phases,  $D$  le diamètre de la goutte et  $\sigma$  la tension de surface.

On considère que pour  $Bo \ll 1$  la tension de surface domine et la goutte reste sphérique.

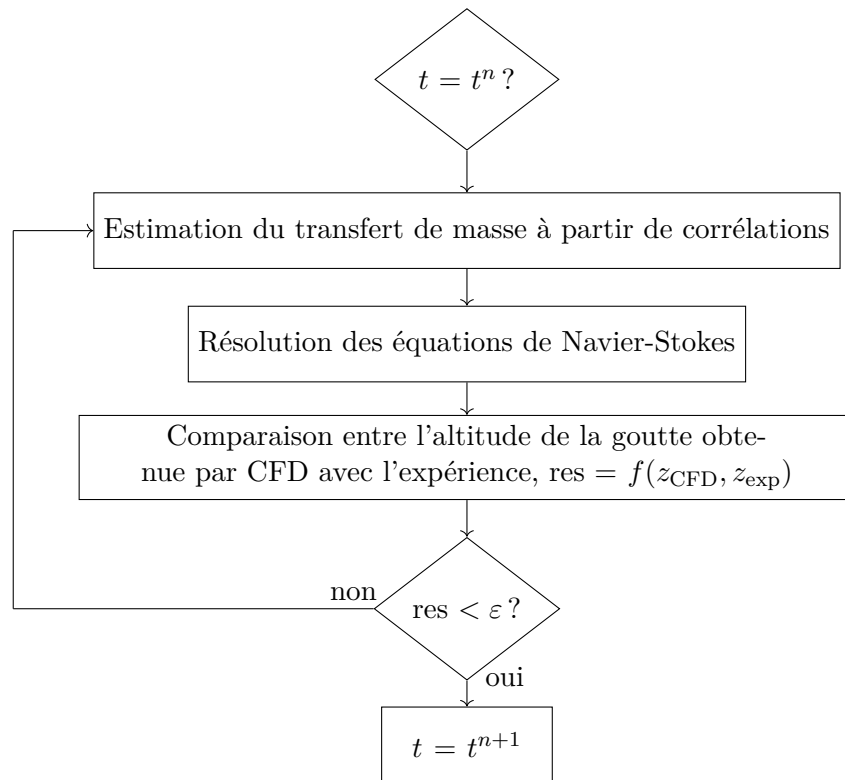


FIGURE 3.7 – Algorithme de résolution développé par Rao et al.[9]

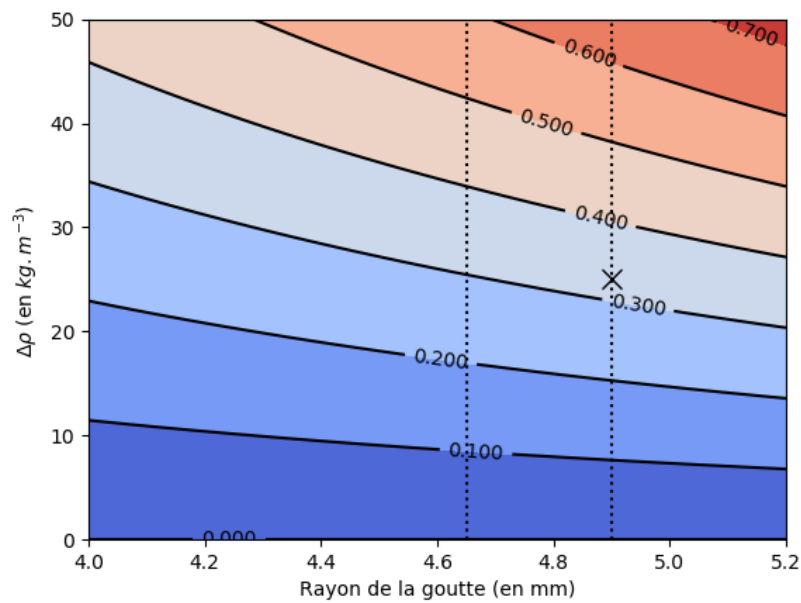


FIGURE 3.6 – Valeur du nombre de Bond en fonction de la différence de densité entre les phases et le rayon de la goutte, le marqueur représente l'état initial

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

# Bibliographie

- [1] Bernard CLÉMENT et al. *Les accidents de fusion du coeur des réacteurs nucléaires de puissance : Etat des connaissances*. Sous la dir. de Didier JACQUEMAIN. EDP Sciences, 4 nov. 2020. ISBN : 978-2-7598-1846-4. DOI : 10.1051/978-2-7598-1846-4. URL : <https://www.degruyter.com/document/doi/10.1051/978-2-7598-1846-4/html> (visité le 03/05/2023).
- [2] 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. URL : <https://link.springer.com/10.1007/978-3-319-15156-4> (visité le 12/04/2023).
- [3] Nima SAMKHANIANI et Mohamad Reza ANSARI. « The evaluation of the diffuse interface method for phase change simulations using OpenFOAM ». In : *Heat Transfer—Asian Research* 46.8 (2017). \_eprint : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/htj.21268>, p. 1173-1203. ISSN : 1523-1496. DOI : 10.1002/htj.21268. URL : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/htj.21268> (visité le 16/03/2023).
- [4] 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*.
- [5] 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).
- [6] 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. URL : <https://www.cambridge.org/core/journals/communications-in-computational-physics/article/phasefield-models-for-multicomponent-fluid-flows/0672FBD318BBE2621A51AE0F2C9C2FE3> (visité le 04/05/2023).
- [7] *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).
- [8] 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. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0378381216306227> (visité le 17/04/2023).

- [9] 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. URL : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/aic.14612> (visité le 29/03/2023).

## 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  $\phi$ ) 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  $\lambda$  un paramètre d'upsclling présenté précédemment,  $\kappa$  un coefficient de gradient. La condition d'équilibre est définit 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 :

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

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 :

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

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

## A.1 Méthode de calcul

## ANNEXE B

## De la tension de surface au coefficients de gradient

## B.1 Méthode générale

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  $\sigma$  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 1D 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 :

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

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  $n = 2$

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

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

$$\bar{\bar{\kappa}} = \begin{pmatrix} \kappa^{bin} & 0 \\ 0 & \kappa^{bin} \end{pmatrix} \quad (\text{B.7})$$