

**IRSN**

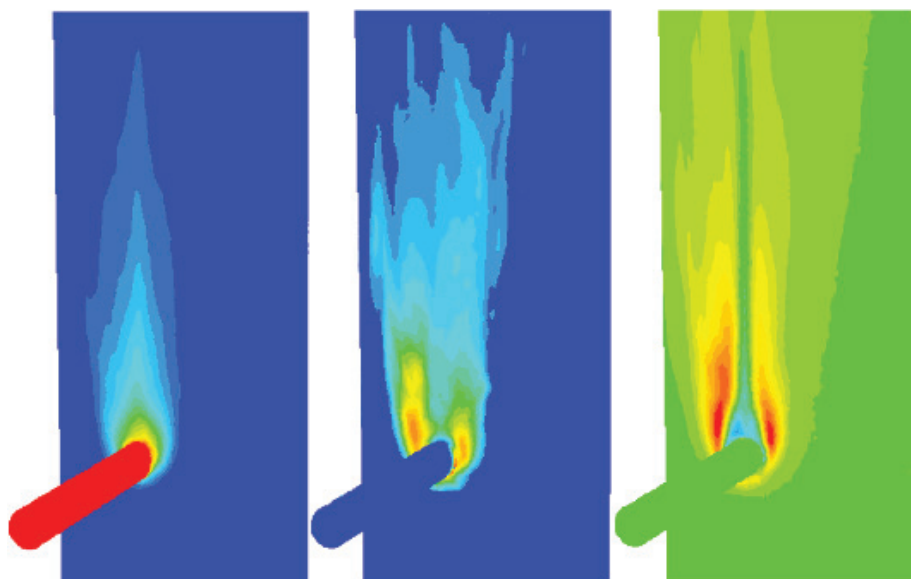
INSTITUT  
DE RADIOPROTECTION  
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

*Faire avancer la sûreté nucléaire*

Mémoire d'habilitation à diriger des recherches

# Écoulements turbulents anisothermes et relâchement de produits de fission en situation accidentelle sur un réacteur nucléaire

Guillaume BRILLANT



# Éditorial

La démarche de défense en profondeur qui s'applique aux installations nucléaires depuis les premières générations dispose que l'industriel sollicitant l'autorisation de leur mise en service apporte une démonstration rigoureuse de la maîtrise des risques dans différentes catégories de situations qui vont du fonctionnement normal aux situations accidentelles. Bien que la France en avait, sous l'impulsion de l'IRSN, initié la pratique, ces démonstrations et études vont devoir s'étendre – depuis la nouvelle directive européenne 2014/87/CE pour la sûreté nucléaire – au champ des accidents graves pour les nouveaux réacteurs. Or, les accidents graves sont le siège de phénomènes physiques d'une grande complexité qui nécessitent pour être appréhendés avec justesse de disposer d'une gamme à la fois large et approfondie de connaissances.

Les travaux scientifiques menés par Guillaume BRILLANT contribuent à défricher le champ de telles connaissances pour différentes situations de fonctionnements et concernent, pour partie, les réacteurs à eau et, au principal, les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium. S'agissant de ces derniers, ils s'inscrivent dans la perspective – pour l'IRSN – d'avoir à évaluer la démonstration de sûreté du projet ASTRID, porté par le CEA, qui constitue un prototype de réacteur de quatrième génération dont l'ambition est de proposer une source énergétique plus économe en combustible et capable d'une meilleure capacité de recyclage, comparée à celle des réacteurs à eau sous pression, conduisant à une réduction de la production de déchets à haute activité et vie longue pour une même quantité d'énergie produite. Il importe néanmoins pour l'Institut de vérifier, sur une base scientifiquement solide, les avancées en termes de sûreté qui doivent accompagner toute nouvelle génération de réacteur.

Les travaux de Guillaume BRILLANT s'articulent dans deux champs distincts permettant d'appréhender respectivement des scénarios d'endommagement (de circuits par des sollicitations fluctuantes d'origines thermiques) et des scénarios d'accidents sévères (modélisation des comportements de produits de fission). Pour la famille de réacteurs à neutrons rapides, la fissuration des circuits de refroidissement ou de sauvegarde peut avoir des conséquences majeures, car elle peut *in fine* provoquer une rencontre entre le sodium, utilisé dans ces réacteurs comme réfrigérant, avec l'air où avec l'eau. Les travaux sur la prévention de ce type d'endommagement constituent donc bien un enjeu de premier ordre, analysé dans la première grande partie du manuscrit.

Par ailleurs, et bien que tout soit mis en œuvre pour en éviter l'occurrence, la défense en profondeur requiert d'étudier les conséquences de la défaillance des stratégies de sauvegarde de l'installation. Ceci conduit à devoir modéliser le comportement et le

relâchement des produits de fission, dont le relâchement dans l'installation doit être étudié en vue de dimensionner les moyens dits de mitigation des conséquences, ce qui n'est pas accessible sans une caractérisation physico-chimique fine. C'est tout le sens des travaux développés dans la seconde grande partie de ce travail d'HDR.

Dans ces deux grandes chapitres, Guillaume BRILLANT déploie une large panoplie de démarches scientifiques incluant les allers-retours caractéristiques entre les aspects fondamentaux des phénomènes étudiés – et redoutés –, la modélisation, et les nécessaires étapes expérimentales pour recalibrer et enrichir la capacité prédictive des codes, dont les résultats illustrent les progrès faits, grâce à ces travaux, au bénéfice de la sûreté. Ils viendront enrichir la base de connaissances et de méthodes que l'IRSN pourra mettre en œuvre, le moment venu, pour l'évaluation de sûreté d'un projet de réacteur rapide refroidi au sodium.

L'habilitation à diriger les recherches (HDR) est un diplôme délivré par un établissement universitaire. Pour un chercheur, elle constitue la consécration d'un cycle - typiquement d'une dizaine d'année - d'activité de recherche dans son domaine. Cette reconnaissance renforce également l'aptitude à encadrer des étudiants en formation doctorale ou postdoctorale. Elle est précieuse tant pour les chercheurs que pour l'Institut, compte tenu de sa volonté de multiplier les configurations de partenariat où la vision scientifique à moyen terme joue un rôle déterminant.

Ainsi, j'ai le plaisir de présenter, au nom de l'Institut, ce neuvième numéro de la collection HDR et je remercie donc Guillaume BRILLANT de me donner cette opportunité, à l'occasion de cette étape importante de sa carrière scientifique.

Matthieu Schuler,  
Directeur de la stratégie, du développement et des partenariats  
Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire  
Décembre 2016

Université de Perpignan Via Domitia (UPVD)  
Habilitation à diriger des recherches  
(HDR)

Écoulements turbulents anisothermes et relâchement  
de produits de fission en situation accidentelle  
sur un réacteur nucléaire

21 juin 2012

Guillaume BRILLANT  
Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire

Composition du jury :

Jérôme BELLETTRE (rapporteur)	Professeur des universités, LTN UMR CNRS 6607, Nantes
Françoise DAUMAS-BATAILLE	Professeur des universités, PROMES UPR CNRS 8521, Perpignan
Gérard DUCROS	Directeur de recherches au CEA, DEN/DEC, Cadarache,
Christophe GOURDON (rapporteur)	Professeur des universités, LGC UMR CNRS 5503, Toulouse
Jean-Claude MICAELLI	Directeur de la recherche en sûreté à l'IRSN, PSN-RES IRSN Cadarache,
Alain PASTUREL (rapporteur)	Directeur de recherches au CNRS, LTPCM UMR CNRS 5614, Grenoble

Illustration en page de couverture : champs de température moyenne (à gauche), des fluctuations de température (au milieu) et du flux de chaleur à l'interface fluide/solide à l'aval d'un piquage chaud (à droite).

ISBN 978-2-9545237-3-6

© 2016, IRSN. Tous droits réservés.

# Résumé

La prévention des accidents susceptibles de se produire dans une installation nucléaire, ainsi que l'étude des moyens à mettre en œuvre pour en limiter les conséquences sur le public et l'environnement constituent une des missions majeures pour l'expertise nucléaire française. Elle passe par une meilleure compréhension des phénomènes impliqués, par le biais de programmes de recherche finalisée, ainsi que le développement de logiciels de calcul et de méthode d'évaluation. Ces outils, une fois qualifiés, permettent d'estimer les risques encourus et d'analyser l'efficacité des dispositions prévues par l'exploitant pour y faire face. Les travaux de recherche rassemblés dans ce mémoire s'inscrivent dans cette démarche d'amélioration du niveau de sûreté des centrales nucléaires avec un recours à deux grands domaines de la physique, à savoir la mécanique des fluides et la physique du solide.

La rupture d'une tuyauterie du circuit primaire ou d'un circuit secondaire d'un réacteur peut conduire à un échauffement des crayons combustibles qui doit rester limité afin que l'endommagement du combustible ne mette pas en cause le refroidissement du cœur du réacteur et évite sa fusion. Le faïençage thermique est une des causes de rupture des tuyauteries, notamment au niveau des Té de mélange des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium du fait des forts écarts de température entre les deux entrées du Té. L'évaluation du risque de faïençage thermique des conduites des centrales nucléaires nécessite des simulations fines d'écoulements turbulents pour estimer correctement l'amplitude des fluctuations de température ainsi que leur répartition spectrale. Nous avons pu observer que la simulation des grandes échelles est un outil de choix pour évaluer ces fluctuations au travers de l'étude de l'impact de l'effusion sur une couche limite turbulente. L'utilisation d'une entrée de fluide turbulente est primordiale pour la qualité de ce type de simulations et nous a conduit à développer une méthode de recyclage des fluctuations. Moyennant l'utilisation de cette condition d'entrée de fluide, nous avons obtenu un bon accord entre les simulations et les mesures expérimentales obtenues par anémométrie fil chaud/froids sur l'impact de l'effusion sur une couche limite turbulente. Nous avons ensuite utilisé la simulation des grandes échelles sur deux configurations de Té de mélange : l'une plutôt académique avec des conduites à section carrée, et l'autre directement appliquée puisque correspondant à un cas opérationnel rencontré dans la centrale de Phénix.

Pendant et immédiatement après un accident sur une centrale nucléaire, la partie de l'inventaire de produits de fission libérée dans l'enceinte de confinement, et susceptible éventuellement d'être libérée dans l'environnement, est appelée terme source. L'estimation de ce terme source requiert une bonne évaluation de la première étape du relâchement, c'est à dire le relâchement des produits de fission hors des pastilles combustible. Pour ce faire, on se base, d'une part, sur une banque de données

alimentée par des programmes expérimentaux et sur des simulations effectuées au moyen de codes de calcul d'accidents graves. Afin de pouvoir estimer au mieux ce terme source par les simulations dans une large gamme de conditions (température, pression d'oxygène, composition d'atmosphère dans le cœur...), nous avons développé des modèles de relâchement des produits de fission hors du combustible. Ces modèles ont été élaborés sur la base de l'interprétation du comportement des produits de fission dans des expériences représentatives du relâchement de produits de fission, de calculs *ab initio* et de calculs d'équilibres thermodynamiques. Nous avons ensuite implémenté ces modèles dans le code de calcul ASTEC et validé ceux-ci sur les essais du programme VERCORS avec du combustible à taux de combustion intermédiaire. Le recours à des calculs *ab initio* a été très profitable pour l'étude du comportement des produits de fission dans le dioxyde d'uranium. Nous avons ainsi pu évaluer les énergies de solution des produits de fission dans la matrice  $\text{UO}_2$  et évaluer la stabilité des produits de fission dissous dans la matrice combustible vis-à-vis de la formation de phases secondaires.

# Sommaire

Éditorial	1
Résumé	5
Chapitre 1	
Introduction générale	9
Chapitre 2	
Dynamiques et thermiques d'écoulements turbulents	11
2.1 Modélisation pour la simulation des grandes échelles en thermique	12
2.1.1 Condition d'entrée de fluide turbulente	14
2.1.2 Diffusivité sous maille	18
2.2 Impact d'une effusion froide sur une couche limite turbulente	22
2.2.1 Étude expérimentale	24
2.2.2 Étude numérique	31
2.3 Étude de la fatigue thermique dans un Té de mélange	36
2.3.1 Simulations RANS	38
2.3.2 Simulations des grandes échelles	41
Bibliographie	47
Chapitre 3	
Comportement des produits de fission dans du combustible nucléaire	53
3.1 Étude de la stabilité des produits de fission dans le dioxyde d'uranium	54
3.1.1 Dioxyde d'uranium et défauts ponctuels	54
3.1.2 Insertion des produits de fission dans la matrice UO <sub>2</sub>	59
3.1.3 Stabilité des produits de fission dans le dioxyde d'uranium	67
3.2 Relâchement des produits de fission hors du combustible	73
3.2.1 Modélisation du relâchement des produits de fission	75
3.2.2 Validation des modèles sur les données expérimentales	85
Bibliographie	91
Chapitre 4	
Conclusions - Perspectives	99
Chapitre 5	
Présentation personnelle	105
5.1 <i>Curriculum Vitae</i>	105
5.2 Liste détaillée des publications	109
5.2.1 Articles dans des revues d'audience internationale (22)	109
5.2.2 Publications dans des actes de conférences avec comité de lecture - Texte complet (14)	111
5.2.2.1 Conférences internationales (11)	111
5.2.2.2 Conférences nationales (3)	112
5.2.3 Publications dans des actes de conférences internationales avec comité de lecture - résumé et poster (4)	113



5.2.4	Présentations lors de séminaires (13)	113
5.2.4.1	Séminaires internationaux (9)	113
5.2.4.2	Séminaires nationaux (4)	114
5.2.5	Rapports de recherche et rapports techniques (18)	114
Annexes - Tirés à part des principales publications		117

# Chapitre 1

## Introduction générale

---

J'ai effectué mes travaux de thèse conjointement au Laboratoire de modélisation et de développement de logiciel du Commissariat à l'énergie atomique (CEA/LMDL) et au laboratoire du Centre de thermique de Lyon (UMR 5008). Une double approche expérimentale et numérique m'a permis d'étudier l'impact de l'effusion d'un fluide froid sur les propriétés d'une couche limite turbulente (A-[2], A-[4], A-[8], A-[9]). Les mesures expérimentales ont été obtenues au moyen d'un système d'acquisition par anémométrie fils chauds et froids. Pour ce qui est de la partie numérique, j'ai principalement travaillé dans le cadre de la simulation des grandes échelles.

À la suite de ma thèse, j'ai été recruté en novembre 2004 comme ingénieur chercheur par l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN). J'ai intégré la Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) afin d'étudier le comportement des produits de fission en situation accidentelle (2004-2009). Ce changement d'établissement s'est accompagné d'une évolution notable de mes recherches notamment sur le plan de leurs finalités. En outre, j'ai dû effectuer un changement thématique fort puisque l'étude des produits de fission dans le combustible nucléaire demande une

bonne connaissance en physique du solide. J'ai contribué à deux axes de recherche : le premier axe, plutôt fondamental, consiste en l'étude de la stabilité des produits de fission dans le dioxyde d'uranium par calcul *ab initio* (A-[5], A-[7], A-[10], A-[11], A-[15]) et le second axe, beaucoup plus appliqué, en l'étude du relâchement des produits de fission en situation accidentelle (A-[6], A-[12], A-[13], A-[17], A-[14], A-[16]).

Depuis 2009, je travaille sur la sûreté des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium. La première partie de mes activités de recherche concerne les scénarios d'accidents conduisant à une dégradation du cœur du réacteur. En outre, j'ai repris une activité sur la simulation numérique d'écoulements turbulents afin de pouvoir étudier les risques de fâiencage thermique particulièrement importants pour ce type de réacteur. En effet, les hauts niveau de température et la forte conductivité du sodium induisent des contraintes thermiques importantes aux aciers de la cuve et des conduites du réacteur (A-[19]).

Mes activités de recherche se sont insérées dans une démarche d'amélioration du niveau de sûreté des centrales nucléaires. Dans cet objectif, j'ai travaillé à la fois dans le domaine de la mécanique de fluide et de la physique du solide. Dans ce mémoire, il m'a semblé naturel de regrouper mes travaux selon leur rattachement à ces deux grands domaines de la physique.

Dans le chapitre 2, j'ai rassemblé les études de thermohydraulique par simulation des grandes échelles. Ce chapitre s'articule en trois parties : 2-1) des développements pour la simulation des grandes échelles en thermique ; 2-2) leur validation et application *via* l'étude de l'impact de l'effusion sur les propriétés d'une couche limite turbulente ; et 2-3) l'étude du risque de fâiencage thermique dans des Té de mélange.

Dans le chapitre 3, j'ai synthétisé mes travaux de recherche liés aux produits de fission dans le combustible. J'ai décrit dans une première partie (3-1) les principaux résultats de l'étude de la stabilité des produits de fission dans le dioxyde d'uranium par calcul *ab initio*. Le développement et la validation de modèles de relâchement de plusieurs produits de fission hors du combustible en situation accidentelle sont exposés dans la seconde partie (3-2).

Enfin, j'ai compilé en annexe de ce mémoire un exemplaire de quelques articles importants publiés dans des revues internationales.

## Chapitre 2

# Dynamiques et thermiques d'écoulements turbulents

---

La recherche en thermohydraulique a de multiples domaines d'applications tels l'aéronautique, l'automobile ou le nucléaire. Pour ce dernier, les champs d'applications sont larges puisque doivent être étudiés des écoulements monophasiques (e.g. circulation du réfrigérant dans le circuit primaire, évaluation des pertes de charges, estimation de la marge à l'ébullition dans le cœur du réacteur), des écoulements diphasiques (e.g. écoulements dans les générateurs de vapeurs, ébullition du réfrigérant primaire en situation accidentelle), et même multiphasiques (e.g. mélange acier liquide, oxydes liquides et gaz dans un récupérateur de corium). Dans mes recherches, je me suis principalement attaché à étudier des écoulements monophasiques anisothermes avec notamment l'objectif de pouvoir estimer *a priori* les fluctuations de température et ainsi éviter des configurations critiques.

Un exemple de situation critique correspond à la rupture d'une tuyauterie du circuit primaire ou d'un circuit secondaire d'un réacteur à eau sous pression. Cette rupture de tuyauterie conduit à un fort relâchement de vapeur d'eau dans l'enceinte. Il s'ensuit

une élévation de température et de pression importante de l'atmosphère de l'enclainte. Selon que la rupture envisagée se situe sur le circuit primaire ou secondaire, l'accident est appelé APRP (accident de perte de réfrigérant primaire) ou RTV (rupture de tuyauterie de vapeur). Ce type d'accident peut conduire à un échauffement des crayons combustibles qui doit rester limité afin que l'endommagement du combustible ne mette pas en cause le refroidissement du cœur du réacteur et évite sa fusion. Pour ce qui est des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium de type piscine comme Phénix et SuperPhénix, le risque et les conséquences d'une perte de réfrigérant primaire sont nettement réduits. En effet, La cuve de sécurité, présente sur ce type de réacteurs, est dimensionnée afin d'éviter de dénoyer le cœur en cas de brèche sur la cuve principale. En revanche, le risque de brèche par faïençage thermique est accrue pour ce qui est des circuits intermédiaires et auxiliaires du fait des forts écarts de température rencontrés au niveau des Té de mélange. En outre, les conséquences des fuites de sodium peuvent être très importantes de par la forte réactivité du sodium avec l'eau et l'air.

Afin de pouvoir estimer les risques de faïençage thermique sur les composants des centrales nucléaires, il est nécessaire d'avoir une évaluation des fluctuations de températures dans des écoulements fortement turbulents. Pour ce faire, on peut avoir recours à la simulation numérique avec, par exemple, des méthodes de type RANS (« *Reynolds Averaged Navier-Stokes* ») ou SGE (« *Simulation des Grandes Échelles* »). J'ai rassemblé dans ce chapitre les travaux de recherche relatifs à cette problématique : la première partie (2.1) est consacrée à des développements pour la simulation des grandes échelles d'écoulements turbulents anisothermes ; la seconde partie (2.2) à la validation et à l'application de ces développements pour l'étude de l'impact de l'effusion sur les propriétés d'une couche limite turbulente ; et la troisième partie (2.3) à l'étude du faïençage thermique dans des Té de mélange.

## **2.1 Modélisation pour la simulation des grandes échelles en thermique**

Plusieurs types d'outils permettent d'étudier numériquement un écoulement turbulent (Lesieur, 2007). Le plus « exact » est la Simulation Numérique Directe (SND ou DNS pour *Direct Numerical Simulation*), qui consiste en une résolution complète des échelles de temps et d'espace de l'écoulement considéré. Cette méthode est donc très précise mais aussi très coûteuse en temps de calculs. Par conséquent, la SND est difficilement utilisable en-dehors de l'étude de cas relativement simples (nombres de

Reynolds modérés, géométries simples). Une autre méthode de simulation, appelé *Reynolds Averaged Navier-Stokes* (RANS), consiste en une modélisation statistique de l'écoulement. Chaque grandeur turbulente est considérée comme la somme d'une valeur moyenne et d'une valeur fluctuante. Les équations-bilan sont alors moyennées, faisant apparaître un terme inconnu : le tenseur de Reynolds. Plusieurs modélisations existent pour représenter ce terme (modèle de la longueur de mélange, modèle  $k-\varepsilon$ , modèle  $k-\Omega$ ...). Cette technique présente l'avantage de nécessiter des temps de calcul beaucoup moins importants que la SND mais elle est en contrepartie moins précise. Un bon compromis est offert par la Simulation des Grandes Échelles (SGE ou LES pour *Large Eddy Simulation*) qui, avec des temps de calcul plus raisonnables qu'une SND, donne des résultats d'une précision supérieure à celle des méthodes RANS et peut traiter des problèmes instationnaires. Il est important de souligner que les 3 méthodes présentées ci-dessus sont les plus répandues mais ne sont pas les seules. Il existe en effet des approches hybrides telles que les méthodes URANS (*Unsteady Reynolds Averaged Navier-Stokes*), la VLES (*Very Large Eddy Simulation*), la DES (*Detached Eddy Simulation*) et la MILES (*Monotone Integrated Large Eddy Simulation*) (Spalart, 2000 ; Nikitin *et al.*, 2000).

En simulation des grandes échelles, plusieurs aspects doivent être étudiés avec attention (Mellen *et al.*, 2003 ; Lesieur, 2007 ; Schneider *et al.*, 2010). Le choix des méthodes et schémas numériques est notamment l'un des paramètres les plus importants pour la qualité des résultats et fait l'objet de beaucoup de travaux en simulation des grandes échelles. On peut notamment noter les études relatives aux schémas numériques pour l'équation de l'énergie (Châtelain *et al.*, 2004) ou pour la résolution des algorithmes Bas Mach (Nicoud et Bradshaw, 2000 ; Xu *et al.*, 2005 ; Zainali et Lessani, 2010 ; Gravemeier et Wall, 2010). Une autre problématique capitale en simulation des grandes échelles est le traitement des conditions aux limites et en particulier des parois solides. De nombreuses études sont par exemple menées sur le traitement des géométries complexes et la génération de maillages adaptés. L'*Immersed Boundary Method* (IBM) apparaît comme une technique intéressante pour les géométries complexes (Moin, 2002 ; Verzicco, 2005 ; Posa *et al.*, 2011). À l'approche d'une paroi, la méthode la plus classique est d'utiliser un maillage irrégulier raffiné près du solide. La dérivation de lois de parois pour le champ dynamique ainsi que pour le champ thermique constitue également un thème de recherche important (Kader, 1981 ; Cabot et Moin, 1999 ; Châtelain *et al.*, 2003 ; Artal et Nicoud, 2005 ; Lu *et al.*, 2010). Dans certaines configurations, une entrée de fluide turbulente doit être utilisée sur certaines frontières du domaine. Une telle entrée de fluide a une forte influence sur la qualité des résultats. Enfin, la modélisation sous-maille revêt une

importance fondamentale en simulation des grandes échelles car son rôle est de représenter l'action des petites échelles qui ne sont pas simulées.

Parmi ces aspects importants pour la qualité d'un calcul par simulation des grandes échelles, deux ont fait l'objet de travaux et sont présentés dans cette partie : la définition d'une entrée turbulente et la modélisation du terme de diffusivité sous-maille.

### 2.1.1 Condition d'entrée de fluide turbulente

L'une des difficultés majeures de l'étude du développement spatial des écoulements turbulents vient de la très grande sensibilité de l'écoulement à la condition d'entrée de fluide choisie. Cette forte sensibilité des simulations à la condition d'entrée de fluide a été observée sur de multiples configurations telles qu'un jet plan (Klein *et al.*, 2003), une marche (Jarrin *et al.*, 2003) ou le développement d'une couche limite turbulente (Lund *et al.*, 1998). Trois grands types de méthodes ont été développés : les méthodes avec génération de turbulence aléatoire allant du bruit blanc à la méthode des vortex (Ducros *et al.*, 1996 ; Sergent, 2002 ; Jarrin *et al.*, 2006 ; Pamiès *et al.*, 2009) ; les méthodes avec recyclage (Spalart, 1988 ; Akselvol et Moin, 1996 ; Cook et Riley, 1996) et les méthodes utilisant une base de données (Druault *et al.*, 1999 ; Maruyama *et al.*, 1999 ; Perret *et al.*, 2006). Compte tenu des différentes entrées turbulentes proposées dans la littérature, une méthode de recyclage utilisant un écoulement parallèle a été retenue à la fois pour sa simplicité et sa robustesse. Notons que la méthode décrite ci-après est valable pour la vitesse mais également pour la température.

#### Méthode de recyclage des fluctuations

Nous considérons deux domaines de calcul. Le premier domaine est utilisé pour générer des fluctuations qui sont introduites en entrée du second domaine (voir figure 1). Le premier domaine de calcul correspond à un canal plan turbulent chauffé et le second domaine à l'évolution spatiale d'une couche limite turbulente. Pour que la définition de l'entrée turbulente soit la plus précise possible, il est souhaitable que l'écoulement simulé dans le canal soit le plus proche possible de celui se développant dans le second domaine (*i.e.* le domaine d'étude). Pour ce faire, nous avons considéré le même fluide pour les deux calculs ainsi que la même vitesse de frottement. Ainsi, la bi-couche limite du canal est très proche de la couche limite turbulente en entrée du second domaine.

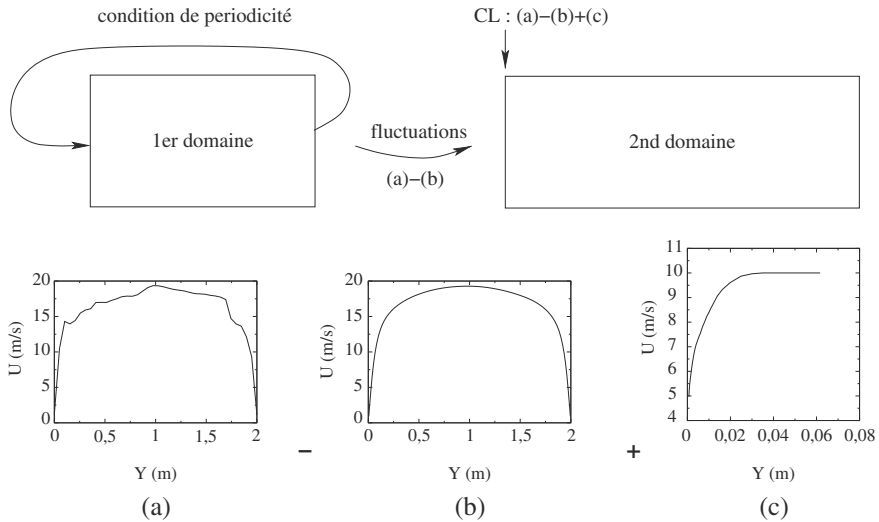


Figure 1. Méthode de recyclage des fluctuations du canal à l'entrée du second domaine. (a) profil instantané calculé dans le premier domaine; (b) profil moyen calculé dans le premier domaine; (c) profil moyen mesuré expérimentalement en début du second domaine.

Afin de permettre la définition de l'entrée du second domaine en relation avec les données expérimentales, on impose au profil moyen d'être égal à celui mesuré expérimentalement. Aussi, seules les fluctuations du canal sont introduites à l'entrée du second domaine et non le champ total. Les fluctuations du canal sont obtenues par  $(a)-(b)$  (cf. figure 1), c'est-à-dire le profil instantané moins le profil moyen. Le profil instantané est pris à chaque pas de temps dans le canal turbulent et le profil moyen est lu dans un fichier sur le disque dur. Ensuite, seule la moitié du profil des fluctuations est prise en compte (correspondant à une couche limite). Afin que le profil des fluctuations ainsi généré en entrée du second domaine corresponde au mieux aux données expérimentales, nous avons utilisé deux coefficients  $\alpha_U$  et  $\alpha_y$ . Ces deux facteurs nous permettent d'ajuster l'amplitude et la position du maximum des fluctuations. Enfin, la condition d'entrée de fluide correspond à la somme des fluctuations obtenues dans le canal et du profil moyen de la couche limite selon :

$$(c) + \alpha_U * [(a) - (b)] (\alpha_y * y) \quad (1)$$

L'entrée turbulente ainsi définie permet d'imposer la vitesse et la température pour chaque pas de temps et en tout point du plan d'entrée du second domaine.



## Cas test du canal plan turbulent

Pour vérifier la pertinence de l'entrée de fluide décrite précédemment, il faut vérifier que cette condition permet bien de créer des fluctuations en entrée de domaine mais également que ces fluctuations ne sont pas atténuées par la suite. Pour ce faire, nous avons considéré dans un premier temps un cas où les deux domaines sont identiques. Le premier domaine correspond à un canal plan turbulent périodique et le second à un canal plan « évolutif » avec, pour condition d'entrée, la vitesse du canal plan turbulent périodique. L'ensemble des conditions aux limites de cet exemple est donné sur la figure 2. Les caractéristiques des deux maillages sont identiques et sont données par  $2\pi h \times 2h \times \pi h$  pour  $64 \times 65 \times 32$  nœuds. Le nombre de Reynolds de frottement est fixé à 360 et la résolution du maillage est donnée par :  $\Delta_x^+ \simeq 37$ ,  $\Delta_y^+ \simeq 1$  à 23 et  $\Delta_z^+ \simeq 37$ . Nous considérons aux parois une condition de non-glisement pour la vitesse associée à une condition de paroi adiabatique sur la paroi supérieure et à une condition de flux imposé sur la paroi inférieure.

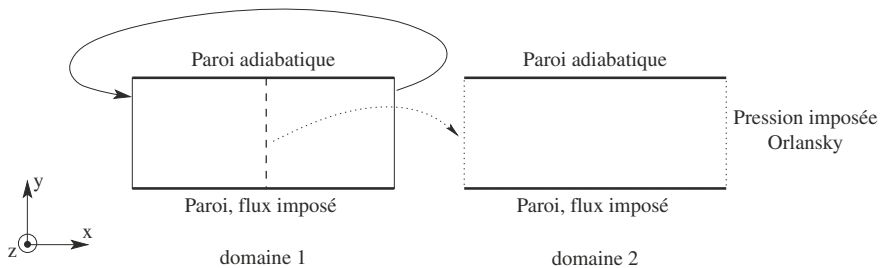


Figure 2. Conditions aux limites de la simulation.

Dans le premier domaine, le canal plan périodique a atteint un état d'équilibre et n'évolue plus spatialement. Par conséquent, on s'attend à retrouver le même écoulement dans le second domaine et à ce que celui-ci n'évolue pas spatialement. Pour vérifier ceci, nous avons calculé les valeurs moyennes et fluctuantes de la vitesse et de la température dans des plans perpendiculaires à l'axe longitudinal et espacés entre eux d'une distance  $h$ . Nous comparons ces profils aux profils de « référence » calculés dans le premier domaine. On observe que les profils moyens (cf. figures 3(a) et 3(c)) et les profils des fluctuations (cf. figure 3(b) et 3(d)) de la vitesse et de la température dans le second domaine correspondent bien à ceux du canal plan turbulent périodique simulé dans le premier domaine. Ainsi, la condition d'entrée de fluide utilisée remplit bien les deux objectifs fixés initialement. D'une part, elle génère la turbulence dans l'écoulement et d'autre part, elle permet à cette turbulence de « se propager » dans le second domaine.

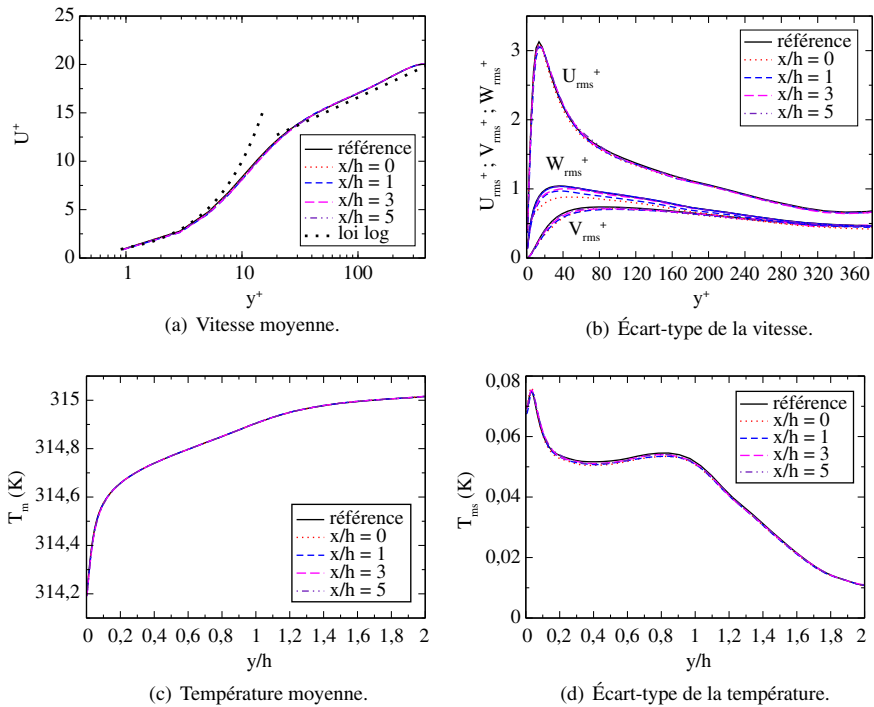


Figure 3. Profils de vitesse et de température dans le second domaine.

Considérant les faibles niveaux des fluctuations des composantes  $V$  et  $W$ , il est légitime de s'interroger sur l'importance d'imposer des valeurs fluctuantes à ces deux composantes. La simulation précédente a donc été reprise, mais cette fois-ci, seules les fluctuations de la composante longitudinale de la vitesse sont extraites du premier domaine. Les composantes verticale et transverse sont prises égales à zéro. Ce faisant, nous observons que les profils des fluctuations de vitesse sont altérés et n'ont toujours pas atteint le niveau attendu à une distance de  $x/h = 5$  après l'entrée du second domaine. Il apparaît donc que la phase de transition pendant laquelle il y a une redistribution des fluctuations de vitesse selon les trois composantes est relativement longue. Ce fait est d'autant plus dommageable que l'allure du profil moyen de vitesse est modifiée pendant cette phase. En outre, le fait d'imposer des fluctuations uniquement suivant la composante longitudinale de la vitesse a également une influence sur le profil des fluctuations de température. Par conséquent, il semble important d'imposer en entrée de domaine une condition limite tridimensionnelle, c'est-à-dire d'imposer des fluctuations suivant les trois composantes de la vitesse.

L'écoulement dans le second domaine est un écoulement forcé et donc les fluctuations de la température dans le second domaine de calcul peuvent être générées par le champ de vitesse turbulent. Néanmoins, on peut s'interroger sur la longueur de la zone de transition et donc sur l'importance d'imposer des fluctuations de température conjointement aux fluctuations de vitesse. Une simulation sans fluctuations de température en entrée du second domaine montre que le niveau des fluctuations de température n'augmente que très lentement spatialement. Une différence d'évolution apparaît même suivant la condition aux limites thermique sur les parois. Pour une paroi avec un flux imposé, une distance de  $5h$  est nécessaire pour retrouver le niveau des fluctuations attendu. Pour une paroi adiabatique, l'évolution spatiale des profils de température est très lente. Cette propriété est ici très dommageable puisque après une distance de  $5h$ , le niveau des fluctuations de température est encore très inférieur à celui attendu ( $< 10\%$ ). Ces observations peuvent s'expliquer en étudiant le terme de l'équation d'énergie où apparaissent à la fois la vitesse et la température. Les fluctuations de vitesse vont générer des fluctuations de température au travers du terme de convection de l'équation d'énergie :  $\vec{U} \cdot \vec{\text{grad}}T$ . En effet, l'écoulement étant invariant suivant les directions longitudinale et transverse, on a en moyenne  $\partial T / \partial x = 0$  et  $\partial T / \partial z = 0$ . Ainsi, pour la paroi à flux imposé, seules les fluctuations de la composante verticale de la vitesse peuvent engendrer des fluctuations de température. Pour la paroi adiabatique, s'ajoute la condition  $\partial T / \partial y = 0$ . Par conséquent, il apparaît difficile de générer des fluctuations de température au-dessus d'une paroi adiabatique en utilisant les fluctuations de vitesse. Il apparaît donc qu'une condition d'entrée turbulente pour la température est indispensable pour générer de bons profils de température dans le second domaine de calcul.

### 2.1.2 Diffusivité sous maille

Le développement de nouveaux modèles sous-mailles de viscosité et de diffusivité requiert une bonne connaissance du comportement asymptotique des variables en proche paroi. Ainsi, le modèle de Smagorinsky (Smagorinsky, 1963) ne peut être utilisé pour simuler la sous-couche visqueuse car il surestime la viscosité sous-maille dans cette région tandis que le modèle WALE (Nicoud et Ducros, 1999) est construit de façon à avoir le bon comportement pariétal. En outre, il apparaît que la résolution des grandeurs turbulentes en proche paroi est d'une importance capitale en simulation numérique, et tout particulièrement en simulation des grandes échelles, car elle conditionne la qualité de la simulation sur l'ensemble de l'écoulement. L'une des difficultés majeures réside dans la très faible épaisseur de la zone de proche paroi

dans laquelle les phénomènes physiques principaux apparaissent. C'est pourquoi, il est d'usage de recourir à une recherche des comportements asymptotiques des grandeurs turbulentes dans cette zone.

Afin de pouvoir étudier l'influence de la condition limite en température sur les comportements asymptotiques que doivent vérifier les modèles de viscosité et de diffusivité sous-maille, nous devons préalablement établir le comportement asymptotique d'un écoulement pariétal dans le cadre de la simulation des grandes échelles. Ainsi, il nous faut prendre en compte la spécificité de la notion de filtrage inhérente à la simulation des grandes échelles. Les notions de filtre et de variables filtrées sont alors prises en compte pour étudier le comportement de la vitesse, de la température, ainsi que de leurs corrélations en proche paroi.

Les coefficients des développements asymptotiques dépendent du filtre considéré. Cependant, les comportements des modèles sous-maillages sont indépendants du choix du filtre. Pour les modèles sous-maille qui ont recours à l'hypothèse de Boussinesq, on écrit que le tenseur des contraintes sous-maille est proportionnel au tenseur des déformations :  $\tau_{ij} = 2\nu_{sm}S_{ij}$ , avec  $S_{ij} = \frac{1}{2}(\partial_j\bar{u}_i + \partial_i\bar{u}_j)$ , avec  $\nu_{sm}$  la viscosité sous-maille. Afin de déterminer le comportement asymptotique de la viscosité sous-maille, on récapitule dans le tableau 1 les équivalents du tenseur des contraintes sous-maille  $\tau_{ij}$  et du tenseur des déformations  $S_{ij}$ .

Tableau 1. Comportement asymptotique de  $\tau_{ij}$ ,  $S_{ij}$  et  $\nu_{sm}$ .

	$\tau_{ij}$	$S_{ij}$	$\nu_{sm}$
$i = 1, j = 1$	$y^2$	$y$	$y$
$i = 1, j = 2$	$y^3$	1	$y^3$
$i = 1, j = 3$	$y^2$	$y$	$y$
$i = 2, j = 2$	$y^4$	$y$	$y^3$
$i = 2, j = 3$	$y^3$	1	$y^2$
$i = 3, j = 3$	$y^2$	$y$	$y$

Il apparaît alors plusieurs comportements asymptotiques pour la viscosité sous-maille suivant la projection effectuée. Cependant, les données de la littérature montrent qu'il est important de bien appréhender le comportement de  $\tau_{12}$ . Par conséquent, le comportement recherché de la viscosité sous-maille est donné par :

$$\nu_{sm} \sim y^3 \quad (2)$$

De même que précédemment, on peut vérifier si le comportement du modèle sous-maille thermique choisi est correct en proche paroi. L'hypothèse de Boussinesq pour

l'équation d'énergie se traduit par la relation :  $\mathfrak{J}_j = -\kappa_{sm}\partial_j T$ , où  $\kappa_{sm}$  est la diffusivité sous-maille. Afin de déterminer le comportement asymptotique de la diffusivité sous-maille, on récapitule dans les tableaux suivants les équivalents des composantes du gradient de température et du vecteur des contraintes thermiques sous-maille. On utilisera dans la suite le développement limité de la température selon  $T = T^{(0)} + T^{(1)}y + T^{(2)}y^2 + T^{(3)}y^3 + O(3)$ .

- Premier cas : paroi isotherme

Dans ce cas, on a  $\vartheta_0 = T_{impose}$ , et donc  $\vartheta_0$  n'est plus une fonction de  $(x, z, t)$  mais une constante. On a alors le tableau suivant pour les équivalents en proche paroi des grandeurs principales :

Tableau 2. Comportement asymptotique de  $\mathfrak{J}_j$ ,  $\partial_j T$  et  $\kappa_{sm}$  pour une condition aux limites de paroi isotherme.

	$\mathfrak{J}_j$	$\partial_j T$	$\kappa_{sm}$
j = 1	$y^2$	$y$	$y$
j = 2	$y^3$	1	$y^3$
j = 3	$y^2$	$y$	$y$

- Deuxième cas : paroi adiabatique

Dans ce cas, on a  $\vartheta_1 = \Phi_{impose} = 0$ , et donc on a le tableau suivant pour les équivalents en proche paroi des grandeurs principales :

Tableau 3. Comportement asymptotique de  $\mathfrak{J}_j$ ,  $\partial_j T$  et  $\kappa_{sm}$  pour une condition limite de paroi adiabatique.

	$\mathfrak{J}_j$	$\partial_j T$	$\kappa_{sm}$
j = 1	$y$	1	$y$
j = 2	$y^2$	$y$	$y$
j = 3	$y$	1	$y$

- Troisième cas : paroi avec un flux imposé

Dans ce cas on a  $\vartheta_1 = \Phi_{impose}$ , et donc  $\vartheta_1$  n'est plus une fonction de  $(x, z, t)$  mais une constante. On a alors le tableau suivant pour les équivalents en proche paroi des grandeurs principales :

Tableau 4. Comportement asymptotique de  $\mathfrak{T}_j$ ,  $\partial_j T$  et  $\kappa_{sm}$  pour une condition limite de paroi avec un flux imposé.

	$\mathfrak{T}_j$	$\partial_j T$	$\kappa_{sm}$
j = 1	y	1	y
j = 2	y <sup>2</sup>	1	y <sup>2</sup>
j = 3	y	1	y

Il apparaît plusieurs comportements asymptotiques pour la diffusivité sous-maille suivant la projection effectuée. Cependant, l'expérience montre qu'il est important de bien appréhender le comportement de  $\mathfrak{T}_2$ . Par conséquent, selon la condition limite de paroi utilisée, le comportement recherché de la diffusivité sous-maille est donné par :

- **paroi isotherme** :  $\kappa_{sm} \sim y^3$
- **paroi adiabatique** :  $\kappa_{sm} \sim y$
- **paroi avec un flux imposé** :  $\kappa_{sm} \sim y^2$

On retrouve le comportement observé par Kong *et al.* (2000) pour la simulation numérique directe d'un canal plan turbulent avec les conditions aux limites de température imposée et de flux imposé. On remarque que pour une condition limite de paroi isotherme, l'hypothèse de nombre de Prandtl sous-maille constant ( $P_r^t = \frac{\nu_{sm}}{\kappa_{sm}} = Cste$ ) permet d'avoir le bon comportement asymptotique pour la diffusivité sous-maille (évidemment à condition d'avoir le bon comportement asymptotique pour la viscosité sous-maille). Cependant, on note que, pour les conditions aux limites de paroi adiabatique et de paroi avec flux imposé, l'hypothèse de nombre de Prandtl sous-maille constant implique un mauvais comportement asymptotique de la diffusivité sous-maille. La diffusivité sous-maille est alors sous-estimée d'un ordre de grandeur en y pour la condition limite de paroi avec flux imposé et de deux ordres de grandeur en y pour la condition limite de paroi adiabatique.

## Conclusion

La simulation de certaines configurations nécessite l'utilisation d'une entrée turbulente. Une entrée turbulente a été développée sur la base d'un recyclage des fluctuations de la vitesse et de la température calculées dans un domaine annexe (un canal plan turbulent). Il a été mis en évidence l'importance d'imposer en entrée de domaine une condition limite tridimensionnelle, c'est-à-dire d'imposer des fluctuations suivant les trois composantes de la vitesse mais aussi d'imposer les fluctuations de température. En effet, si ces dernières peuvent être générées par les fluctuations de vitesses, la distance pour l'atteinte d'un équilibre est extrêmement longue.

Cette entrée turbulente a été mise en application pour étudier l'impact d'une effusion froide à travers une paroi poreuse sur les caractéristiques d'une couche limite turbulente. Cette étude est décrite dans la prochaine partie de ce mémoire.

La modélisation de la viscosité et de la diffusivité sous-maille est cruciale pour la qualité des calculs par simulation des grandes échelles. Cette modélisation doit prendre en compte la forme des spectres turbulents de vitesse et de température (Bataille *et al.*, 2006) et le comportement asymptotiques des variables en proche paroi. Le comportement de la diffusivité sous-maille en proche paroi dépend fortement de la condition aux limites thermique considérée. L'utilisation d'un modèle à Prandtl sous-maille constant n'apparaît donc pas satisfaisante pour la simulation d'écoulement pariétaux et le recours à des modèles plus élaborés est souhaitable.

## ***2.2 Impact d'une effusion froide sur une couche limite turbulente***

La simulation des grandes échelles d'écoulement turbulents anisothermes requiert certains modèles spécifiques que nous avons détaillés dans la partie précédente (principalement une condition d'entrée de fluide turbulente et une modélisation sous maille adaptée). Ce pré-requis étant rempli, regardons maintenant deux configurations d'applications : *i*) le refroidissement et la protection d'une paroi chaude par effusion d'un fluide froid dans une couche limite turbulente (partie ci-dessous) et *ii*) l'évaluation des fluctuations de température lors d'un mélange de deux écoulements turbulents à des températures distinctes (partie suivante).

Afin d'accroître les rendements de moteurs à flux continus tels les turboréacteurs, les turbines à gaz ou les moteurs de fusées, il est souvent envisagé d'augmenter la température des gaz de combustion. Pour éviter la détérioration des parois soumises à de très fortes contraintes thermiques, des systèmes de protection thermique doivent être mis en place tels l'injection discrète, l'ablation ou l'effusion. L'injection discrète consiste à générer un film protecteur au niveau de la paroi par injection de gaz ou de liquide à travers des orifices (*cf.* Shembharkar et Pai, 1986 ; Ligrani *et al.*, 1997 ; Khalatov, 1988 ; Facchine *et al.*, 2000). Cette protection est assez efficace mais nécessite une quantité importante en fluide réfrigérant et entraîne une fragilisation de la paroi à cause des orifices. Il faut également noter dans ce type de refroidissement, celui effectué par convection interne qui consiste à envoyer de l'air frais sur la partie interne de la paroi (*cf.* Carcasi et Facchini, 1996). L'ablation consiste à recouvrir la paroi d'un matériau se sublimant au contact des gaz chauds. Cette méthode

est notamment utilisée pour les navettes et les sondes spatiales (cf. Green et Davy, 1981). Enfin, il existe un dernier procédé qui consiste à effuser un fluide froid à travers une paroi poreuse. Le refroidissement par effusion est très homogène puisque le fluide traverse la paroi. Ce procédé est efficace et permet une faible consommation de fluide réfrigérant mais nécessite un fluide propre pour éviter tout risque d'encrassement du matériaux poreux. L'effusion est également envisagée dans les échangeurs de chaleur ou pour le dégivrage des bords d'attaque des nacelles de moteurs aéronautiques. Dans ce dernier cas, l'effusion sert à réchauffer la paroi pour prévenir la formation de givre (Marchand *et al.*, 2000). D'autre part, l'effusion ou l'injection discrète ont un impact sur la dynamique de l'écoulement. Ainsi, en injectant à la base d'un profil d'aile, Wood (1964) avait montré que la traînée diminuait de façon importante et que les caractéristiques des tourbillons qui se détachent sont modifiées.

L'effusion à travers des parois planes en situation isotherme suscite de l'intérêt depuis de nombreuses années. Rubesin (1954) initie ce thème en étudiant une couche limite dynamique soumise à de l'effusion et détermine des corrélations simples appliquées au coefficient de frottement. L'efficacité de l'effusion en terme de température de paroi est mesurée au moyen du taux d'injection (ou d'effusion)  $F$  défini selon :

$$F = \frac{\rho_{inj} U_{inj}}{\rho_{\infty} U_{\infty}} \quad (3)$$

De faibles écarts de température entre l'écoulement principal et le fluide injecté sont pris en compte pour les premières fois par Moffat et Kays (1968), Simpson *et al.* (1970) et Whitten *et al.* (1970). Leurs travaux expérimentaux ont permis de caractériser le nombre de Stanton en présence d'effusion et d'établir des corrélations permettant le calcul du nombre de Stanton en fonction du taux d'injection. Cependant, ces résultats ne sont utilisables que pour de faibles taux d'injection et de faibles écarts de température entre le fluide principal et le fluide injecté. Bellettre (1998) a montré la forte efficacité du refroidissement de la paroi par effusion. La protection maximum est atteinte pour un très faible taux d'injection (de l'ordre de 1,5 %, Bellettre, 1998). Il apparaît que pour refroidir la plaque, l'effusion consomme beaucoup moins de fluide froid que l'injection discrète (Bellettre *et al.*, 2000). Cela est très intéressant en terme de rendement pour les moteurs refroidis par injection discrète car le fluide froid provient de la première chambre de combustion.

Parallèlement à ces études expérimentales, des études théoriques ont été menées. Ces études décrivent, pour la plupart, le profil de vitesse dans la couche limite en présence d'effusion et établissent de nouvelles lois de parois faisant intervenir le taux d'injection afin de prédire le comportement dynamique de la couche limite



modifiée par l'injection (Squire, 1969 ; Moffat et Kays, 1984 ; White, 1991 et Silva-Freire *et al.*, 1995). D'autre part, des modélisations utilisant la longueur de mélange ont également été développées.

C'est en vue d'applications de protections thermiques que l'étude de l'effusion a débuté au Centre de thermique de Lyon (CETHIL) au début des années 1990. Plus généralement, les travaux du laboratoire ont porté sur les transferts dans les milieux poreux et dans les couches limites en présence d'effusion sur deux configurations différentes (Bataille, 2000 ; Bataille *et al.*, 2002). La première configuration correspond à une couche limite turbulente qui évolue au-dessus d'une paroi plane. Cette configuration permet d'étudier précisément l'influence de l'effusion sur un écoulement pariétal. La seconde configuration correspond à l'écoulement à l'aval d'un cylindre et permet d'évaluer l'impact de l'effusion sur des phénomènes instationnaires tels que les allées de Von Karman.

Dans cette partie du mémoire, une double étude expérimentale et numérique est présentée sur la configuration de l'effusion à travers une partie poreuse. Cette double étude a permis de mieux comprendre les interactions entre l'écoulement principal et le fluide secondaire effusé. En outre, les données expérimentales sur cette configuration relativement exigeante est un excellent cas d'étude pour la validation d'un code ou de modèles de simulation des grandes échelles.

## 2.2.1 Étude expérimentale

### Dispositif expérimental

Nous nous sommes intéressés à un écoulement pariétal au-dessus d'une paroi plane poreuse, comme représenté à la figure 4. L'écoulement principal de vitesse  $U_\infty = 10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  est de l'air chauffé à la température  $T_\infty = 40^\circ\text{C}$ . Afin de pouvoir effectuer des comparaisons avec des simulations utilisant un solveur incompressible avec l'hypothèse de Boussinesq, nous avons choisi de limiter l'écart de température dans l'écoulement à  $20^\circ\text{C}$ . Dans un premier temps, une couche limite se développe au-dessus d'une paroi imperméable de 1,13 m de long. Le nombre de Reynolds basé sur la longueur de la paroi est évalué à  $Re = 7,5 \times 10^5$ . Afin de s'assurer que l'écoulement en début de plaque poreuse correspond à une couche limite turbulente établie, un tasseau métallique de  $1 \text{ cm}^2$  de section et de 49 mm de long est disposé en début de paroi imperméable.

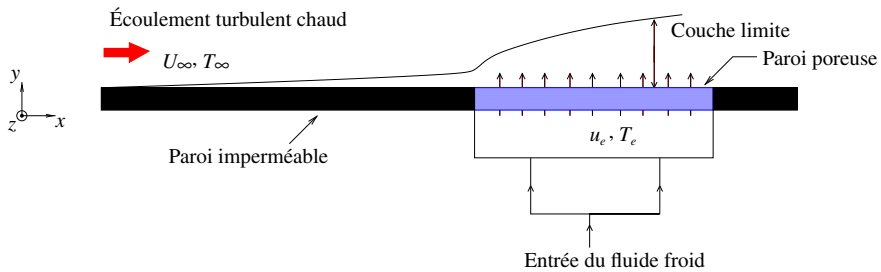


Figure 4. Configuration générale de l'étude.

Au-dessus de la paroi poreuse, l'écoulement pariétal est fortement modifié par l'effusion d'air froid. La plaque poreuse, en acier inoxydable fritté, est disposée au-dessus d'un caisson de tranquillisation afin d'obtenir une effusion d'air la plus homogène possible sur toute la surface. L'air effusé provient du réseau d'air comprimé.

Les mesures de vitesses et de températures sont effectuées au moyen d'un système d'anémométrie fils chauds / fils froids. Les deux objectifs principaux de cette étude sont, d'une part, la mesure de la vitesse et de la température dans toute la couche limite et en particulier en proche paroi et d'autre part, la mesure des corrélations vitesse-vitesse et vitesse-température dans la couche limite. Pour répondre au premier objectif (mesure de vitesse et de température en proche paroi), nous avons considéré un fil chaud simple de Wollaston en platine-rhodium (10 %) de  $5\ \mu\text{m}$  de diamètre et un fil froid en platine de  $1\ \mu\text{m}$  de diamètre. Un système mécanique nous permet de positionner ces deux fils parallèles à la paroi. Le fil chaud, situé le plus près de la paroi, permet de mesurer la vitesse jusqu'à une distance d'environ  $0,2\ \text{mm}$  de la paroi, ce qui correspond à un  $y^+$  de l'ordre de 5 pour la couche limite turbulente en début de plaque poreuse. Le fil froid est situé à environ  $1\ \text{mm}$  au-dessus du fil chaud. Cette distance est déterminée à la fois par les contraintes du montage mécanique et pour éviter d'éventuelles interférences entre les deux fils. Le positionnement des fils dans la couche limite est obtenu au moyen d'un chariot muni d'une vis micrométrique sans fin. Pour répondre au second objectif (mesure des corrélations), nous avons mis en place un support commun pour deux fils chauds croisés et un fil froid. Les trois fils sont des fils de Wollaston en platine-rhodium (10 %) de  $5\ \mu\text{m}$  pour les deux fils chauds et de  $1\ \mu\text{m}$  pour le fil froid. Ce système de sonde nous donne accès aux corrélations vitesse-vitesse et vitesse-température mais ne nous permet pas de prendre des mesures dans la sous-couche visqueuse du fait de l'encombrement des broches.

Les fils chauds sont reliés à des modules Dantec 90C10 CTA qui régulent le courant dans les fils suivant la méthode d'anémométrie à température constante. Les fils froids sont reliés à un module Dantec 90C20 CCA. Les signaux sont alors acquis sur un PC. La carte est directement pilotée par le biais du logiciel Matlab<sup>®</sup>. Un programme de pilotage ainsi qu'une interface graphique ont été mis en place et permettent une utilisation simple et rapide du système d'acquisition. Les étalonnages des sondes fils chauds/froids s'effectuent directement dans la veine d'essai. Ce faisant, nous évitons les problèmes d'*offset* sur les tensions délivrées par changement des branchements mais les campagnes d'étalonnage des sondes sont rendues plus longues du fait de l'inertie thermique de la soufflerie. La vitesse de l'écoulement est mesurée au moyen d'un tube de Pitot. Ce dernier comporte cinq trous de prise de pression statique régulièrement espacés sur la périphérie et un trou de prise de pression totale. Notons que tous les profils présentés dans la suite ont été obtenus à une distance de 30 cm du début de la plaque poreuse.

### Mesures par anémométrie fils chauds/froids

Pour les mesures présentées dans cette partie, nous avons utilisé, pour tous les temps d'acquisition, la température délivrée par le fil froid pour calculer les coefficients de King nécessaires au calcul de la vitesse à partir des tensions délivrées par les fils chauds. Cependant, dans un premier temps, nous avons cherché à estimer l'erreur qui serait commise si seule la valeur moyenne de la température est connue et non plus la valeur instantanée. Ce faisant, nous n'avons pas observé de différence notable sur le profil moyen de vitesse ni sur les profils des facteurs de dissymétrie et d'aplatissement de la vitesse. En revanche, nous avons noté que le niveau des fluctuations de vitesse était sous-estimé (jusqu'à 30 %, cf. figure 5). On voit donc ici toute l'importance de pouvoir mesurer simultanément la température et la vitesse par anémométrie fils chauds et froids.

Afin de quantifier l'impact de l'effusion sur la paroi et plus précisément sur sa température, nous avons considéré deux possibilités pour accéder à la température de paroi  $T_p$ . D'une part, on mesure cette dernière au moyen d'un thermocouple soudé sur la paroi et, d'autre part, on extrapole les profils de température obtenus avec le fil froid. Ces deux mesures ont une marge d'erreur non négligeable. L'extrapolation des profils de température a tendance à donner une surestimation de la température de paroi car on sous-estime le gradient de température en n'approchant pas suffisamment de la paroi (surtout valable pour  $F \leq 1\%$ ). Malgré ces incertitudes, on note sur la figure 6

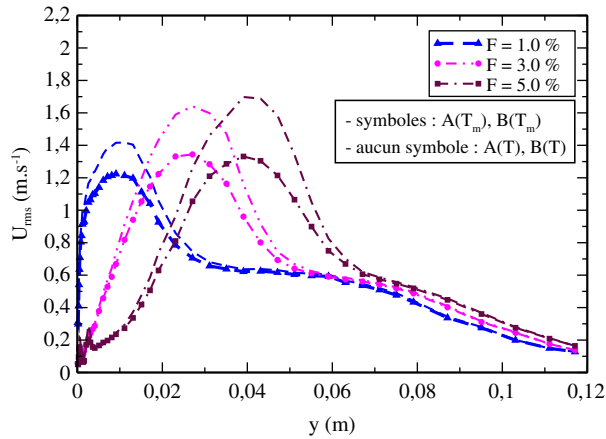


Figure 5. Fluctuations de vitesse en considérant la température moyenne  $T_m$  ou la température instantanée  $T$ .

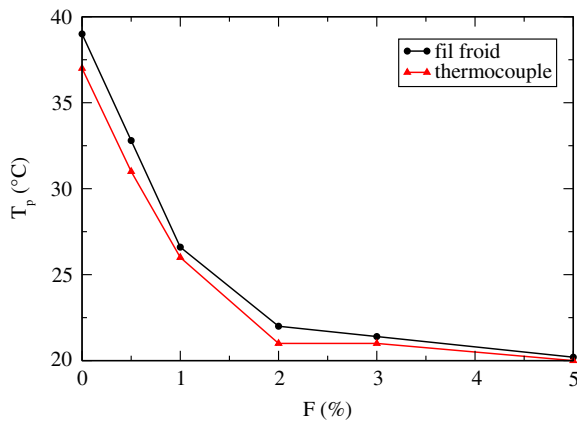


Figure 6. Température de paroi mesurée par extrapolation du profil de température ou par un thermocouple.

que les deux mesures donnent des résultats proches. Il apparaît ainsi que la température de paroi diminue très rapidement avec le taux d'effusion. On note donc que l'effusion est une technique efficace de protection thermique d'une paroi soumise à un flux de chaleur de la part d'un écoulement turbulent. Cependant, on ne possède ici qu'une information sur la température moyenne de la paroi. Si une diminution de cette dernière est souvent nécessaire pour éviter la détérioration de la paroi, il est également souhaitable que les fluctuations de température ne soient pas trop importantes. En effet, les basses fréquences (typiquement de 0,1 à 10 Hz) sont celles

qui pénètrent le plus dans le matériau. Elle peuvent provoquer un faïençage (développement de micro-fissures) et dégrader prématurément la paroi. On a observé que le niveau des fluctuations en très proche paroi est plus élevé en présence d'effusion mais n'atteint pas de valeurs importantes et ne semble pas augmenter avec le taux d'effusion (l'évolution des fluctuations sur toute l'épaisseur de la couche limite sera discuté par la suite). De plus, on observe que l'amplitude des spectres de température pour les basses fréquences varie peu avec le taux d'effusion.

On note sur la figure 7, que l'effusion a tendance à diminuer le gradient de vitesse pariétal et donc le coefficient de frottement. En ce qui concerne le gradient de température, on n'observe pas d'évolution monotone. Le gradient de température augmente pour des taux d'effusion inférieur à 1 % puis diminue pour des taux supérieurs à 2 %. Pour les faibles taux d'effusion, la température de paroi diminue fortement tandis que la température de l'écoulement est modifiée sur une très faible épaisseur. Ainsi, cela induit une différence de température importante entre la paroi et l'écoulement en proche paroi et donc un fort gradient thermique. Pour les taux d'effusion supérieurs, l'effusion affecte l'écoulement sur une plus grande épaisseur. Aussi, la température de l'écoulement en proche paroi est proche de celle de l'air effusé et varie peu spatialement. Le gradient de température pariétal a alors tendance à diminuer. Par ailleurs, on remarque que, pour des taux d'effusion supérieurs à 2 %, le gradient de vitesse devient nul et une zone d'écoulement à très faible vitesse apparaît. Les fluctuations de vitesse et de température (cf. figures 12, 14 et 16) ainsi que les corrélations vitesse-vitesse et vitesse-température (cf. figures 8 à 10) sont très faibles dans cette partie de l'écoulement. Il apparaît donc que la couche

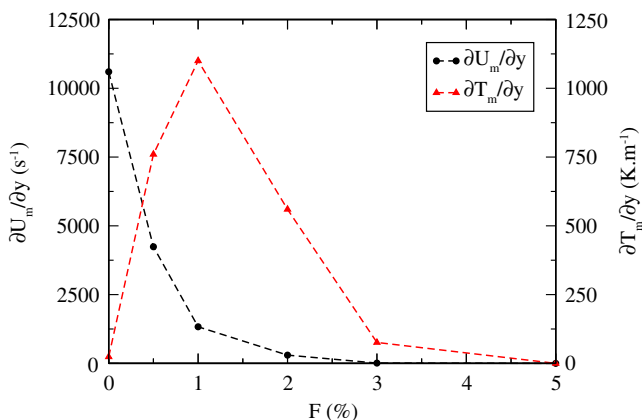


Figure 7. Gradients pariétaux de vitesse et de température en fonction du taux d'effusion  $F$ .

limite est décollée et qu'il existe une zone de fluide « mort » au dessus de la paroi qui provient principalement de l'air effusé à travers la paroi poreuse. D'après les profils de vitesse moyenne, cette zone de faible vitesse semble s'étendre jusqu'à  $y \approx 5$  mm pour  $F = 3\%$  et jusqu'à  $y \approx 15$  mm pour  $F = 5\%$ .

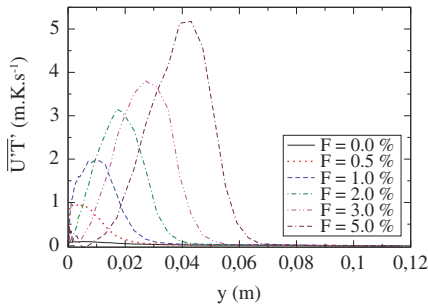


Figure 8. Corrélation  $\overline{U'T'}$ .

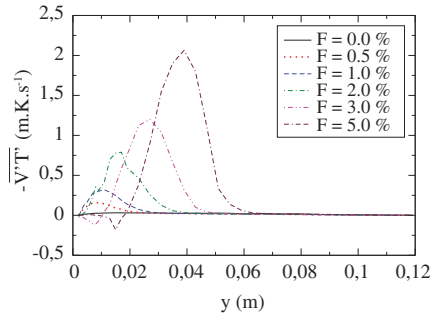


Figure 9. Corrélation  $-\overline{V'T'}$ .

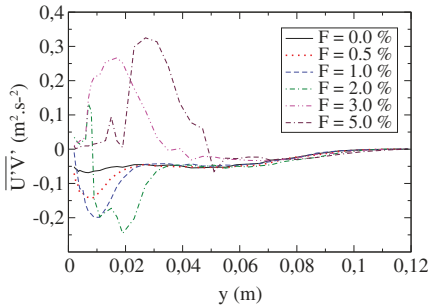


Figure 10. Corrélation  $\overline{U'V'}$ .

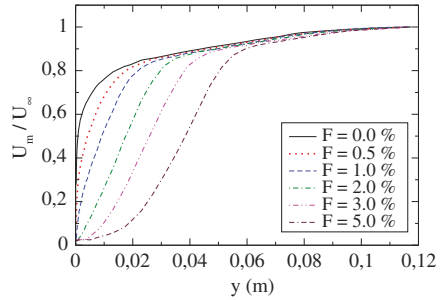


Figure 11. Vitesse moyenne.

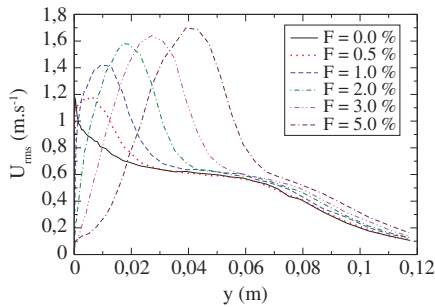


Figure 12. Écart-type de la vitesse.

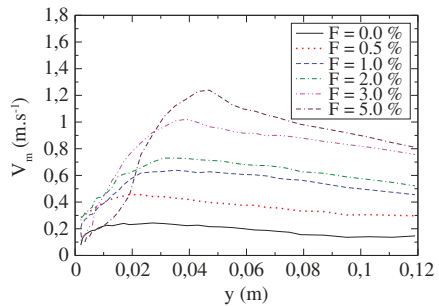


Figure 13. Vitesse verticale moyenne.

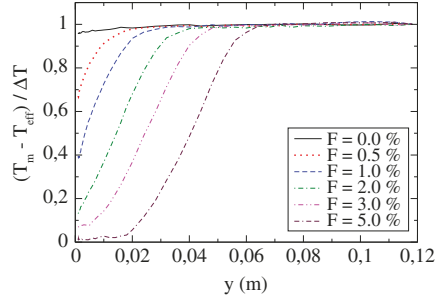
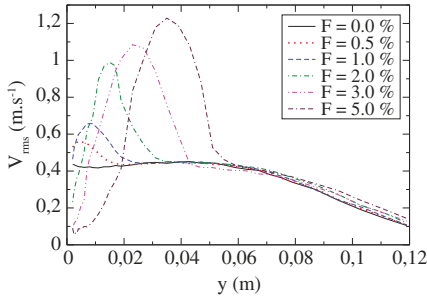


Figure 14. Écart-type de la vitesse verticale.

Figure 15. Température moyenne.

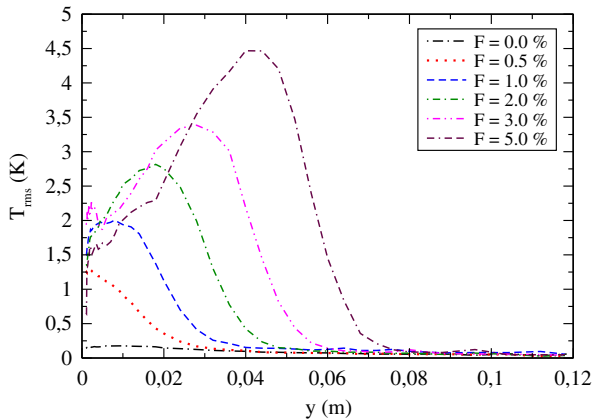


Figure 16. Écart-type de la température.

On observe que l'impact de l'effusion ne se limite pas à la température de paroi et aux caractéristiques de l'écoulement de proche paroi mais que la couche limite est perturbée sur toute son épaisseur. Ainsi, on note l'épaississement des couches limites dynamique et thermique qui est un impact direct de l'air injecté à travers la paroi poreuse. Ceci peut s'observer à la fois sur les profils de vitesse et température moyennes (cf. figures 11 et 15) mais aussi sur les profils des fluctuations (cf. figures 12 et 16). Si l'effusion augmente la taille des couches limites, elle modifie également la forme même des profils de vitesse et de température. Ainsi, pour le profil de vitesse moyenne, on passe d'un profil logarithmique classique de couche limite turbulente pour  $F = 0\%$ , à un profil quasi-linéaire pour  $F = 2\%$ , et à une inversion de concavité pour  $F = 3\%$  et  $5\%$ . De plus, on note que les profils des fluctuations de vitesse en présence d'effusion sont différents du profil sans effusion. Ainsi, en présence d'effusion, il apparaît un pic des fluctuations de vitesse

plus élevé mais surtout beaucoup plus large. L'observation des profils de corrélations doubles vitesse-vitesse et vitesse-température (cf. figures 8 à 10) montre une augmentation importante des niveaux des corrélations. On remarque également que le pic des corrélations s'éloigne de la paroi lorsque le taux d'effusion augmente. D'autre part, on note que l'évolution des profils de température en fonction du taux d'effusion est semblable à celle des profils de vitesse. Il semble donc que la nature même de l'écoulement soit modifiée par la présence de l'écoulement secondaire.

Par conséquent, il apparaît que la nature statistique de l'écoulement est profondément modifiée par la présence de l'effusion d'air froid à travers la paroi poreuse. Cette configuration paraît donc un excellent cas test, relativement exigeant, pour la simulation des grandes échelles puisque l'effusion rend l'écoulement relativement complexe. Les résultats des simulations de cette configuration sont donnés et discutés dans la section suivante.

### 2.2.2 Étude numérique

L'étude de l'impact de l'effusion d'un fluide froid à travers une paroi poreuse par simulation des grandes échelles requiert la simulation d'une couche limite turbulente établie. Pour y parvenir, nous avons utilisé l'entrée turbulente décrite précédemment dans ce mémoire. Dans un premier temps, nous avons effectué des simulations sans prendre en compte d'écart de température entre l'écoulement principal (la couche limite turbulente) et l'écoulement secondaire (l'effusion). Par la suite, nous avons considéré une configuration anisotherme dont les principaux résultats sont rappelés ci-dessous.

Nous avons utilisé pour cette étude le code de calcul Trio U développé au CEA de Grenoble. Un schéma centré d'ordre 2 a été choisi pour le terme de convection de l'équation de la vitesse. Bien qu'un ordre plus élevé soit souhaitable pour obtenir les résultats les plus précis possibles, il apparaît que les simulations effectuées avec ce code de calcul en utilisant ce schéma sur la configuration du canal plan turbulent montrent une très bonne correspondance avec des résultats de simulation numérique directe. Pour l'équation de la température, nous avons utilisé un schéma quick d'ordre 3 avec un limiteur de pente de type FRAM. Nous n'utilisons pas de schéma centré ainsi que le préconisent Châtelain *et al.* (2004). De fait, ces derniers ont montré sur les configurations de la turbulence homogène isotrope et du canal plan turbulent que le schéma centré a tendance à surestimer le niveau des fluctuations de température. D'autre part, l'avancement en temps est calculé au moyen d'un schéma



Runge Kutta d'ordre 3 qui est à la fois stable et peu dissipatif. Le maillage étant finement résolu en proche paroi, il est nécessaire d'utiliser un modèle sous-maille qui ait le bon comportement à l'approche des parois. De plus, le modèle doit s'adapter de lui-même à la condition limite d'effusion. Nous avons alors retenu le modèle de WALE (Nicoud et Ducros, 1999). Pour le modèle de diffusivité sous-maille, nous avons utilisé un nombre de Prandtl sous-maille constant et égal à 0,9.

Pour le maillage du domaine de calcul, nous avons utilisé les données suivantes :  $L_x = 0,37$  m,  $L_y = 0,12$  m,  $L_z = 0,03$  m avec  $186 \times 50 \times 31$  nœuds. Nous avons choisi de prendre une hauteur de domaine suffisamment grande pour éloigner la condition limite sur la surface supérieure du domaine et minimiser son influence. La largeur du domaine a été choisie en suivant les critères établis pour le canal turbulent ( $L_z^+ \simeq 1\,250$ ,  $\Delta_z^+ \simeq 40$ ). La longueur du domaine a été fixée par les données expérimentales. On peut ainsi comparer les profils de vitesse et de température à une distance  $d = 30$  cm du début de la plaque poreuse avec les profils expérimentaux mais aussi observer l'évolution spatiale de la couche limite sur l'ensemble de la plaque poreuse. Étant donnée la condition de non-glissement utilisée pour les parois, un maillage raffiné en proche paroi est nécessaire. Par conséquent, nous avons construit le maillage de sorte que le premier nœud de calcul suivant la direction verticale  $Oy$  corresponde à la coordonnée réduite  $y^+ \simeq 1$ . Pour éviter un maillage trop imposant, nous avons utilisé un maillage progressif en tangente hyperbolique suivant la direction verticale. Pour les directions longitudinale et transverse, le maillage est régulier.

L'observation des profils moyens de la vitesse longitudinale (figure 17) et de la température (figure 19) montrent une très bonne correspondance entre les expériences et les simulations. Les profils des fluctuations de la vitesse longitudinale (figures 18) et des fluctuations de température (figure 20) montrent une sous-estimation d'amplitude pouvant aller jusqu'à 30 % par rapport aux expériences. Cependant, on note que la forme générale des profils, la position du maximum des fluctuations ainsi que son évolution avec le taux d'effusion sont bien évaluées par les simulations. Nous avons également comparé les profils des corrélations vitesse-vitesse et vitesse-température (figure 22 et 21). On observe que, même si l'amplitude est sous-estimée par les simulations pour la corrélation  $\overline{U'T'}$  et surestimée pour les simulations  $-\overline{U'V'}$ , la forme générale des profils et leur évolution avec le taux d'effusion sont semblables pour les simulations numériques et pour l'expérience.

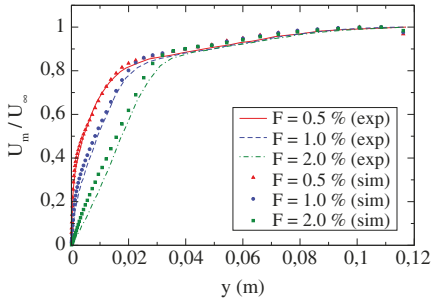


Figure 17. Moyenne de la vitesse longitudinale.

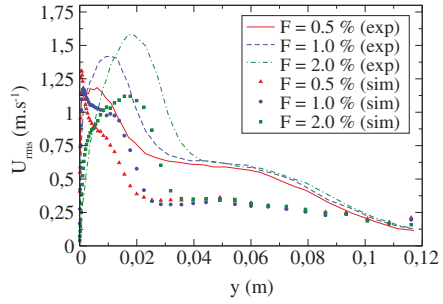


Figure 18. Écart-type de la vitesse longitudinale.

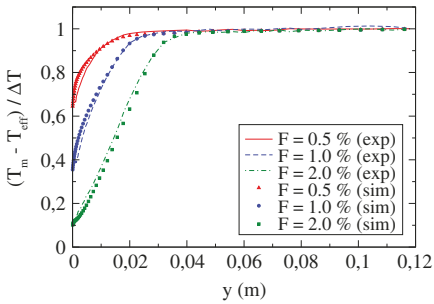


Figure 19. Température moyenne.

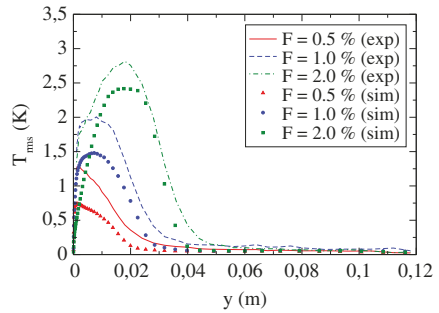


Figure 20. Écart-type de la température.

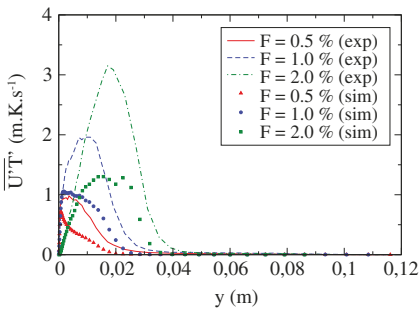


Figure 21. Corrélation  $\overline{U'T'}$ .

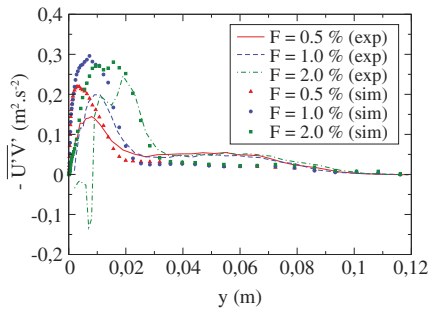


Figure 22. Corrélation  $-\overline{U'V'}$ .

L'observation des champs de vitesse et de température sur l'ensemble du domaine (figures 23 et 24 pour ce qui est des fluctuations de vitesse et de température) montre bien que l'effusion modifie l'écoulement sur toute la hauteur de la couche limite et sur toute la longueur de la plaque. On remarque particulièrement que

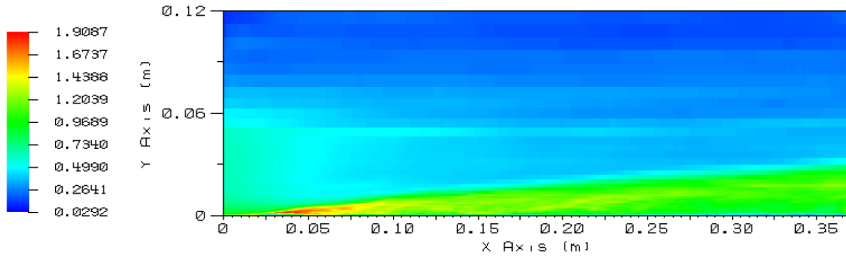


Figure 23. Écart-type de la vitesse longitudinale  $u_{rms}$  ( $F = 2,0 \%$ ).

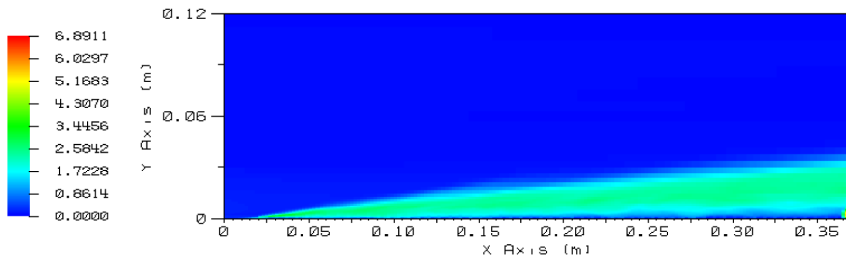


Figure 24. Écart-type de la température  $T_{rms}$  ( $F = 2,0 \%$ ).

l'effusion a un impact sur l'écoulement dès le début de la plaque poreuse. Ainsi, dans l'optique de protéger thermiquement la paroi, il semble qu'une très faible longueur de plaque suffise pour obtenir rapidement une faible température en proche paroi. La comparaison des résultats expérimentaux et numériques montre des écarts plus importants pour ce qui est des grandeurs fluctuantes de la vitesse et de la température que pour les grandeurs moyennes. La nature de la condition aux limites utilisée pour la paroi poreuse (voir Brillant, 2004, pour une description détaillée) peut être une source de ces écarts sur les grandeurs fluctuantes. Il serait intéressant de poursuivre cette étude avec une condition aux limites plus élaborée ou, mieux encore, avec une résolution des champs dynamiques et thermique au sein même de la paroi poreuse.

Afin d'évaluer la sensibilité des structures turbulentes de proche paroi à l'effusion du fluide secondaire à travers la paroi poreuse, nous avons calculé et tracé le critère  $Q$  développé par Dubief et Delcayre (2000). Ce critère permet de visualiser les structures tourbillonnaires présentes dans un écoulement. Le critère  $Q$  est défini selon la formule suivante :

$$Q = \frac{1}{2} (\overline{\Omega_{ij} \Omega_{ij}} - \overline{S_{ij} S_{ij}}) \quad (4)$$

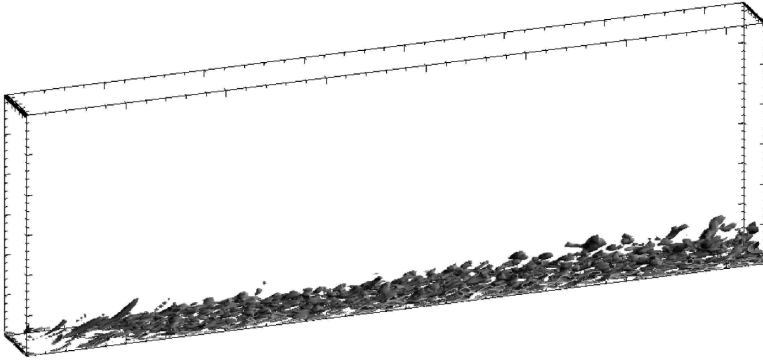


Figure 25. Critère  $Q$ , seuil à 50 000 ( $F = 0,5\%$ ).

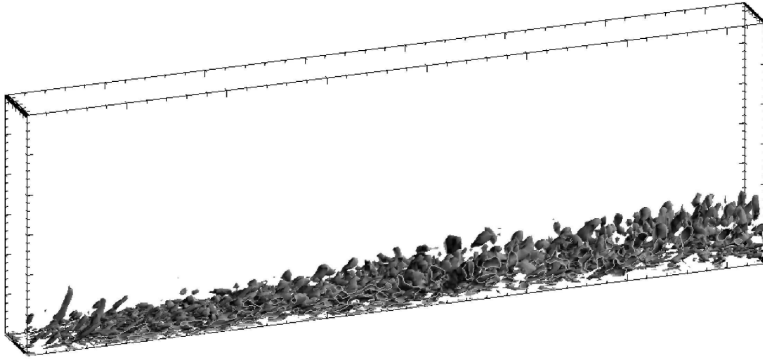


Figure 26. Critère  $Q$ , seuil à 50 000 ( $F = 2,0\%$ ).

avec  $\Omega_{ij}$  le tenseur rotation et  $S_{ij}$  le tenseur des déformations. Les isosurfaces du critère  $Q$  sont représentées sur les figures 25 et 26 pour des taux d'effusion de 0,5% et 2%. On observe que la taille des structures augmente avec le taux d'effusion. D'autre part, on note que la zone de l'écoulement où se situent ces structures augmente également avec l'effusion. Ceci est en accord avec l'évolution des profils des fluctuations de vitesse où le pic des fluctuations s'élargit et s'écarte de la paroi avec le taux d'effusion. Il apparaît donc que l'effusion favorise le développement des structures tourbillonnaires dans la couche limite.

## Conclusion

L'étude expérimentale de l'effusion nous a permis, d'une part, d'étudier l'impact de l'air effusé sur les caractéristiques d'une couche limite turbulente, et, d'autre part,

d'établir des données de référence pour l'étude numérique par simulation des grandes échelles. Nous avons mis en place un système d'anémométrie fils chauds et fils froids en utilisant une loi de King où les coefficients sont fonctions de la température. Nous avons principalement observé, qu'avec l'effusion, la paroi est bien protégée thermiquement, que le maximum des fluctuations de la vitesse et de la température augmente et s'éloigne de la paroi. De plus, nous avons observé une évolution des spectres de vitesse et de température ainsi que des corrélations vitesse-vitesse et vitesse-température avec le taux d'effusion. Enfin, il apparaît que, pour les taux d'effusion supérieurs à 3 %, la couche limite est décollée et que la statistique de l'écoulement est largement modifiée.

La simulation des grandes échelles de l'effusion anisotherme a montré une très bonne correspondance pour les taux d'effusion inférieurs à 2 %. La comparaison des résultats numériques et expérimentaux (profils moyens, fluctuants et profils des corrélations vitesse-vitesse et vitesse-température) nous a permis de valider les simulations numériques et principalement la condition aux limites d'entrée de fluide. Nous avons également observé que l'effusion favorise le développement des structures tourbillonnaires dans la couche limite.

### ***2.3 Étude de la fatigue thermique dans un Té de mélange***

Les méthodes de simulations d'écoulements turbulents anisothermes présentés au paragraphe 2.1 ont été utilisées dans la configuration de l'effusion d'un fluide froid à travers une paroi poreuse au paragraphe 2.2. Voyons maintenant une deuxième configuration d'application qui consiste en un mélange de deux écoulements turbulents à des températures distinctes dans une jonction en T. La simulation des grandes échelles de cette configuration de mélange apparaît comme un excellent outil pour évaluer les fluctuations de températures dont les amplitudes et les fréquences peuvent être dommageables pour les conduites.

Un élément important de la sûreté des réacteurs nucléaires consiste en la prévention de la fatigue thermique dans les conditions normales de fonctionnement mais aussi dans les cas en dehors du fonctionnement normal, pour des situations occasionnelles ou incidentelles. Par exemple, la convergence de deux flux de sodium de températures différentes est susceptible de provoquer un phénomène de fatigue thermique. Celui-ci provient des fluctuations de température au niveau de la structure du Té d'une fréquence de l'ordre du hertz. Les dommages encourus dépendent de la différence de température entre les deux écoulements, de la température propre

des écoulements, de leurs débits respectifs, du temps de fonctionnement dans l'état donné, de la géométrie et de la qualité de la structure du Té. Ces dommages sont croissants lorsque la différence de température et le temps de fonctionnement augmentent.

Le mélange des deux débits s'effectue essentiellement par dissipation turbulente à l'aval du Té. Cette turbulence engendre des fluctuations qui peuvent être transmises à la paroi de la tuyauterie et sont susceptibles d'engendrer fatigue et/ou faïençage thermique à l'aval du piquage. L'évaluation du risque de fatigue thermique des conduites nécessite donc des simulations fines d'écoulements turbulents pour estimer correctement l'amplitude des fluctuations de température ainsi que leur répartition spectrale. Nous avons pu observer que la simulation des grandes échelles est un outil de choix pour évaluer ces fluctuations au travers de l'étude de l'impact de l'effusion sur une couche limite turbulente. Nous avons donc choisi d'utiliser la simulation des grandes échelles pour évaluer le risque de faïençage thermique sur une configuration de Té de mélange correspondant à un cas opérationnel rencontré dans la centrale Phénix.

Dans le cadre de la surveillance des tuyauteries de la centrale Phénix, des fissurations ont été observées sur une soudure située immédiatement à l'aval d'un piquage sur un circuit secondaire. Ce piquage concerne le retour de la détection hydrogène vers la tuyauterie secondaire principale et assure la convergence de deux débits de sodium avec un écart de température permanent de 90 °C environ. On peut noter la présence d'un coude à l'amont du piquage et la présence de deux soudures circonférentielles à 0,118 m et 1,940 m à l'aval du piquage. Deux fissures ont été observées sur la première soudure. Elles sont situées symétriquement par rapport à la position du piquage. L'analyse de ces fissures a montré des caractéristiques d'un phénomène de fatigue à grand nombre de cycles d'origine thermique. En outre, la tuyauterie principale présentait deux taches visuelles partant du piquage et dont l'étendue correspond à la zone des fissurations au niveau de la soudure. Les limites de ces taches semblent correspondre à la zone de mélange entre les deux débits de sodium.

La configuration géométrique est représentée à la figure 27. Une tuyauterie de faible diamètre ( $D_2 = 68$  mm) déverse du sodium à 703 K avec un débit de 7 kg/s dans une tuyauterie principale du circuit secondaire ( $D_1 = 494$  mm) véhiculant du sodium à 613 K avec un débit de 800 kg/s. La vitesse débitante est d'environ 2,3 m/s dans la branche chaude et d'environ 4,8 m/s dans la branche froide, ce qui correspond à des nombres de Reynolds de l'ordre de  $5 \times 10^5$  et  $6 \times 10^6$  respectivement. La conduite principale présente un coude à 90° en amont du Té. Les conduites sont en acier AISI 304 et

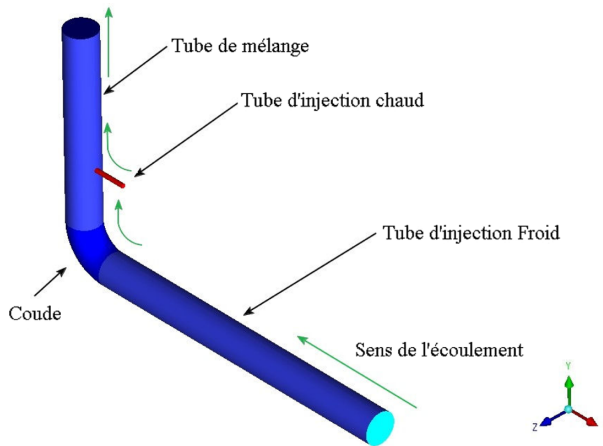


Figure 27. Configuration du Té de mélange de la centrale Phénix.

ont une épaisseur de 7 mm pour la conduite principale et 2,5 mm pour la conduite du piquage. Cette configuration a donné lieu à un benchmark international dont le rapport final a été publié par l'AIEA en 2002 (Gelineau, 2002). Cette étude comparative a montré qu'une bonne estimation des fluctuations de température à l'aval du Té de mélange demande la définition de maillages conséquents, l'utilisation d'une entrée turbulente et la résolution de la conduction thermique dans les parois des conduites. Dans cette étude, nous avons utilisé le code de calcul commercial Fluent et nous avons travaillé en deux étapes. Dans un premier temps, nous avons effectué des simulations RANS avec des maillages de plus en plus précis et avec ou sans la résolution du champ de température dans les parois des conduites. Nous avons ensuite effectué des calculs par simulations des grandes échelles en utilisant une entrée turbulente de type méthode des vortex. Nous avons pu comparer les résultats des simulations RANS et SGE entre eux ainsi qu'avec les résultats du benchmark.

### 2.3.1 Simulations RANS

Pour les simulations RANS, nous avons considéré le modèle de turbulence RSM (*Reynolds Stress Model*) bien adapté pour les écoulements anisotropes et trois maillages différents en augmentant au fur et à mesure le nombre de mailles et la précision des calculs :

- **Cas RSM-1** : utilisation d'une loi de paroi logarithmique → maillage de 450 000 mailles.

- **Cas RSM-2** : condition de non-glissement à la paroi → maillage de 3 500 000 mailles.
- **Cas RSM-3** : condition de non-glissement à la paroi et résolution du champ de température dans la paroi de la conduite principale à l'aval du piquage chaud → maillage de 4 800 000 mailles.

Dans le cas RSM-3, le maillage de la paroi solide de la conduite nous a conduit, pour éviter les discontinuités à l'interface solide/liquide, à augmenter la densité de « mailles fluides » en proche paroi. Ainsi, la résolution de la couche limite est meilleure dans le cas RSM-3 que dans le cas RSM-2. On peut noter que les maillages les plus précis du benchmark (Gelineau, 2002) ne dépassaient pas 200 000 mailles et que les moyens informatiques actuels nous ont permis d'être plus précis pour nos simulations. La condition d'entrée de fluide peut être imposée de différentes manières. Une première solution consiste à mailler un long tube devant les entrées du Té de mélange. Cette méthode permet d'obtenir toutes les caractéristiques d'un écoulement turbulent établi en conduite mais elle est relativement coûteuse en terme de nombre mailles et de temps de calcul. L'utilisation d'une entrée avec une vitesse uniforme est elle nettement moins onéreuse mais elle ne permet pas de calculer correctement le champ de vitesse dans le coude lorsque nous comparons les résultats de ces simulations avec des données de références (El-Gammal *et al.*, 2010). Une troisième solution, que nous avons retenue, utilise les données d'une pré-simulation pour définir les conditions hydrauliques à l'entrée du tube. Cette méthode permet d'obtenir une condition d'entrée similaire à celle de la première solution sans avoir l'inconvénient du coût de calcul.

Dans une première approche, le mélange dans une jonction peut être caractérisé au moyen du rapport des moments  $M$  défini selon la relation (5). Suivant la valeur de ce paramètre  $M$ , trois ou quatre types de jets sont identifiés suivant les auteurs (Igarashi *et al.*, 2003 ; Hosseini *et al.*, 2008 ; Walker *et al.*, 2009) selon que le jet va : *i*) impacter la paroi opposée à l'entrée de la conduite secondaire, *ii*) être dirigé vers le centre de la conduite principale, *iii*) être dirigé vers le centre de la conduite puis être rabattu sur la paroi contiguë à l'entrée secondaire ou *iv*) rester le long de la paroi contiguë au piquage. Les plages de valeurs de  $M$  correspondants à ces catégories dépend de la présence ou non d'un coude en amont de la jonction. En effet, du fait de la présence d'un coude, l'écoulement principal est accéléré et rabattu sur la paroi extrados (voir figure 28). En outre, on observe à la sortie du coude une zone de cisaillement ainsi que la formation de boucles de recirculation (voir figure 29). On comprend donc aisément l'importance de la présence d'un coude en amont d'un Té de jonction sur le



comportement du mélange des deux conduites. Dans notre cas, la valeur du paramètre  $M$  est d'environ 42, ce qui correspond à un jet de type ré-attaché (cas *iii*) selon Hosseini *et al.*, (2008). C'est effectivement ce que nous observons au travers de nos simulations (voir figures 28 et 31).

$$M = \frac{\rho_1 U_1^2 D_1 D_2}{\rho_2 U_2^2 \pi (D_2/2)^2} \quad (5)$$

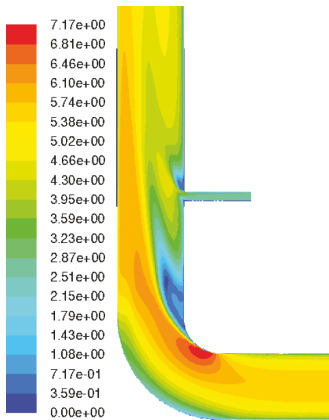


Figure 28. Champ de vitesse calculé sur le cas RSM-3.

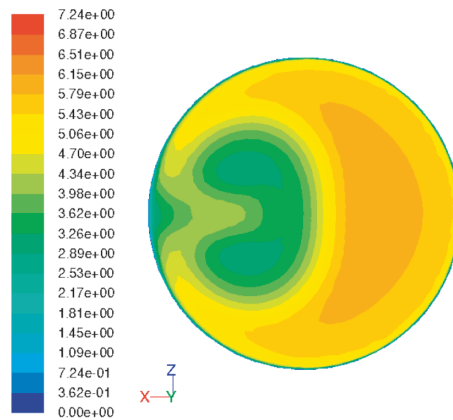


Figure 29. Vitesse dans une coupe de la tuyauterie principale à l'aval du coude.

Nous avons comparé à la figure 30, la température calculée le long de la conduite principale en aval du piquage chaud aux mesures expérimentales. L'utilisation d'un maillage grossier et d'une loi de paroi (cas RSM-1) donne globalement la bonne allure de la température moyenne. Néanmoins, on remarque une surestimation de  $T_m$  entre  $y/D_2 = 1$  et  $y/D_2 = 3$  pouvant atteindre 20 K. L'estimation de la température moyenne dans cette zone est nettement améliorée avec un maillage raffiné et une condition aux limites de non glissement (cas RSM-2 et RSM-3). Cependant, la tendance s'inverse pour les distances supérieures ( $y/D_2 > 2$ ). On note que le maillage du cas RSM-3, plus fin que celui du cas RSM-2, permet d'obtenir une courbe plus lisse de la température moyenne ; ce qui montre les limites du maillage du cas RSM-2. Nos simulations sont en meilleur accord avec le profil de température expérimental que l'étude de Lee *et al.* (2002) utilisant la méthode RANS avec un modèle k-RNG (voir figure 30). Le profil calculé par Stainsby et Martin (2002) avec un modèle k- $\epsilon$ - $\theta^2$  est plus proche des données expérimentales. Cependant, dans leur simulation, Stainsby et Martin (2002) estiment que le jet chaud est dirigé vers le centre de la conduite

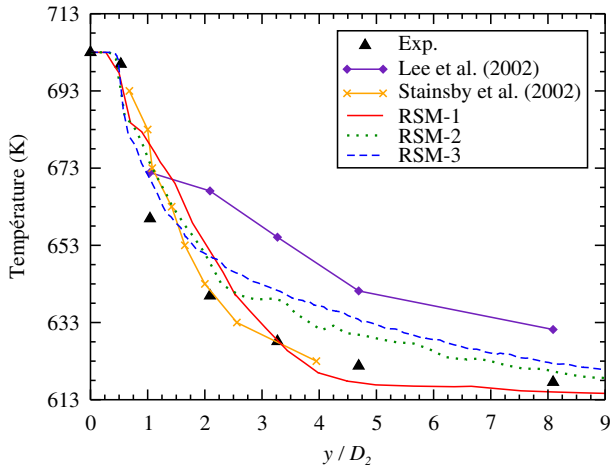


Figure 30. Comparaison avec l'expérience des températures moyennes calculées avec le modèle RSM sur la paroi en aval du piquage chaud.

principale, contrairement à la plupart des autres calculs du benchmark, ainsi que nos simulations, qui prédisent un jet rabattu sur la conduite principale derrière le piquage chaud.

Le champ de température au centre de la conduite est tracé sur la figure 31. On note que le mélange des deux écoulements s'effectue sur une distance d'environ dix fois le diamètre du piquage. Nous avons tracé sur les figures 32 et 33 un zoom du champ de température en aval de la conduite chaude avec et sans maillage de la paroi de la conduite. On n'observe pas de modifications des propriétés de l'écoulement au centre de la conduite. En revanche, on note que l'estimation du champ de température en proche paroi juste derrière le piquage est sensiblement modifié. Cette observation confirme bien tout l'intérêt de résoudre le champ de température dans l'épaisseur de la conduite principale.

### 2.3.2 Simulations des grandes échelles

Pour l'étude par simulation des grandes échelles, nous avons utilisé le maillage défini précédemment dans le cas RSM-3 avec 4,8 M de mailles, pour lequel nous obtenons des valeurs de  $y^+$  à la paroi des conduites de l'ordre de 2. De même que pour le cas RSM-3, nous calculons le champ de température dans l'épaisseur de la conduite principale à l'aval du piquage chaud. Le modèle sous-maille est le modèle de WALE.

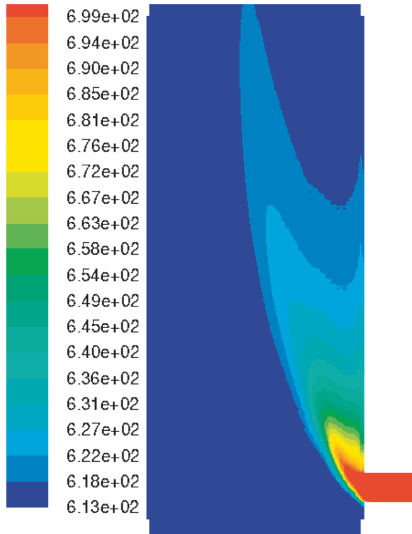


Figure 31. Isothermes de la température moyenne (K).

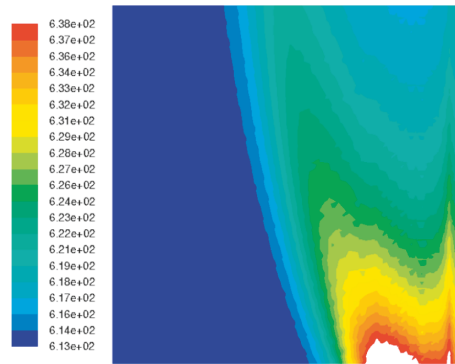


Figure 32. Température moyenne calculée avec la résolution de la conduction de température dans les parois.

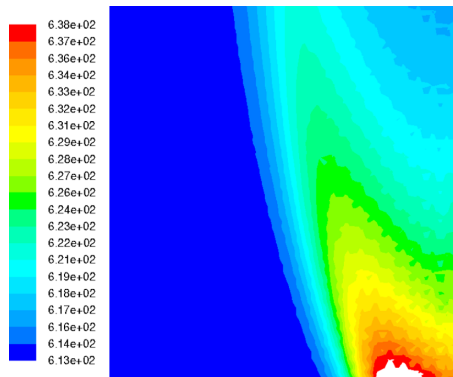


Figure 33. Température moyenne sans résolution de la conduction de température dans les parois.

Pour la résolution de l'équation de température, nous avons utilisé un modèle à nombre de Prandtl turbulent constant. Nous avons utilisé en entrée de domaine une condition aux limites d'entrée turbulente au moyen de la méthode des vortex implémentée dans Fluent (Mathey *et al.*, 2006).

De même que pour les calculs RANS, nous observons avec la simulation des grandes échelles un jet chaud qui est dirigé vers le centre de la conduite puis rabattu sur la paroi contiguë à l'entrée secondaire. Du fait que le jet est très rapidement redirigé vers la paroi de la conduite principale et de la très forte conductivité thermique du sodium, on n'observe pas de zone froide à l'aval de la branche secondaire. Un champ de vitesse instantané est tracé à la figure 34. On remarque, au travers de ce champ instationnaire, la présence d'instabilités dans la conduite principale en amont du piquage chaud. Ces instabilités sont créées suite au passage de l'écoulement dans le coude et à la formation d'une couche de cisaillement.

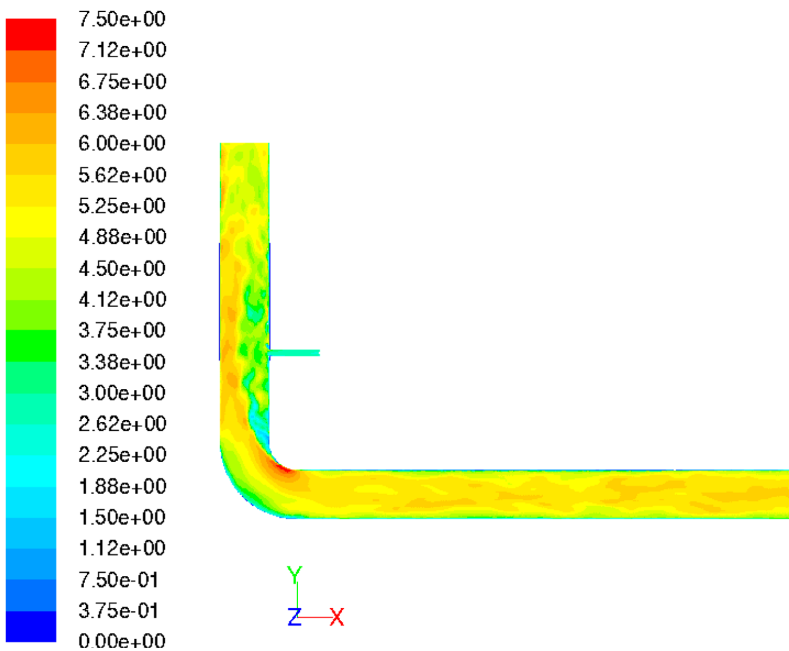


Figure 34. Champ de vitesse instantané.

Les résultats de nos calculs par simulation des grandes échelles ont été comparés à ceux obtenus par méthode RANS (cas RSM-3) ainsi qu'aux précédentes études du benchmark AIEA (Gelineau, 2002). Gelineau *et al.* (2002) et Muramatsu (2002) ont effectué des calculs de résolution de « pseudo » simulation numérique directe (*i.e.* résolution directe des équations de Navier Stokes avec une résolution « grossière » et sans appliquer un modèle sous maille). On observe à la figure 35 que l'on améliore sensiblement l'estimation de la température moyenne en paroi à l'aval du piquage chaud avec notre calcul SGE par rapport au calcul RSM-3. De plus, les résultats de notre calcul SGE sont en meilleur accord avec les données

expérimentales que les précédentes études de Gelineau *et al.* (2002) et Muramatsu (2002). Nous nous sommes ensuite intéressés à l'écart de température crête-à-crête en peau externe de la conduite principale. Notre calcul RSM-3 ainsi que celui de Muramatsu (2002) ne permettent pas de calculer un niveau de fluctuations de température notable. En revanche, notre calcul SGE estime bien cet écart de température crête-à-crête avec une  $\Delta T$  de l'ordre de 6 à 7 K entre  $1D_2$  et  $3D_2$  après le piquage chaud.

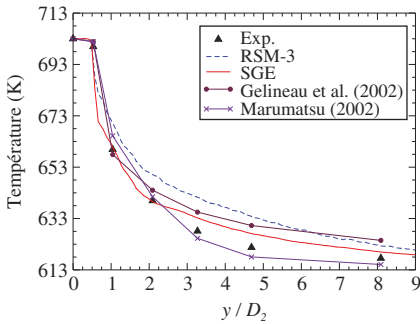


Figure 35. Températures moyennes sur la paroi en aval du piquage chaud.

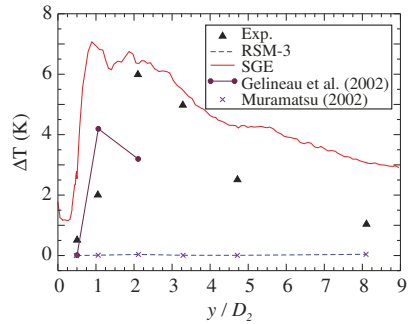


Figure 36. Écart de température crête-à-crête en surface extérieure de la conduite principale.

Les profils de la température à l'interface fluide/solide sont tracés à la figure 37 pour le cas RSM-3 et pour la simulation des grandes échelles avec à la fois un profil moyen et un profil instantané. On note que le gradient de la température moyenne est largement inférieur dans le cas de la simulation RANS que dans la simulation des grandes échelles (respectivement  $\sim 2$  K et  $\sim 10$  K sur les 7 mm d'épaisseur de la conduite). On observe en outre que le gradient instantané peut prendre de très fortes valeurs de l'ordre de 20 K sur l'épaisseur de la conduite soit un gradient moyen de l'ordre de 3000 K/m avec un gradient local maximum à l'interface fluide/solide de l'ordre de  $2 \times 10^4$  K/m. L'analyse fréquentielle de la température au niveau de la soudure a mis en évidence trois fréquences dans la gamme  $[1 ; 15]$  Hz :  $\sim 5$  Hz,  $\sim 8$  Hz et  $\sim 12$  Hz. Les variations de températures ainsi analysées (par analyse fréquentielle) interviennent dans une zone où la fréquence aura un impact important pour l'acier AISI 304. Il serait intéressant de pouvoir capter les fréquences inférieures au hertz mais cela nécessitera des temps de calcul très importants ainsi qu'une stabilité du code sur un très grand nombre d'itérations.

Le champ de température est représenté à la figure 38(a) pour la composante moyenne et à la figure 38(b) pour la composante fluctuante. On observe un

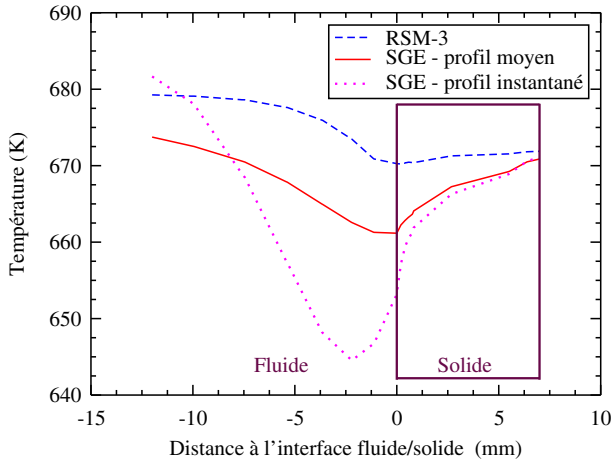


Figure 37. Profils de température à l'interface fluide/solide derrière le piquage chaud.

comportement différent pour ces deux composantes de la température. En effet, la température moyenne diminue continûment lorsque l'on s'éloigne du piquage chaud. En revanche, le champ des fluctuations de température présente deux zones de forte intensité de part et d'autre du piquage. On peut noter que le secteur directement derrière le piquage ne présente pas un niveau de fluctuation de température important. Ces constatations sont tout à fait cohérentes avec les observations expérimentales. En effet, les deux zones à niveaux élevés des fluctuations de température symétriquement par rapport à l'axe du piquage chaud correspondent bien aux observations expérimentales de fissurations au niveau de la soudure de part et d'autre de l'axe de la tuyauterie chaude. En outre, deux « taches » ont été observées après la découpe de la tuyauterie de Phénix. La première tache blanche entourant le piquage chaud

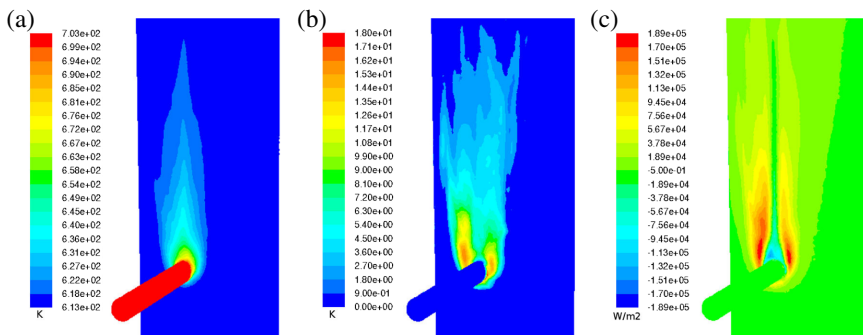


Figure 38. Champs de (a) la température moyenne, (b) des fluctuations de température et (c) du flux de chaleur à l'interface fluide/solide à l'aval du piquage chaud.

s'accorde bien avec la zone de température moyenne élevée de la figure 38(a). La seconde tache noire entourant la première tache blanche est une zone d'oxydation provoquée par des fluctuations de température ; ce qui est cohérent avec le champ de la température fluctuante à la figure 38(b). Le champ du flux de chaleur moyen à l'interface fluide/paroi est représenté à la figure 38(c). On note que le flux de chaleur juste à l'aval du piquage va du fluide vers la paroi (zone bleue sur la figure 38(c)) avec des valeurs importantes de l'ordre de  $19\,000\text{ W/m}^2$  ; ce qui est cohérent avec la tache de sodium chaud décrite ci-dessus. En outre, des flux de chaleurs circonférentiels sont présents dans la paroi et conduisent à des flux de chaleur depuis la paroi vers le fluide de chaque coté de la ligne méridienne (zones rouges sur la figure 38(c)) dans les zones de fortes fluctuations de température ; ce qui contribue aux contraintes thermiques que subit la conduite. Ces observations mettent en évidence tout l'intérêt des calculs couplés du champ de température instationnaire dans l'écoulement et dans la paroi de la conduite.

## Conclusion

Nous avons effectué des simulations numériques du mélange dans un Té de jonction de deux écoulements turbulents avec des températures différentes. La configuration étudiée correspond à un cas réel de la centrale de Phénix et nous a permis d'évaluer nos capacités de simulation sur un cas industriel de fatigue thermique. L'utilisation de la méthode RANS et d'un modèle RSM nous a permis de modéliser le bon comportement du jet chaud et une bonne estimation de la température moyenne sur la paroi de la conduite principale en aval du piquage avec l'utilisation d'un maillage de 4,8 M de mailles, une condition aux limites de non-glissement aux parois et la résolution de la conduction de la température dans la paroi de la conduite principale. L'utilisation de la simulation des grandes échelles nous a permis d'améliorer l'accord avec les données expérimentales. L'estimation des fluctuations de températures en peau externe de la conduite principale est conforme aux mesures expérimentales. En outre, nous retrouvons au travers des champs de la température moyenne et fluctuante la position des fissures sur la soudure de la conduite principale et l'étendue des deux taches observées après la découpe du Té de mélange de la centrale Phénix. Pour continuer cette étude jusqu'à l'analyse de la perte d'intégrité de la tuyauterie, il est envisagé de coupler à l'avenir la résolution thermohydraulique de l'écoulement et thermique de la paroi à une résolution mécanique d'amorçage et de propagation des fissures.

# Bibliographie

- K. Akselvoll et P. Moin : Large-eddy simulation of turbulent confined coannular jets. *J. Fluid Mech.*, 315:387–411, 1996.
- L. Artal et F. Nicoud : Direct numerical simulation of reacting turbulent multi-species channel flow. In *6th Direct and Large-Eddy Simulation Conference, ERCOFTAC Workshop*, pages 3–16, Poitiers, France, 2005.
- F. Bataille : Dynamique et thermique des fluides en présence d'effusion. *Habilitation à diriger des recherches, CETHIL-INSA de Lyon*, 2000.
- F. Bataille, G. Brillant et Y. Hussaini : *Mathematical and Physical Theory of Turbulence*, volume 250 de *Lectures notes in Pure and Applied Mathematics*, chapter Generalization of the eddy viscosity model - Application to a temperature spectrum, pages 125–130. Chapman and Hall/CRC, 2006.
- F. Bataille, M. Michard et G. Brillant : Échanges thermiques au voisinage d'une paroi. *In Mécanique des fluides hautes température*, Aix-en-provence, 2002.
- J. Bellettre : Transfert de masse et de chaleur dans la couche limite pariétale et à l'intérieur d'une paroi poreuse plane soumise à de l'effusion ou à de la transpiration. *Thèse de Doctorat, INSA de Lyon*, 1998.
- J. Bellettre, F. Bataille, J.-C. Rodet et A. Lallemand : Thermal behaviour of porous plates subjected to air blowing. *AIAA Jo. Thermophys. Heat Trans.*, 14(4):523–532, 2000.
- G. Brillant : *Simulations des grandes échelles thermiques et expériences dans le cadre d'effusion anisotherme*. Thèse de Doctorat, INSA de Lyon, 2004.
- W. Cabot et P. Moin : Approximate wall boundary conditions in the Large-Eddy Simulation of high Reynolds number flow. *Flow Turb. Comb.*, 63 :269–291, 1999.
- C. Carcasi et B. Facchini : A numerical procedure to design internal cooling of gas turbine stator blades. *Rev. Gén. Therm.*, 35:257–268, 1996.
- A. Châtelain, F. Ducros et O. Métais : LES of conjugate heat-transfer using thermal wall functions, In *B. G. R. Friedrich et O. M. eds., réds., Proceedings of the D-LES 5 ERCOFTAC Workshop*, pages 307–314, Munchen, Germany, 2003.
- A. Châtelain, F. Ducros et O. Métais : LES of turbulent heat transfer : proper convection numerical schemes for temperature transport. *Int. J. Num. Meth. Fluids*, 44(9):1017–1044, 2004.



- A. W. Cook et J. J. Riley : Direct Numerical Simulation of a Turbulent Reactive Plume on a Parallel Computer. *J. Comp. Phys.*, 129(2):263–283, 1996.
- P. Druault, J. Delville, P. Sagaut et J. P. Bonnet : *Influence of spatio-temporal inflow organization on LES of a spatially developing plane mixing layer*, pages 207–216. Elsevier Science Ltd., 1999.
- Y. Dubief et F. Delcayre : On coherent-vortex identification in turbulence. *J. Turb.*, 1:1–21, 2000.
- F. Ducros, P. Comte et M. Lesieur : Large-eddy simulation of transition to turbulence in a boundary layer developing spatially over a flat plate. *J. Fluid Mech.*, 326:1–36, 1996.
- M. El-Gammal, H. Mazhar, J. S. Cotton, C. Shefski, J. Pietralik et C. Y. Ching : The hydrodynamic effects of single-phase flow on flow accelerated corrosion in a 90-degree elbow. *Nucl. Eng. Design*, 240(6):1589–1598, 2010.
- B. Facchini, G. Ferrara et L. Innocenti : Blade cooling improvement for heavy duty gas turbine : the air coolant temperature reduction and the introduction of stream and mixed steam/air cooling. *Int. J. Therm. Sc.*, 1:74–84, 2000.
- O. Gelineau : Validation of fast reactor thermomechanical and thermohydraulic codes. Final report of a co-ordinated research project 1996–1999. Rapport technique tecdoc1318, IAEA, 2002.
- O. Gelineau, M. Sperandio, J. P. Simoneau, J. M. Hamy et P. H. L. Roubin : *Validation of fast reactor thermomechanical and thermohydraulic codes.*, volume tecdoc1318, chapter Thermomechanical and thermohydraulic analyses of a T junction using experimental data, pages 31–62. IAEA, 2002.
- V. Gravemeier et W. A. Wall : An algebraic variational multiscale multigrid method for large-eddy simulation of turbulent variable-density flow at low Mach number. *J. Comp. Phys.*, 229(17):6047–6070, 2010.
- M. J. Green et W. C. Davy : Galileo probe forebody thermal protection. *AIAA Paper*, 81:1073–1079, 1981.
- S. M. Hosseini, K. Yuki et H. Hashizume : Classification of turbulent jets in a T-junction area with a 90-deg bend upstream. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 51(9–10):2444–2454, 2008.
- M. Igarashi, N. Tanaka, M. Kimura et H. Kamide : Study on fluid temperature fluctuation and transfer to wall in a mixing tee. *In 11<sup>th</sup> ICONE*, page 36299, Tokyo, Japan, April 2003.

- N. Jarrin, S. Benhamadouche, Y. Addad et D. Laurence : Synthetic turbulent inflow conditions for large eddy simulation. *In : 4th International Turbulence, Heat and Mass Transfer Conference, Antalya, Turkey, 2003.*
- N. Jarrin, S. Benhamadouche, D. Laurence et R. Prosser : A synthetic-eddy-method for generating inflow conditions for large-eddy simulations. *Int. J. Heat Fluid Flow*, 27(4):585–593, 2006.
- B. A. Kader : Temperature and concentration profiles in fully turbulent boundary layers. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 24(9):1541–1544, 1981.
- A. A. Khalatov : Heat transfer on non-porous and porous smooth end walls of a linear guide vane model. *In Heat Transfer 1998, Proceedings of 11<sup>th</sup> IHTC, vol. 6*, pages 511–516, Kyongju, Korea, August 23–28 1998.
- M. Klein, A. Sadiki et J. Janicka : A digital filter based generation of inflow data for spatially developing direct numerical or large eddy simulations. *J. Comp. Phys.*, 186(2):652–665, 2003.
- H. Kong, H. Choi et J. S. Lee : Direct numerical simulation of turbulent thermal boundary layers. *Phys. Fluids*, 12(10):2555–2568, 2000.
- H.-Y. Lee, J.-B. Kim et B. Yoo : *Validation of fast reactor thermomechanical and thermohydraulic codes.*, volume tecdoc1318, chapter Tee-junction of LMFR secondary circuit involving thermal, thermomechanical and fracture mechanics assessment on a striping phenomenon, pages 153–167. IAEA, 2002.
- M. Lesieur : *Turbulence in fluids*. Springer-Verlag New York Inc, 2007.
- P. M. Ligrani, R. Gong et J. M. Cuthrell : Bulk flow pulsations and film cooling : flow structure just downstream of the holes. *Journal of Turbomachinery*, 119:568–573, 1997.
- T. Lu, P. X. Jiang, Z. J. Guo, Y. W. Zhang et H. Li : Large-eddy simulations (les) of temperature fluctuations in a mixing tee with/without a porous medium. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 53(21–22):4458–4466, 2010.
- T. S. Lund, X. Wu et K. D. Squires : Generation of turbulent inflow data for spatially-developing boundary layer simulations. *J. Comp. Phys.*, 140(2):233–258, 1998.
- M. Marchand, J. G. Galier, P. Reulet et P. Millan : Etude de l'impact de jets circulaires turbulents et chauds sur une surfaces concave. *In Congrès Français de Thermique*, Lyon, 2000.
- T. Maruyama, W. Rodi, Y. Maruyama et H. Hiraoka : Large eddy simulation of the turbulent boundary layer behind roughness elements using an artificially generated inflow. *J. Wind Eng. Ind. Aerodyn.*, 83(1–3):381–392, 1999.

- F. Mathey, D. Cokljat, J. P. Bertoglio, E. Sergent : Assessment of the vortex method for large eddy simulation inlet conditions. *Progress in Computational Fluid Dynamics*, 6(1–3):58–67, 2006.
- C. P. Mellen, J. Fröhlich et W. Rodi : Lessons from lesfoil project on large-eddy simulation of flow around an airfoil. *AIAA J.*, 41(4):573–581, 2003.
- R. J. Moffat et W. M. Kays : The turbulent boundary layer on a porous plate : experimental heat transfer with uniform blowing and suction. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 11:1547–1566, 1968.
- R. J. Moffat et W. M. Kays : A review of turbulent-boundary-layer heat transfer research at Stanford, 1958-1983. *Advances in Heat Transfer*, 16 :241–365, 1984.
- P. Moin : Advances in large eddy simulation methodology for complex flows. *Int. J. Heat Fluid Flow*, 23:710–720, 2002.
- T. Muramatsu : *Validation of fast reactor thermomechanical and thermohydraulic codes.*, volume tecdoc1318, chapter Thermohydraulics computer code system and computational results on thermal striping phenomena at a Tee junction of LMFR secondary circuit with the system, pages 117–144. IAEA, 2002.
- F. Nicoud et P. Bradshaw : A velocity transformation for heat and mass transfer. *Phys. Fluids*, 12(1):237–238, 2000.
- F. Nicoud et F. Ducros : Subgrid-scale stress modelling based on the square of the velocity gradient tensor. *Flow Turb. Comb.*, 62:183–200, 1999.
- N. V. Nikitin, F. Nicoud, B. Wasistho, K. D. Squires et P. R. Spalart : An approach to wall modeling in large-eddy simulations. *Phys. Fluids*, 12(7):1629–1632, 2000.
- M. Pamiès, P.-E. Weiss, É. Garnier, S. Deck et P. Sagaut : Generation of synthetic turbulent inflow data for large eddy simulation of spatially evolving wall-bounded flows. *Phys. Fluids*, 21(4):045103, 2009.
- L. Perret, J. Delville, R. Manceau et J. P. Bonnet : Generation of turbulent inflow conditions for large eddy simulation from stereoscopic PIV measurements, *Int. J. Heat Fluid Flow*, 27(4):576–584, 2006.
- A. Posa, A. Lippolis, R. Verzicco, et E. Balaras : Large-eddy simulations in mixed-flow pumps using an immersed-boundary method, *Comb. Fluids*, 47(1):33–43, 2011.
- M. W. Rubesin : An analytical estimation of the effect of transpiration cooling on the heat transfer and skin friction characteristics of a compressible turbulent boundary layer. Rapport technique 3341, NACA, 1954, 57 p.

H. Schneider, Von D. Terzi, H.-J. Bauer, et W. Rodi : Reliable and accurate prediction of three-dimensional separation in asymmetric diffusers using large-eddy simulation, *J. Fluids Eng. (ASME)*, 132(3):0311011–0311017, 2010.

E. Sergent : *Vers une méthodologie de couplage entre la simulation des grandes échelles et les modèles statistiques*. Thèse de doctorat, Ecole centrale de Lyon, 2002.

T. R. Shembharkar et B. R. Pai : Prediction of film cooling with a liquid coolant. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 29(6):899–908, 1986.

A. P. Silva-Freire, D. O. A. Cruz et C. C. Pellegrini : Velocity and temperature distributions in compressible turbulent boundary layers with heat and mass transfer. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 38(13):2507–2515, 1995.

R. L. Simpson : Characteristics of turbulent boundary layers at low reynolds numbers with and without transpiration. *J. Fluid Mech.*, 42:769–802, 1970.

J. Smagorinsky : General circulation experiments with the primitive equations. *Mon. Weather. Rev.*, 91(3):99–164, 1963.

P. R. Spalart : Direct simulation of a turbulent boundary layer up to  $Re_\theta$  equals 1410. *J. Fluid Mech.*, 187:61–98, 1988.

P. R. Spalart : Strategies for turbulence modelling and simulations. *Int. J. Heat Fluid Flow*, 21:252–263, 2000.

L. C. Squire : A law of the wall for compressible turbulent boundary layers with air injection. *J. Fluid Mech.*, 37:449–456, 1969.

R. Stainsby et D. Martin : *Validation of fast reactor thermomechanical and thermo-hydraulic codes*. volume tecdoc1318, chapitre Thermal striping benchmark exercise : thermal hydraulic analysis of the PHENIX fast reactor secondary pipework T-junction, pages 206–226, IAEA, 2002.

R. Verzicco : Large-eddy-simulation of complex flows using the immersed boundary method. In W. Rodi et M. Mulas, éditeurs : *Engineering Turbulence Modelling and Experiments 6*, pages 17–30, Sardinia, Italy, May 2005.

C. Walker, M. Simiano, R. Zboray et H.-M. Prasser : Investigations on mixing phenomena in single-phase flow in a T-junction geometry, *Nucl. Eng. Design*, 239(1):116–126, 2009.

F. M. White : *Viscous Fluid Flow, 2nd édition*. McGraw-Hill, 1991.

D. G. Whitten, R. J. Moffat et W. M. Kays : Heat transfer to a turbulent boundary layer with non-uniform blowing and surface temperature. In *4th Inter. heat transfer conf*, 1970.

C. J. Wood : The effect of base bleed on a periodic wake. *Journal of Royal Aero Society, Technical notes*, 68:477–482, 1964.

X. Xu, J. S. Lee et R. H. Pletcher : A compressible finite volume formulation for large eddy simulation of turbulent pipe flows at low mach number in cartesian coordinates. *J. Comp. Phys.*, 203:22–48, 2005.

A. Zainali et B. Lessani : Large-eddy simulation of unstably stratified turbulent channel flow with high temperature differences. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 53(21–22):4865–4875, 2010.

## Chapitre 3

# Comportement des produits de fission dans du combustible nucléaire

---

Le combustible nucléaire utilisé dans les réacteurs à eau sous pression est de type céramique  $\text{UO}_2$  ou  $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ . En fonctionnement en puissance, le combustible est soumis à un flux d'irradiation neutronique qui va modifier la composition et la structure de cette céramique du fait de la création de produits de fission. Durant certaines situations accidentelles, le combustible peut être soumis à des transitoires thermiques qui provoquent des bouffées de relâchement de produits de fission hors de la pastille de combustible : les isotopes radioactifs relâchés contribuent à l'augmentation de l'activité dans l'enceinte de confinement du réacteur, voire hors de celle-ci, et peuvent induire, à terme, des conséquences radiologiques dans l'environnement. La cinétique de relâchement des produits de fission dépend fortement de leur forme chimique dans le combustible et de leur distribution à l'échelle macroscopique (dans la pastille) et microscopique (dans le grain). La première partie de ce chapitre retrace les travaux de recherche sur la stabilité des produits de fission dans le dioxyde d'uranium par calcul *ab initio*. Ces travaux de recherche de nature fondamentale apportent des éléments sur la forme chimique la plus probable des produits

de fission dans le combustible. La seconde partie de ce chapitre est dédiée au développement de modèles de relâchement de produits de fission hors du combustible (avec pour exemples les cas du baryum et du molybdène) et à la validation de ces modèles par la simulation de différents essais expérimentaux au moyen d'un code de calcul d'accident de réacteurs nucléaires.

### **3.1 Étude de la stabilité des produits de fission dans le dioxyde d'uranium**

Le dioxyde d'uranium a une structure cristallographique de type fluorite qui lui permet d'accommoder une forte concentration de défauts. Il présente ainsi une large gamme de non-stoechiométrie, notamment à hautes températures où la déviation stoechiométrique peut aller de -0,35 à 0,25 à 2 773 K (Olander, 1976 ; Hj. Matzke, 1981). Les défauts de structure sont principalement créés par l'irradiation du combustible en réacteur. Ils ont une influence sur les propriétés mécaniques du dioxyde d'uranium, et jouent un rôle important dans les propriétés de transport atomique et électronique, ainsi que les propriétés thermodynamiques du combustible. De plus, ils peuvent piéger les produits de fission ou contribuer à la migration de ces derniers dans la pastille de combustible.

Compte tenu de la difficulté de la mise en œuvre d'études expérimentales sur du combustible nucléaire, les études *ab initio* constituent un outil de choix pour la compréhension de mécanismes élémentaires. Nous avons d'abord étudié la structure du dioxyde d'uranium avec et sans défauts. Nous nous sommes ensuite intéressés aux aspects énergétiques d'insertion et de solution des produits de fission dans les défauts ponctuels de la matrice combustible. Enfin, nous avons étudié la stabilité des produits de fission dans le dioxyde d'uranium vis-à-vis des principales phases binaires ou ternaires qui peuvent se former dans le combustible.

#### **3.1.1 Dioxyde d'uranium et défauts ponctuels**

Il existe plusieurs méthodes dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité. Les plus usuelles sont l'approximation locale de la densité (LDA), l'approximation du gradient généralisé (GGA), les approximations LDA et GGA avec correction par le terme de corrélation de Hubbard U pour la description des électrons 5f de l'uranium (LDA+U et GGA+U). Il est également possible de décrire les propriétés magnétiques du système en introduisant dans les calculs la polarisation de spin. De manière

générale, l'approximation locale de la densité donne des résultats en accord raisonnable avec les données expérimentales pour la valeur du paramètre de maille et de l'énergie de cohésion du système. Cependant, la valeur du paramètre de maille est le plus souvent sous-estimée et l'énergie de cohésion et le module d'incompressibilité surestimés par rapport aux valeurs expérimentales. En ce qui concerne les propriétés de conduction électrique du dioxyde d'uranium, l'approximation LDA, qui ne tient pas compte des forts effets de corrélations des électrons 5f localisés de l'uranium, décrit systématiquement  $\text{UO}_2$  comme un oxyde métallique (Petit, 1996 ; Crocombette *et al.*, 2001). Pour l'étude du dioxyde d'uranium, l'approximation GGA, qui apporte une correction de gradient supplémentaire par rapport à la LDA, conduit à un paramètre de maille plus proche de la valeur expérimentale que l'approximation LDA, mais l'état fondamental de  $\text{UO}_2$  reste celui d'un métal ferromagnétique (Kudin *et al.*, 2002 ; Freyss *et al.*, 2005).

L'utilisation de la méthode LDA+U, (Dudarev *et al.*, 1997a) de corrections d'auto-interaction ou de fonctionnelles hybrides (Kudin *et al.*, 2002 ; Prodan *et al.*, 2006) ont permis de décrire l'état fondamental de  $\text{UO}_2$  comme un isolant antiferromagnétique à 0 K. Ainsi, en utilisant la méthode LDA+U, Dudarev *et al.* (1997c) ont correctement décrit  $\text{UO}_2$  (avec  $U = 4,5$  eV et  $J = 0,54$  eV) comme un isolant antiferromagnétique, de bande interdite 1,1 eV, un peu plus faible que la valeur expérimentale, avec un moment magnétique de  $1,92 \mu\text{B}$ . Les fonctionnelles hybrides combinent l'interaction d'échange non locale de type Hartree-Fock qui corrige le terme d'auto-interaction, avec les fonctionnelles d'échange-corrélation de la LSDA ou SGGA. En utilisant une fonctionnelle hybride Perdew *et al.* (1997) et Kudin *et al.* (2002) ont obtenu pour  $\text{UO}_2$  un paramètre proche de la valeur expérimentale et un caractère isolant antiferromagnétique pour le matériau avec une bande interdite de 2,6 eV.

### Cristal parfait de dioxyde d'uranium

Dans le cadre de notre étude, nous avons choisi d'utiliser des pseudopotentiels PAW (*Projector Augmented Wave*) implémentés dans le code VASP (Kresse et Furthmüller, 1996 ; Kresse et Joubert, 1999). Les calculs ont été réalisés sur une base d'ondes planes avec une énergie de coupure de 480 eV. L'échantillonnage de la zone de Brillouin est basé sur une grille de  $16 \times 16 \times 16$  points k. Les critères de convergence de l'énergie et des moments magnétiques ont été fixés respectivement à  $10^{-3}$  eV et  $0,01 \mu\text{B}$ . L'optimisation de la structure a été réalisée avec la condition que toutes les forces résiduelles soient inférieures à  $0,01$  eV/Å. Dans l'approximation GGA+U, le potentiel GGA en polarisation de spin Perdew *et al.* (1992) est augmenté d'un terme de



Hubbard pour décrire le caractère quasi-atomique des orbitales 5f localisées. Les électrons 5f localisés ont un potentiel qui dépend du spin et de l'orbitale, alors que les autres orbitales plus délocalisées sont considérées comme étant bien décrites dans l'approximation SGGA. Nous avons utilisé la forme de GGA+U invariante par rotation (Dudarev *et al.*, 1998) avec les termes comptés deux fois moyennés sphériquement. Dans cette approximation, nous avons fait varier  $U - J$  (noté  $U$  dans la suite afin de simplifier l'écriture). La structure à l'équilibre du dioxyde d'uranium a été déterminée en calculant l'énergie totale pour différents paramètres de maille et en ajustant les valeurs calculées à l'équation d'état de Birch-Murnaghan (Birch, 1947). Trois séries de calculs ont été réalisées en utilisant différentes fonctionnelles (GGA, GGA en polarisation de spin (noté SGGA dans la suite), et GGA+U pour différentes valeurs du potentiel de corrélation  $U$ ). L'énergie totale a été calculée en fonction du paramètre de maille et a permis de déterminer les valeurs du paramètre de maille à l'équilibre,  $a$ , et du module de rigidité,  $B$ , à partir de l'équation d'état de Birch-Murnaghan au troisième ordre :

$$E(V) = E_0 + \frac{9V_0B_0}{16} \left\{ B'_0 \left[ \left( \frac{V_0}{V} \right)^{\frac{2}{3}} - 1 \right]^3 + \left[ \left( \frac{V_0}{V} \right)^{\frac{2}{3}} - 1 \right]^2 \left[ 6 - 4 \left( \frac{V_0}{V} \right)^{\frac{2}{3}} \right] \right\} \quad (6)$$

où  $B_0$  est le module de rigidité du cristal,  $B'_0 = \left( \frac{\partial B}{\partial P} \right)_T$  la dérivée de  $B$  par rapport à la pression et à température constante,  $B_0$ ,  $V_0$  et  $E_0$  les valeurs de  $B$ ,  $V$  et  $E$  lorsque  $P = 0$ .

Dans les conditions normales de température et de pression, le dioxyde d'uranium cristallise dans la structure cubique de type fluorite ( $\text{CaF}_2$ ) de groupe d'espace  $\text{Fm}\bar{3}\text{m}$ . Le réseau de Bravais est cubique à faces centrées (c.f.c.) et la maille élémentaire contient une formule  $\text{UO}_2$ . Les positions atomiques sont  $(000)$  pour l'atome d'uranium et  $\pm a/4(111)$  pour les atomes d'oxygène, où  $a$  est le paramètre de maille cubique ( $a_{\text{exp}} = 5,47 \text{ \AA}$ ). Cette structure (voir figure 39) peut être décrite comme un sous-réseau c.f.c. des atomes d'uranium dont les atomes d'oxygène occupent tous les sites tétraédriques (les sites octaédriques sont inoccupés). Bien que la maille élémentaire de la structure fluorite, de nature c.f.c. contienne une seule formule  $\text{UO}_2$ , nous avons travaillé sur la maille cubique contenant 12 atomes. En effet, cette cellule est la plus petite permettant d'étudier l'état standard antiferromagnétique 1-k de  $\text{UO}_2$  dans le cadre d'un calcul en polarisation de spin.

Les résultats obtenus sont regroupés dans le tableau 5 et comparés aux mesures expérimentales. On observe que la méthode GGA donne une meilleure description

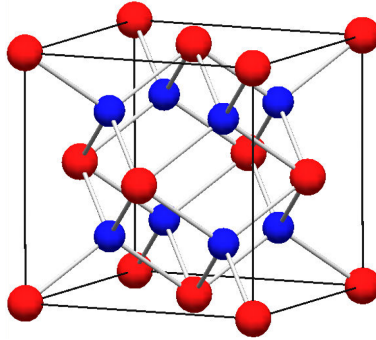


Figure 39. Représentation du réseau uranium (sphères rouges) et oxygène (sphères bleues) dans la structure fluorite  $UO_2$ .

Tableau 5. Propriétés de  $UO_2$  obtenues par les méthodes GGA, SGGA et GGA+U ( $U = 4\text{ eV}$ ); comparaison avec les mesures expérimentales.

	GGA	SGGA	GGA+U	Expérience
Paramètre de maille (Å)	5,38	5,40	5,52	5,47
Énergie de cohésion (eV/ $UO_2$ )	23,58	23,62	21,71	22,31
Module de rigidité (GPa)	209	188	209	207
Moment magnétique ( $\mu\text{B}$ )	0	1,44	1,94	1,74
Bande interdite (eV)	0	0	1,8	1,8

du paramètre de maille, de l'énergie de cohésion et du module de rigidité de  $UO_2$  que la méthode LDA (Petit, 1996 ; Crocombette *et al.*, 2001). La correction de gradient corrige partiellement la trop forte cohésion et le trop faible paramètre de maille obtenus en LDA. Nous pouvons remarquer que les valeurs du paramètre de maille et de l'énergie de cohésion obtenues en GGA+U sont plus proches des valeurs expérimentales que celles calculées en GGA. L'effet du paramètre  $U$  conduit à des valeurs du paramètre de maille légèrement supérieures et à des énergies de cohésion légèrement inférieures aux valeurs expérimentales. Notons que les calculs du module de rigidité donnent des résultats proches des données expérimentales avec les méthodes GGA+U et GGA sans polarisation de spin. Enfin, on observe que seule la méthode GGA+U nous permet de calculer  $UO_2$  comme un isolant avec une bande interdite de 1,8 eV pour une valeur du paramètre  $U$  de 4 eV qui est voisine de celle utilisée par d'autres études théoriques (Dudarev *et al.*, 1997b ; Laskowski *et al.*, 2004), ainsi que des données expérimentales (Schoenes, 1987 ; Kotani, 1992).

## Défauts ponctuels du dioxyde d'uranium

Les défauts ponctuels participent à l'écart à la stoechiométrie du combustible qui influence fortement la plupart des propriétés thermodynamiques, thermomécaniques et structurales du dioxyde d'uranium. En outre, ces défauts peuvent provoquer un gonflement du solide, et constituent des sites d'incorporation pour les produits de fission. Les premières études théoriques réalisées pour déterminer les énergies de formation de défauts dans le combustible sont basées sur des potentiels empiriques (Catlow, 1973, 1977 ; Jackson *et al.*, 1986, 1987). Les écarts de résultats entre ces études et les valeurs expérimentales (Hj. Matzke, 1987) s'expliquent principalement par l'utilisation de potentiels empiriques et de charges formelles pour décrire les propriétés de cohésion des oxydes partiellement covalents. Plus récemment, des calculs *ab initio* basés sur la théorie de la fonctionnelle de la densité, utilisés pour calculer les énergies de formation de défauts dans  $\text{UO}_2$  (Petit *et al.*, 1998 ; Crocombette *et al.*, 2001 ; Freyss *et al.*, 2005), ont conduit à des résultats en meilleur accord avec les énergies expérimentales. Ces calculs ont cependant été réalisés dans les approximations LDA ou GGA sur des cellules d'une taille maximale de 24 atomes.

Nous avons donc effectué des calculs en GGA+U pour déterminer les énergies de formation des principaux défauts ponctuels dans  $\text{UO}_2$  à partir d'une supermaille de 96 atomes (maille cubique  $2a \times 2a \times 2a$ , contenant 32 formules  $\text{UO}_2$ ) pour minimiser les interactions entre défauts « images » dues à la périodicité de la maille. Les énergies de formation de défauts ont également été calculées dans les approximations GGA et SGGGA afin de comparer les différentes approximations. Le paramètre de maille est celui calculé à l'équilibre pour  $\text{UO}_2$  dans chacune des trois approximations. L'échantillonnage de la zone de Brillouin a été réalisé avec une grille de  $4 \times 4 \times 4$  points  $k$ . La convergence a été obtenue à volume constant avec relaxation des ions et sans modification de la forme de la cellule. Les énergies de formation ( $E^F$ ) des principaux défauts ponctuels (lacunes  $V_U$  et  $V_O$ , interstitiel  $I_U$  et  $I_O$ , paires de Frenkel  $FP_O$  et  $FP_U$  et défaut de Schottky) sont rassemblées dans le tableau 6. Les énergies sont calculées pour des défauts sans interactions (e.g.  $E_{FP_O}^F = E_{V_O}^F + E_{I_O}^F$ ,  $E_{Sch}^F = E_{V_U}^F + 2E_{V_O}^F - E_{UO_2}$ ).

D'un point de vue énergétique, les deux défauts les plus favorables sont l'interstitiel d'oxygène et la paire de Frenkel d'oxygène. On peut remarquer que l'énergie de formation d'un oxygène dans un site interstitiel est négative. Ceci signifie que l'atome d'oxygène est plus stable en position interstitielle dans  $\text{UO}_2$  que dans la molécule de

Tableau 6. Énergies de formation des défauts ponctuels sans interaction.

$E^f$ (eV)	$V_U$	$V_O$	$I_U$	$I_O$	$FP_O$	$FP_U$	Sch
GGA	4,0	6,1	6,0	-2,5	3,6	10,0	5,2
SGGA	4,4	6,1	6,5	-2,6	3,5	10,9	5,5
GGA+U	6,0	5,6	8,2	-1,6	4,0	14,2	7,2

dioxygène. Ce résultat est en bon accord avec le fait que le dioxyde d'uranium s'oxyde facilement à l'air. L'évolution de la concentration des défauts avec la température et l'écart à la stoechiométrie peut être calculé en se basant sur la méthode PDM (*Point Defect Model*, Lidiard (1966) ; Hj. Matzke (1987)). Ce faisant, nous avons observé que, contrairement aux observations expérimentales, les méthodes GGA et SGGA prévoient la prédominance de la lacune d'uranium pour le régime sur-stoechiométrique. Seule la méthode GGA+U permet de correctement calculer la prédominance des interstitiels d'oxygène dans  $UO_{2+x}$ . Par conséquent, la méthode GGA+U permet l'obtention de meilleurs résultats que les autres méthodes étudiées à la fois pour les études du composé pur  $UO_2$  et des défauts ponctuels.

### 3.1.2 Insertion des produits de fission dans la matrice $UO_2$

Les produits de fission sont créés dans la matrice combustible suite aux fissions nucléaires. L'aptitude de ces produits de fission à s'incorporer de façon stable dans les défauts de structure constitue un élément important pour l'évaluation de leur relâchement hors du combustible en situation accidentelle. Plusieurs produits de fission ont été considérés dans cette étude pour leur importance dans les études de sûreté : hélium, krypton, xénon, iode, césium, baryum, molybdène, tellure, ruthénium, strontium, cérium et zirconium. Par conséquent, nous avons étudié l'incorporation de ces produits de fission dans les sites cristallins suivants : les lacunes d'uranium ( $V_U$ ) et d'oxygène ( $V_O$ ), les sites interstitiels octaédriques (Int), les lacunes O-U (DV) et les défauts de Schottky (Sch).

#### Énergies d'incorporation

Les énergies d'incorporation ( $E_{PF_eX}^{inc}$ ) d'un produit de fission (PF) dans un site  $X$  sont déterminées à partir des supercellules de calcul avec et sans le produit de

fission considéré :

$$E_{PF\epsilon X}^{inc} = E_{PF\epsilon X} - E_X - E_{PF}^{\infty} \quad (7)$$

où  $E_{PF}^{\infty}$  est l'énergie du produit de fission isolé. Les énergies d'incorporation regroupées dans le tableau 7 sont évaluées après relaxation des atomes à volume constant de la cellule. On observe que la lacune d'uranium est le site d'incorporation le plus favorable (énergie d'incorporation la plus faible) de la majeure partie des produits de fission. Seuls le xénon et l'iode ont un comportement différent et préfèrent respectivement une dilacune et un trio de Schottky. Il faut noter ici que le signe de l'énergie d'incorporation ne signifie en rien que le produit de fission est soluble. En effet, on ne tient pas compte dans cette partie ni de la disponibilité des sites d'accueil (voir partie sur l'énergie de solution) ni de la compétition entre l'incorporation dans les sites d'accueil et la formation de composé chimique dans des phases séparées (voir partie sur la stabilité des produits de fission). La classification des produits de fission selon leur degré de volatilité en situation accidentelle se retrouve dans les valeurs des énergies d'incorporation du tableau 7. Un premier groupe composé de (He, Kr, Xe, I et Cs) a des énergies d'incorporation élevées et correspond à des produits de fission volatils qui sont relâchés très rapidement en situation accidentelle. Le second groupe avec des énergies d'incorporation intermédiaires (Te, Ru, Ba, Mo, Sr) est formé de produits de fission semi-volatils (*i.e.* leur relâchement en situation accidentelle dépend principalement de la vaporisation de composés formés aux joints de grains du

Tableau 7. Énergies d'incorporation des produits de fission dans le dioxyde d'uranium.

PF / X	$E_X^{inc} (FP)$ in eV				
	Int.	V <sub>O</sub>	V <sub>U</sub>	DV	Sch
He	1,34	1,05	<b>-0,82</b>	-0,19	-0,02
Kr	6,23	5,41	<b>0,65</b>	0,91	1,43
Xe	9,71	7,85	1,95	<b>1,55</b>	1,63
I	5,83	2,55	0,59	0,11	<b>-0,85</b>
Cs	7,53	6,41	<b>-1,20</b>	-1,12	-0,61
Te	5,22	0,78	<b>-8,40</b>	-2,08	-2,52
Ru	-2,46	-4,87	<b>-7,63</b>	-7,42	-5,85
Ba	5,47	4,51	<b>-8,45</b>	-5,72	-2,93
Mo	-0,92	1,74	<b>-7,58</b>	-6,36	-3,09
Sr	3,25	3,68	<b>-7,86</b>	-7,61	-3,80
Ce	-1,64	-0,20	<b>-14,50</b>	-12,09	-8,21
Zr	-4,52	-1,99	<b>-14,58</b>	-12,66	-8,53

combustible). Le troisième groupe formé de Ce et Zr a des énergies d'incorporation très faibles et correspond aux produits de fission peu volatils (*i.e.* leur relâchement est lié à la volatilisation de l'uranium). En outre, on note que le site d'incorporation le moins favorable est la lacune d'oxygène pour ces deux produits de fission contrairement au site interstitiel pour la majeure partie des autres produits de fission.

Les énergies d'incorporation résultent d'une compétition entre les effets stériques du fait de l'incorporation des produits de fission dans le site de piégeage et la formation de liaisons entre le produit de fission et les atomes voisins de la matrice  $\text{UO}_2$ . L'incorporation des produits de fission du premier groupe décrit ci-dessus est principalement conditionnée par les contraintes stériques. Par exemple, la grande taille de l'atome de xénon et la faible affinité électronique du krypton avec l'oxygène expliquent les fortes valeurs de leurs énergies d'incorporations. Pour le second groupe, la compétition entre les effets chimiques et stériques augmente. Ainsi, la plus faible énergie d'incorporation du strontium peut s'expliquer par des effets électrostatiques plus grand entre le strontium et l'oxygène qu'entre l'iode et l'oxygène. Les très faibles valeurs des énergies d'incorporation pour le troisième groupe proviennent des fortes interactions chimiques entre les atomes. On observe que la position relaxée de Ce et Zr dans une dilacune et un trio de Schottky correspond à la position de l'uranium manquant tandis que pour le molybdène (deuxième groupe) la position d'équilibre correspond au barycentre des atomes U-O manquants. De plus, les positions des atomes d'oxygène en plus proche voisins sont beaucoup plus affectées par l'incorporation du molybdène que du cérium ou du zirconium. Ces faits sont cohérents avec la possibilité de Ce et Zr d'avoir un degré d'oxydation +IV comme l'uranium et de former des solutions continues  $\text{CeO}_2\text{-UO}_2$  et  $\text{ZrO}_2\text{-UO}_2$  (Sato *et al.*, 1999a ; Yamada *et al.*, 1997).

Ces résultats sont qualitativement en bon accord avec les études basées sur la méthode de Mott-Littleton (Grimes et Catlow, 1991 ; Nicoll *et al.*, 1997 ; Busker *et al.*, 2000, 2003). En effet, dans ces études, la lacune d'uranium est le site d'incorporation le plus favorable pour la plupart des produits de fission. La préférence de l'iode de s'incorporer dans un trio de Schottky est cohérent avec les précédentes études utilisant la théorie de la fonctionnelle de la densité (Dorado *et al.*, 2009) et la méthode de Mott-Littleton (Grimes et Catlow, 1991 ; Busker *et al.*, 2000). La détermination du site d'incorporation préférentiel de l'hélium conduit soit au site interstitiel octaédrique (Freyss *et al.*, 2006), soit, comme dans notre étude, à la lacune d'uranium (Crocombette, 2002 ; Petit *et al.*, 2003 ; Yun *et al.*, 2009).

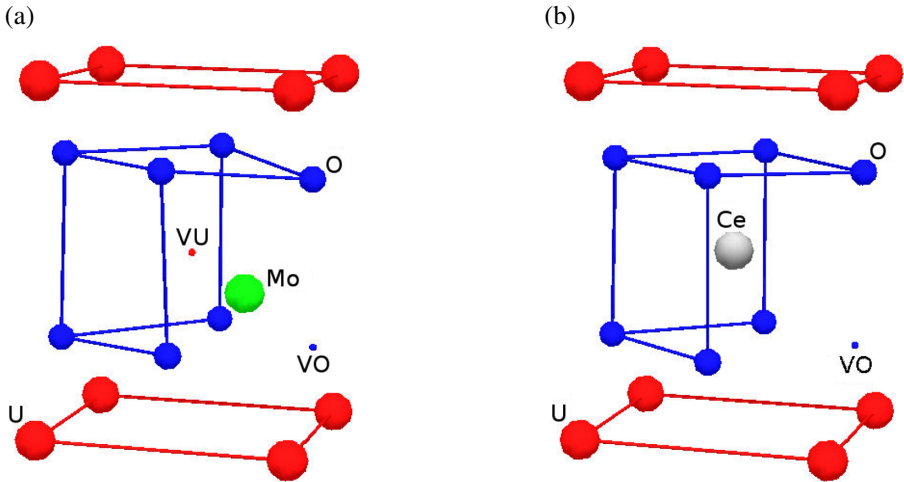


Figure 40. Incorporation du (a) molybdène et du (b) cérium dans une dilacune uranium-oxygène (seuls les premiers voisins O et U sont représentés).

### Énergies de solution

Les énergies d'incorporation donnent une indication sur les sites de piégeage les plus favorables dans le cas où tous les défauts considérés ont la même concentration dans le combustible. Cependant, la concentration des défauts dépend de la stoechiométrie du combustible et de la température. Pour prendre en compte ces deux paramètres, nous considérons que le combustible est à l'équilibre thermodynamique et nous calculons les énergies de solution définies selon :

$$E_{\text{FP}\epsilon X}^{\text{sol}} = E_{\text{FP}\epsilon X}^{\text{inc}} + E_X^{\text{Fapp}} \quad (8)$$

où  $E_X^{\text{Fapp}}$  est l'énergie de formation apparente du défaut  $X$ . Cette énergie dépend à la fois de la température et de l'écart à la stoechiométrie selon l'expression suivante :

$$E_X^{\text{Fapp}} = -kT \log([X]) \quad (9)$$

Les concentrations des défauts  $[X]$  et les énergies de formations  $E_X^{\text{Fapp}}$  peuvent être évaluées dans le cadre de la théorie des défauts ponctuels (PDM) initiée par Lidiard (1966) et Hj. Matzke (1987). Dans cette théorie, on considère que la déviation stoechiométrique du combustible  $x$  est due aux défauts simples isolés. La méthode PDM ne prend donc pas en compte les défauts complexes tels les défauts de Willis. Néanmoins, Geng *et al.* (2008) ont montré que les concentrations de défauts évaluées dans le cadre du PDM étaient en accord avec les données expérimentales pour

$x < 0,03$ . Le PDM fait l'hypothèse du défaut majoritaire : la lacune d'oxygène dans  $\text{UO}_{2-x}$ , la paire de Frenkel d'oxygène dans  $\text{UO}_2$  et les interstitiels d'oxygène dans  $\text{UO}_{2+x}$ . En utilisant ces hypothèses, on obtient les expressions pour  $E_X^{Fapp}$  rassemblées dans le tableau 8. On peut alors calculer les énergies de solution des produits de fission (voir tableau 9). Une énergie de solution négative signifie que le produit de fission est plus stable dans le site de piégeage plutôt qu'à l'état isolé.

Tableau 8. Énergies de formation apparente des défauts dans le dioxyde d'uranium ( $E_{PF_O}$  et  $E_{PF_U}$  : énergies de formation des paires de Frenkel d'oxygène et d'uranium,  $E_{Sch}$  : énergie de formation du trio de Schottky, and  $B_{DV}$  and  $B_{Sch}$  : énergie de liaison des di- and trilacunes).

X	$E_X^{Fapp}$		
	$\text{UO}_{2-x}$	$\text{UO}_2$	$\text{UO}_{2+x}$
$V_O$	$-kT \ln ( x /2)$	$\frac{E_{PF_O}}{2} + \frac{kT}{2} \ln (2)$	$E_{PF_O} + kT \ln (x)$
$V_U$	$2kT \ln \left( \frac{ x }{2} \right) + E_{Sch}$	$E_{Sch} - E_{PF_O} - kT \ln (2)$	$E_{Sch} - 2E_{PF_O} - 2kT \ln (x)$
$DV$	$E_{Sch} - B_{DV} + kT \ln \left( \frac{ x }{2} \right)$	$E_{Sch} - \frac{E_{PF_O}}{2} - B_{DV} - \frac{kT}{2} \ln (2)$	$E_{Sch} - E_{PF_O} - B_{DV} - kT \ln (x)$
$Sch$	$E_{Sch} - B_{Sch}$	$E_{Sch} - B_{Sch}$	$E_{Sch} - B_{Sch}$

Dans le premier groupe de produits de fission (avec des énergies d'incorporation élevées : He, Kr, Xe, I et Cs), les énergies de solution sont toujours positives sauf pour la lacune d'uranium et la dilacune. Le xénon est le seul produit de fission à n'avoir que des énergies de solution positives ; ce qui montre bien l'instabilité du xénon dans le dioxyde d'uranium. Les produits de fission des deux autres groupes ont toujours au moins une énergie de solution négative quelle que soit la stoechiométrie du combustible. Les sites d'insertion les plus favorables sont la dilacune et la lacune d'uranium. Le ruthénium a un comportement particulier dans  $\text{UO}_{2-x}$  puisque la lacune d'oxygène est le site préférentiel d'insertion. Pour l'ensemble des produits de fission, l'énergie de solution la plus faible diminue lorsque l'écart à la stoechiométrie augmente ; ce qui est cohérent avec le fait que les sites préférentiels contiennent une lacune d'uranium (puisque leurs concentrations augmentent avec l'écart à la stoechiométrie). On peut remarquer que lorsque le taux de combustion du combustible augmente, le défaut de structure préférentiel (la lacune d'uranium) ne peut plus accommoder l'ensemble des produits de fission créés. Dès lors, les autres sites d'insertion, en premier lieu la dilacune et les trio de Schottky, seront mis à contribution.

Pour s'affranchir des hypothèses du PDM sur le défaut majoritaire, nous avons choisi de résoudre directement le système d'équations (10) où  $[I_{O,U}]$ ,  $[V_{O,U}]$  sont les concentrations des interstitiels et lacunes d'oxygène et d'uranium,  $[DV]$  et  $[Sch]$  les concentrations des dilacunes et des trio de Schottky.



Tableau 9. Énergie de solution (eV) des produits de fission dans  $UO_{2\pm x}$ .

$E_X^{sol}$ (FP)	$UO_{2-x}$	$UO_2$	$UO_{2+x}$	$UO_{2-x}$	$UO_2$	$UO_{2+x}$	$UO_{2-x}$	$UO_2$	$UO_{2+x}$
X	Hélium			Krypton			Xénon		
Int	1,34	1,34	1,34	6,23	6,23	6,23	9,71	9,71	9,71
$V_O$	<b>1,05</b>	3,05	5,05	5,41	7,41	9,41	7,85	9,85	11,85
$V_U$	6,38	2,38	<b>-1,62</b>	7,85	3,85	<b>-0,15</b>	9,15	5,15	1,15
DV	3,11	<b>1,11</b>	-0,89	4,21	<b>2,21</b>	0,21	4,85	<b>2,85</b>	<b>0,85</b>
Sch	1,48	1,48	1,48	<b>2,93</b>	2,93	2,93	<b>3,57</b>	3,57	3,57
	Iode			Césium			Tellure		
Int	5,83	5,83	5,83	7,5	7,5	7,5	5,22	5,22	5,22
$V_O$	2,55	4,55	6,55	6,4	8,4	10,4	0,78	2,78	4,78
$V_U$	7,79	3,79	-0,21	6,1	2,0	<b>-2,0</b>	<b>-1,20</b>	<b>-5,20</b>	<b>-9,20</b>
DV	3,41	1,41	<b>-0,59</b>	2,2	<b>0,2</b>	-1,8	1,22	-0,78	-2,78
Sch	<b>0,65</b>	<b>0,65</b>	0,65	<b>0,9</b>	0,9	0,9	-1,02	-1,02	-1,02
	Ruthénium			Baryum			Molybdène		
Int	-2,46	-2,46	-2,46	5,47	5,47	5,47	-0,9	-0,9	-0,9
$V_O$	<b>-4,87</b>	-2,87	-0,87	4,51	6,51	8,51	1,7	3,7	5,7
$V_U$	-0,43	-4,43	<b>-8,43</b>	-1,25	<b>-5,25</b>	<b>-9,25</b>	-0,4	-4,4	<b>-8,4</b>
DV	-4,12	<b>-6,12</b>	-8,12	<b>-2,42</b>	-4,42	-6,42	<b>-3,1</b>	<b>-5,1</b>	-7,1
Sch	-4,35	-4,35	-4,35	-1,43	-1,43	-1,43	-1,6	-1,6	-1,6
	Strontium			Cérium			Zirconium		
Int	3,25	3,25	3,25	-1,64	-1,64	-1,64	-4,52	-4,52	-4,52
$V_O$	3,68	5,68	7,68	-0,20	1,80	3,80	-1,99	0,01	2,01
$V_U$	-0,66	-4,66	<b>-8,66</b>	-7,30	<b>-11,30</b>	<b>-15,30</b>	-7,38	<b>-11,38</b>	<b>-15,38</b>
DV	<b>-4,31</b>	<b>-6,31</b>	-8,31	<b>-8,79</b>	-10,79	-12,79	<b>-9,36</b>	<b>-11,36</b>	-13,36
Sch	-2,30	-2,30	-2,30	-6,71	-6,71	-6,71	-7,03	-7,03	-7,03

$$[V_O][I_O] = \exp\left(-\frac{E_{PF_O}}{k_B T}\right) \quad (10a)$$

$$[V_U][I_U] = \exp\left(-\frac{E_{PF_U}}{k_B T}\right) \quad (10b)$$

$$[V_O]^2[V_U] = \exp\left(-\frac{E_{Sch}}{k_B T}\right) \quad (10c)$$

$$[DV] = [V_O][V_U] \exp\left(-\frac{B_{DV}}{k_B T}\right) \quad (10d)$$

$$[Sch] = [V_O]^2[V_U] \exp\left(-\frac{B_{Sch}}{k_B T}\right) \quad (10e)$$

$$2[V_U] + [I_O] \simeq 2[I_U] + 2[V_O] + x \quad (10f)$$

où  $E_{PF_O}$ ,  $E_{PF_U}$ ,  $E_{Sch}$  sont les énergies de formation des paires de Frenkel d'oxygène et d'uranium et des trio de Schottky, et  $B_{DV}$  et  $B_{Sch}$  les énergies de liaison des dilacunes et trio de Schottky. Pour résoudre ce système, on peut faire l'hypothèse moins forte que la concentration des interstitiels d'uranium est négligeable devant les autres concentrations de défauts. Cette hypothèse s'avère être *a posteriori* largement vérifiée et conduit au polynôme de degré 3 suivant :

$$P(Y = [V_O]) = 0 = 2Y^3 + xY^2 - Y \exp\left(-\frac{E_{PF_O}}{k_B T}\right) - 2 \exp\left(-\frac{E_{Sch}}{k_B T}\right) \quad (11)$$

Ce polynôme a une unique solution positive correspondant à la concentration de lacune d'oxygène. Les autres concentrations de défauts peuvent être calculées soit en utilisant le système d'équations (10), soit directement en appliquant une méthode similaire à celle décrite ci-dessus pour obtenir  $[V_O]$ . Pour le régime sur-stoechiométrique, la concentration de lacune d'oxygène est très faible et peut conduire à certaines erreurs de précision lors de la résolution du polynôme. Aussi, pour  $UO_{2+x}$ , il est préférable de calculer d'abord la concentration d'interstitiels d'oxygène.

L'évolution de l'énergie de solution du ruthénium dans  $UO_{1,99}$  avec la température est tracée sur la figure 41 pour tous les sites considérés dans cette étude. Le site d'insertion le plus favorable pour le ruthénium dépend de la température. Ainsi, si le site préférentiel est la lacune d'oxygène dans le dioxyde d'uranium sous-stoechiométrique à  $T = 0$  K, on observe que la dilacune devient plus favorable pour les températures supérieures à  $\sim 800$  K. Ce changement d'ordre des sites d'insertion peut se

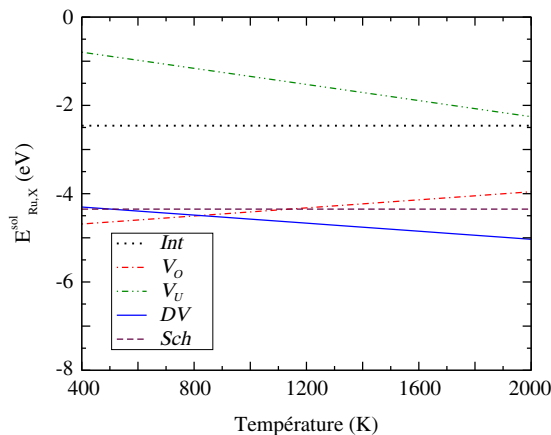


Figure 41. Évolution de l'énergie de solution de Ru dans  $UO_{1,99}$  en fonction de la température.

comprendre puisque l'énergie de formation apparente des lacunes d'oxygène augmente avec la déviation stoechiométrique tandis que celle des lacunes d'uranium diminue. Par conséquent, l'énergie de solution  $E_{Ru \in DV}^{sol}$  décroît lorsque la température augmente. L'évolution de l'énergie de solution du ruthénium en fonction de l'écart à la stoechiométrie à  $T = 1\,500\text{ K}$  est représentée à la figure 42. Pour cette température, la dilacune est le site d'insertion préférentiel quelle que soit la déviation stoechiométrique. Le comportement du ruthénium à  $T = 1\,500\text{ K}$  diffère donc de celui à  $T = 0\text{ K}$  (puisque les sites préférentiels sont la lacune d'oxygène pour  $x < 0$  et la lacune d'uranium pour  $x > 0$ ).

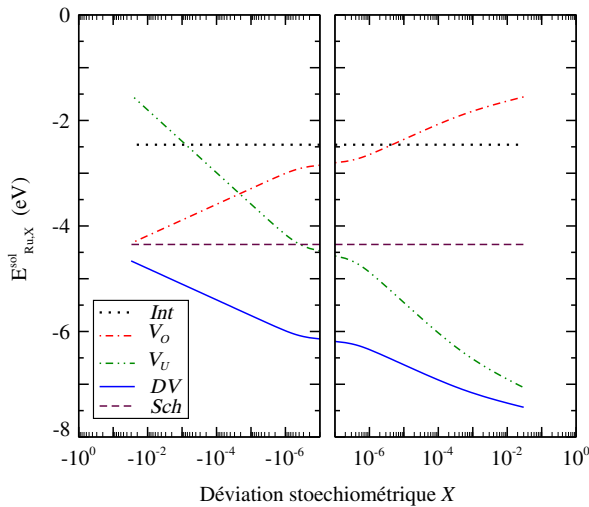


Figure 42. Impact de la déviation stoechiométrique sur l'énergie de solution du ruthénium à  $T = 1\,500\text{ K}$ .

En utilisant la même approche, on peut également calculer les énergies de solution des autres produits de fission en fonction de la température et de l'écart à la stoechiométrie. On peut alors déterminer les domaines  $T$ - $x$  des sites favorables d'insertion des produits de fission dans  $UO_{2\pm x}$ . Ces domaines sont représentés à la figure 43 pour  $T$  allant de 400 à 2000 K et  $x$  de -0,02 à +0,02. Dans le régime sous-stoechiométrique (figure 43a), on observe que le site préférentiel passe de DV à  $V_U$  pour le cérium et de  $V_O$  à DV pour le ruthénium lorsque  $T$  et  $x$  augmentent. Dans le régime sur-stoechiométrique (figure 43b), le site de solution préférentiel change uniquement pour l'hélium de DV à  $V_U$ .

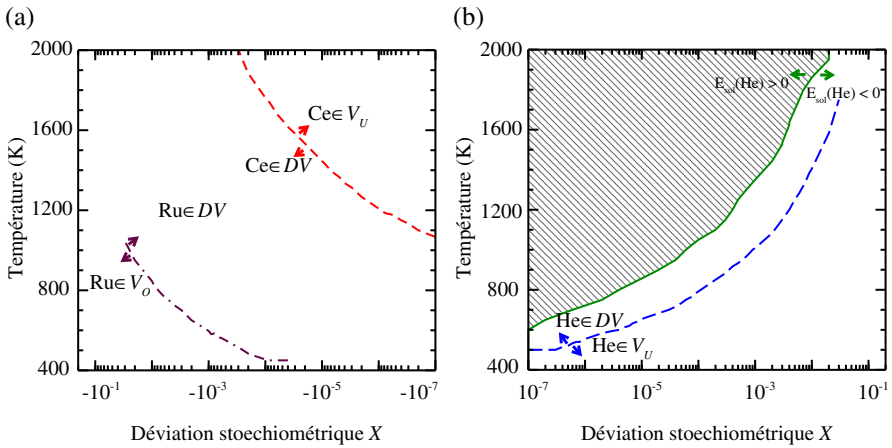


Figure 43. Domaines  $T$ - $x$  pour les sites de solutions les plus favorables dans le dioxyde d'uranium (a) sous-stoechiométrique et (b) sur-stoechiométrique.

### 3.1.3 Stabilité des produits de fission dans le dioxyde d'uranium

#### Gaz inertes

L'hélium, le xénon et le krypton ne forment pas de phases séparées. Par conséquent leur solubilité est directement liée au signe de leur énergie de solution (un signe négatif signifie la solubilité du produit de fission). En résolvant le système d'équations (10), on trouve que, pour les températures comprises entre 400 et 2 000 K, l'hélium est insoluble dans  $UO_{2-x}$  et  $UO_2$  ainsi que dans  $UO_{2+x}$  à haute température. Par exemple, à  $x = 10^{-3}$ , l'hélium est insoluble pour  $T > 1\,350$  K. Par ailleurs, le xénon et le krypton sont insolubles dans le dioxyde d'uranium pour  $T \in [400 ; 2\,000]$  K et  $x \in [-0,02 ; 0,02]$  en accord avec les observations expérimentales (Hj. Matzke, 1980 ; Garcia *et al.*, 2006).

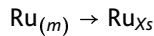
#### Produits de fission chimiquement actifs

Les calculs des énergies de solution effectués dans la partie précédente sont très utiles pour prédire le site préférentiel d'insertion des produits de fission. Néanmoins, le mécanisme de solution des produits de fission dans les sites d'accueil de la matrice combustible est en compétition avec le mécanisme de formation de phases séparées

telles les inclusions métalliques ou les phases d'oxydes observées expérimentalement (Kleykamp *et al.*, 1985 ; Lindemer et Besmann, 1981 ; Cordfunke et Konings, 1990). Dans cette partie, nous avons évalué les énergies de formation de plusieurs composés avec le logiciel VASP.

**Iode** : l'iode peut interagir avec le césium pour former des précipités d'iodure de césium (CsI). Le rendement de fission de l'iode est environ dix fois plus petit que celui du césium. Par conséquent, la formation de précipités de CsI n'aura que peu d'influence sur le comportement du césium mais aura beaucoup d'influence sur celui de l'iode. Nos calculs montrent que l'iodure de césium est insoluble dans  $UO_{2+x}$ . On s'attend donc à ce que l'iode précipite sous forme de CsI dans le combustible. Cependant, comme CsI est instable pour les températures supérieures à 1 550 K, l'iode peut rapidement être relâché en conditions accidentelles.

**Précipités métalliques** : nous avons évalué la stabilité relative des précipités métalliques de ruthénium et tellure vis-à-vis des atomes dissous dans les sites d'accueil préférentiels  $FP_{Xs}$  qui dépendent à la fois de la température et de la déviation stoechiométrique du combustible. En prenant l'exemple du ruthénium, on considère la réaction chimique suivante :



et l'énergie de solution est évaluée selon :

$$E_{Ru_{(m)}}^{sol} = E_{Ru \in Xs}^{sol} - E_{Ru_{(m)}}^{\mathcal{F}} \quad (12)$$

où  $E_{Ru}^{\mathcal{F}}$  est l'énergie de formation du ruthénium métallique avec pour référence l'atome Ru isolé,  $E_{Ru \in Xs}^{sol}$  l'énergie de solution du ruthénium dans son site d'accueil préférentiel  $Xs$  (e.g.  $Xs$  est la dilacune dans  $UO_{2+x}$ ). Les énergies de solution de  $Ru_{(m)}$  et  $Te_{(m)}$  sont données dans le tableau 10. Une valeur positive indique que les précipités métalliques sont insolubles dans le combustible. Le ruthénium métallique est insoluble dans le dioxyde d'uranium quel que soit l'écart à la stoechiométrie tandis que le tellure métallique est insoluble dans  $UO_{2-x}$  et soluble dans  $UO_2$  et  $UO_{2+x}$ . Ceci est cohérent avec les observations expérimentales d'inclusions métalliques  $\epsilon$ -Ru (Ru, Pd, Rh, Tc, Mo, Te) (Kleykamp, 1985 ; Sato *et al.*, 1997) dans du combustible sous ou proche stoechiométrique. Pour le combustible sur-stoechiométrique, on s'attend à ce que la formation de précipités métalliques soit en compétition avec la formation de précipités d'oxydes.

Tableau 10. Précipités contenant les produits de fission : propriétés cristallographiques et énergies de solution dans le dioxyde d'uranium (<sup>°</sup> Cordfunke et Konings (1990), <sup>\*</sup> Wyckoff (1963), <sup>†</sup> Santoro et al. (2000), <sup>‡</sup> Knight et Bonanos (1995)).

Composés	Groupe d'espace	Paramètres de maille (Å)		Énergies de solution $E^{sol}$ (eV)		
		Calc.	Exp.	UO <sub>2-x</sub>	UO <sub>2</sub>	UO <sub>2+x</sub>
CsI	$Pm\bar{3}m$	$a = 4,65$	$a = 4,567$ (Rymer et Hambling, 1951)	7,0	6,3	2,9
Ru <sub>(m)</sub>	$P6_3/mmc$	$a = 2,73$ $c = 4,32$	$a = 2,704$ $c = 4,282$ *	4,2	3,0	1,7
Te <sub>(m)</sub>	$P3_121$	$a = 4,50$ $c = 5,96$	$a = 4,447$ $c = 5,915$ *	2,0	-2,0	-6,0
BaO	$Fm\bar{3}m$	$a = 5,60$	$a = 5,53$ (Zollweg, 1955)	-0,5	-1,3	-3,3
CeO <sub>2</sub>	$Fm\bar{3}m$	$a = 5,46$	$a = 5,41$ (Eyring, 1979)	-2,4	-0,9	-0,9
Ce <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	$P\bar{3}m1$	$a = 3,77$ $c = 5,91$	$a = 3,888$ $c = 6,026$ (Eyring, 1979)	-4,2	-3,2	-5,2
Cs <sub>2</sub> O	R-3m	$a = 4,26,$ $c = 19,01$	$a = 4,256$ $c = 18,99$ °	1,3	1,9	-0,5
Cs <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	Immm	$a = 4,27$ $b = 7,47$ $c = 6,480$	$a = 4,322$ $b = 7,517$ $c = 6,430$ (Lindemer et Besmann, 1981)	-2,6	0,0	-0,4
CsO <sub>2</sub>	I4/mmm	$a = 4,39$ $b = 7,30$	$a = 4,477$ $b = 7,350$ (Vannerberg, 1962)	-5,9	-2,6	-2,8
MoO <sub>2</sub>	$P2_1/c$	$a = 5,61$ $b = 4,89$ $c = 5,66$ $\beta = 121^\circ$	$a = 5,611$ $b = 4,856$ $c = 5,629$ $\beta = 120,95^\circ$ °	-1,1	0,9	0,6
MoO <sub>3</sub>	Pnma	$a = 13,90$ $b = 3,71$ $c = 3,92$	$a = 13,86$ $b = 3,696$ $c = 3,963$ °	-4,4	-0,4	2,3
RuO <sub>2</sub>	$P4_2/mnm$	$a = 4,54$ $c = 3,14$	$a = 4,497$ $c = 3,105$ (Bolzan et al., 1997)	-2,7	0,0	1,7
SrO	$Fm\bar{3}m$	$a = 5,20$	$a = 5,160$ *	-2,1	-2,1	-2,5
TeO <sub>2</sub>	$P4_12_12$	$a = 4,85$ $c = 7,69$	$a = 4,81$ $c = 7,62$ (Neamtu et al., 2000)	-4,9	-4,9	-4,9
ZrO <sub>2</sub>	$P2_1/c$	$a = 5,22$ $b = 5,28$ $c = 5,40$ $\beta = 99,69^\circ$	$a = 5,145$ $b = 5,2075$ $c = 5,3167$ $\beta = 99,23^\circ$ (Smith et Newkirk, 1965)	-2,9	-0,9	-0,9

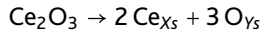
(Suite en page suivante)

Tableau 10. (Suite)

Composés	Groupe d'espace	Paramètres de maille (Å)		Énergies de solution $E^{sol}$ (eV)		
		Calc.	Exp.	UO <sub>2-x</sub>	UO <sub>2</sub>	UO <sub>2+x</sub>
BaCeO <sub>3</sub>	<i>Pmcn</i>	<i>a</i> = 8,86 <i>b</i> = 6,28 <i>c</i> = 6,29	<i>a</i> = 8,774 <i>b</i> = 6,234 <i>c</i> = 6,213 †	-2,3	-1,7	-3,7
BaRuO <sub>3</sub>	<i>R<math>\bar{3}m</math></i>	<i>a</i> = 5,83 <i>c</i> = 21,90	<i>a</i> = 5,754 <i>c</i> = 21,63 †	-6,7	-4,8	-5,1
BaMoO <sub>3</sub>	<i>Pm-3m</i>	<i>a</i> = 4,05	<i>a</i> = 4,05 ◊	-0,5	0,7	-0,6
BaMoO <sub>4</sub>	<i>I4<sub>1</sub>/a</i>	<i>a</i> = 5,57 <i>c</i> = 12,69	<i>a</i> = 5,548 <i>c</i> = 12,74 ◊	-2,2	1,0	1,7
BaUO <sub>3</sub>	<i>Pm3m</i>	<i>a</i> = 4,51	<i>a</i> = 4,405 (Yamanaka <i>et al.</i> , 2001)	-1,1	-2,0	-4,0
BaZrO <sub>3</sub>	<i>Pm3m</i>	<i>a</i> = 4,25	<i>a</i> = 4,192 (Kurosaki <i>et al.</i> , 2006)	-2,3	-1,1	-3,1
Cs <sub>2</sub> UO <sub>4</sub>	<i>I4/mmm</i>	<i>a</i> = 4,43 <i>c</i> = 14,61	<i>a</i> = 4,392 <i>c</i> = 14,80 ◊	0,4	3,0	2,6
Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub>	<i>Pnma</i>	<i>a</i> = 8,46 <i>b</i> = 6,48 <i>c</i> = 11,46	<i>a</i> = 8,510 <i>b</i> = 6,562 <i>c</i> = 11,61 ◊	1,3	5,9	6,2
Cs <sub>2</sub> ZrO <sub>3</sub>	<i>Cmcm</i>	<i>a</i> = 11,28 <i>b</i> = 7,68 <i>c</i> = 5,97	<i>a</i> = 11,27 <i>b</i> = 7,743 <i>c</i> = 5,956 ◊	-3,8	2,4	0,0
SrCeO <sub>3</sub>	<i>Pmcn</i>	<i>a</i> = 8,65 <i>b</i> = 6,06 <i>c</i> = 6,20	<i>a</i> = 8,583 <i>b</i> = 6,009 <i>c</i> = 6,148 †	-4,4	-2,9	-3,2
SrMoO <sub>3</sub>	<i>Pm<math>\bar{3}m</math></i>	<i>a</i> = 4,02	<i>a</i> = 3,975 (Logvinovich <i>et al.</i> , 2007)	-2,2	-0,2	0,2
SrMoO <sub>4</sub>	<i>I4<sub>1</sub>/a</i>	<i>a</i> = 5,43 <i>c</i> = 12,39	<i>a</i> = 5,380 <i>c</i> = 12,02 (Errandonea <i>et al.</i> , 2008)	-4,3	-0,3	2,1
SrRuO <sub>3</sub>	<i>Pbnm</i>	<i>a</i> = 5,62 <i>b</i> = 5,60 <i>c</i> = 7,91	<i>a</i> = 5,567 <i>b</i> = 5,530 <i>c</i> = 7,845 (Jones <i>et al.</i> , 1989)	-4,5	-1,8	-0,4
SrUO <sub>3</sub>	<i>Pnma</i>	<i>a</i> = 6,02 <i>b</i> = 6,08 <i>c</i> = 8,71	<i>a</i> = 6,030 <i>b</i> = 6,175 <i>c</i> = 8,630 (Pialoux et Touzelin, 1999)	-0,6	-0,6	-0,9
SrZrO <sub>3</sub>	<i>Pbnm</i>	<i>a</i> = 5,84 <i>b</i> = 5,86 <i>c</i> = 8,37	<i>a</i> = 5,791 <i>b</i> = 5,811 <i>c</i> = 8,196 (Calvacante <i>et al.</i> , 2007)	-2,2	-0,2	-0,5

**Oxydes binaires** : pour les conditions de température et de potentiels d'oxygène usuelles, les formes d'oxydes binaires les plus probables de Ba, Zr, Ce, Ru, Cs, Mo, Sr et Te sont BaO, ZrO<sub>2</sub>, Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, CeO<sub>2</sub>, Cs<sub>2</sub>O, Cs<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, Mo<sub>2</sub> et SrO, ainsi que TeO<sub>2</sub>, RuO<sub>2</sub>,

CsO<sub>2</sub> et MoO<sub>3</sub> pour les très forts potentiels d'oxygène. Nous avons cherché à évaluer la stabilité de ces précipités vis-à-vis des produits de fission et de l'oxygène dissous dans leurs sites préférentiels d'insertion. En prenant l'exemple de Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, nous avons considéré l'équation chimique suivante :

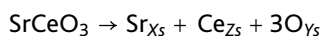


et l'énergie de solution de Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub> est évaluée au moyen de l'expression :

$$E_{\text{Ce}_2\text{O}_3}^{\text{sol}} = 2 E_{\text{Ce} \in Xs}^{\text{sol}} + 3 E_{\text{O} \in Ys}^{\text{sol}} - E_{\text{Ce}_2\text{O}_3}^{\text{F}} \quad (13)$$

où  $E_{\text{Ce}_2\text{O}_3}^{\text{F}}$  est l'énergie de formation de Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et  $E_{\text{Ce} \in Xs}^{\text{sol}}$  l'énergie de solution du cérium dans le dioxyde d'uranium dans son site préférentiel Xs. Le site d'insertion préférentiel pour l'oxygène Ys dépend de la déviation stoechiométrique du combustible. Dans notre étude, nous avons montré que l'oxygène se dissous préférentiellement dans la lacune d'oxygène pour UO<sub>2-x</sub> et UO<sub>2</sub>, et dans un site interstitiel pour UO<sub>2+x</sub> avec les énergies de solution respectives  $E_{\text{O} \in Ys}^{\text{sol}}$  : -5,6 eV, -3,6 eV et -1,6 eV. Les énergies de solution de l'ensemble des oxydes binaires étudiés sont regroupées dans le tableau 10. Les oxydes binaires de Ce, Sr et Te sont solubles dans UO<sub>2±x</sub>. Concernant le ruthénium, nous obtenons que RuO<sub>2</sub> est insoluble dans UO<sub>2</sub> et UO<sub>2+x</sub> et soluble dans UO<sub>2-x</sub>. Cependant, il est à noter que RuO<sub>2</sub> n'est thermodynamiquement stable qu'à de très forts potentiels d'oxygène.

**Composés ternaires :** nous avons étudié ensuite la stabilité de plusieurs composés ternaires vis-à-vis des atomes dissous dans le combustible. Les études expérimentales ont mis en évidence l'existence d'une phase perovskite (Ba, Sr, Cs) (Zr, U, Pu, Mo, RE)O<sub>3</sub> (Kleykamp, 1985 ; Kleykamp *et al.*, 1985 ; Sari *et al.*, 1979 ; Lucuta *et al.*, 1991). Il n'est pas possible de prendre en compte la complexité de la phase grise au travers de calculs *ab initio*. Aussi, nous n'avons considéré que des composés ternaires stoechiométriques composés des éléments Sr, Ba, Cs, Mo, Zr, Ce, U et O. Nous avons évalué les énergies de solubilité des composés BaCeO<sub>3</sub>, BaRuO<sub>3</sub>, BaMoO<sub>3,4</sub>, SrCeO<sub>3</sub>, SrMoO<sub>3,4</sub>, SrRuO<sub>3</sub>, SrUO<sub>3</sub> et SrZrO<sub>3</sub>. Pour ce faire, nous avons pris en compte des réactions chimiques de façon similaire à l'étude des composés binaires. Par exemple, pour le composé SrCeO<sub>3</sub>, l'équation chimique suivante a été considérée :

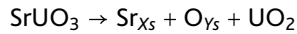


et l'énergie de solution de SrCeO<sub>3</sub> est évaluée selon :

$$E_{\text{SrCeO}_3}^{\text{sol}} = E_{\text{Sr} \in Xs}^{\text{sol}} + E_{\text{Ce} \in Zs}^{\text{sol}} + E_{\text{O} \in Ys}^{\text{sol}} - E_{\text{SrCeO}_3}^{\text{F}} \quad (14)$$



où  $E_{\text{SrCeO}_3}^{\mathcal{F}}$  est l'énergie de formation du cerate de strontium,  $E_{\text{Sr}\epsilon X}^{\text{sol}}$  l'énergie de solution du strontium dans son site d'accueil le plus favorable  $Xs$  dans  $\text{UO}_{2\pm x}$  (e.g.  $Xs$  = dilacune dans  $\text{UO}_{2-x}$ ),  $E_{\text{Ce}\epsilon Zs}^{\text{sol}}$  l'énergie de solution du cérium dans son site d'accueil le plus favorable  $Zs$  dans  $\text{UO}_{2\pm x}$  et  $E_{\text{O}\epsilon Ys}^{\text{sol}}$  l'énergie de solution de l'oxygène dans son site le plus favorable  $Ys$ . On peut noter que pour  $\text{SrUO}_3$ , nous avons pris en compte une formule  $\text{UO}_2$  via la réaction suivante :



Les énergies de solution de l'ensemble des composés ternaires sont regroupées dans le tableau 10. Les composés à base de cérium,  $\text{BaCeO}_3$  et  $\text{SrCeO}_3$  sont solubles dans  $\text{UO}_{2\pm x}$  ; ce qui est cohérent avec les études expérimentales qui montrent que la concentration des terres rares dans la phase grise ne devient notable que pour des forts taux de combustion du combustible Kleykamp (1985). On ne s'attend pas à ce que le ruthénium participe à la formation de la phase grise puisque les énergies de solution de  $\text{BaRuO}_3$  et  $\text{SrRuO}_3$  sont négatives. Les molybdates de strontium  $\text{SrMoO}_{3,4}$  et de baryum  $\text{BaMoO}_4$  ont une énergie de solution négative dans  $\text{UO}_{2-x}$  et positive dans  $\text{UO}_{2+x}$ . Par conséquent, on s'attend à ce que le baryum, le strontium et le molybdène participent à la phase grise dans le combustible sur-stoechiométrique. L'uranate et le zirconate de strontium ont des énergies de solution faiblement négatives ; ces composés ne devraient donc pas participer à la phase grise pour du combustible à faible taux de combustion.

## Conclusion

Nous avons étudié l'incorporation et la stabilité des produits de fission (He, Kr, Xe, I, Cs, Te, Ru, Ba, Mo, Sr, Ce et Ze) dans du dioxyde d'uranium au moyen de calculs *ab initio* utilisant la théorie de la fonctionnelle de la densité avec un terme de corrélation de Hubbard U (DFT-GGA+U). Ces calculs ont permis d'acquérir des informations sur le comportement de ces produits de fission dans le combustible. Nos calculs conduisent aux conclusions suivantes :

- le xénon et le krypton sont insoluble dans  $\text{UO}_{2\pm x}$  ;
- l'hélium est insoluble dans le dioxyde d'uranium sauf en régime sur-stoechiométrique et pour de « faibles » températures (e.g. pour  $T < 1\ 350\ \text{K}$  à  $x = 10^{-3}$ ) ;
- l'iode forme des précipités de  $\text{CsI}$  quel que soit l'écart à la stoechiométrie. Néanmoins, il faut garder en mémoire que  $\text{CsI}$  est instable thermodynamiquement pour les températures supérieures à  $1\ 550\ \text{K}$  sous 1 atm ;

- le tellure précipite dans les inclusions métalliques dans  $UO_{2-x}$ . Le tellure est soluble dans  $UO_{2+x}$  ;
- le ruthénium est insoluble dans  $UO_{2\pm x}$  et précipite soit dans des inclusions métalliques soit dans des phases oxydes,  $RuO_2$ , selon le potentiel d'oxygène. On ne s'attend pas à ce que le ruthénium participe de façon notable à la phase grise ;
- le strontium ne précipite pas sous forme  $SrO$  mais participe à la phase grise puisque nos calculs montrent que les molybdates de strontium sont insolubles dans  $UO_{2+x}$  ;
- le cérium est soluble dans  $UO_{2\pm x}$ . Cependant, le cérium peut participer à la formation de la phase grise pour des combustibles avec un taux de combustion élevé ;
- le césium et le molybdène sont peu solubles dans  $UO_{2\pm x}$ . Le césium devrait participer à la formation de bulles de gaz et d'uranate ou molybdate de césium. Le molybdène devrait précipiter sous forme d'inclusions métalliques dans  $UO_{2-x}$  et dans une phase oxyde dans  $UO_{2+x}$  ;
- le baryum et le zirconium sont solubles dans le dioxyde d'uranium.

### 3.2 *Relâchement des produits de fission hors du combustible*

La compréhension du comportement des produits de fission (PF) dans le combustible est essentielle pour l'évaluation des rejets radioactifs dans l'environnement en cas d'accident sévère sur un réacteur nucléaire. Depuis une vingtaine d'années, plusieurs études expérimentales ont été menées pour acquérir des connaissances sur le relâchement des produits de fissions ; études analytiques, tel le programme VERCORS (Vérification Expérimentale du Relâchement d'un COeur de Réacteur lors d'un accident Sévère (Pontillon *et al.*, 2010, Pontillon et Ducros, 2010a,b)), et études à grandes échelles, tel le programme PHEBUS PF (Schwarz *et al.*, 1999). Ces programmes ont permis une quantification des taux de relâchement des produits de fission dans de multiples conditions accidentelles et l'identification d'analogies de comportement permettant un regroupement schématique en quatre classes :

- les produits de fission volatils (Xe, Kr, I... ) : PF rapidement et fortement relâchés - l'étape limitante du relâchement est la diffusion atomique à l'intérieur des grains de combustible ;
- les produits de fission semi-volatils (Ba, Mo...) : PF qui peuvent conduire à de très forts relâchement suivant les conditions redox de la séquence accidentelle - le relâchement est principalement lié à la volatilisation des

composés formés aux joints de grains ; *iii*) les produits de fission peu volatils (Ce, La, Sr...) : PF peu relâchés (< 10 %) avant la fusion du combustible - l'étape limitante du relâchement est la volatilisation de composés chimiques formés dans le combustible ou la volatilisation du combustible lui-même ; *iv*) produits de fission « non » volatils (Zr...) PF très peu relâchés (< 1 %) même après fusion du combustible.

Afin de pouvoir extrapoler les résultats de ces études expérimentales à toutes les situations accidentelles (température, potentiel redox...), nous avons développé des modèles/corrélations pour évaluer le relâchement de plusieurs produits de fission importants (I, Cs, Ru, Ba, Mo, Ce, La, Sr et Eu). Nous avons rassemblé dans cette partie les études relatives au baryum et au molybdène qui sont représentatives des études menées sur l'ensemble des produits de fission. Ces deux produits de fission sont chimiquement actifs et ont de forts rendements de fission (Ba ~ 11 % et Mo ~ 25 %). Le baryum contribue largement à la puissance résiduelle du réacteur via la décroissance radioactive  $^{140}\text{Ba} \rightarrow ^{140}\text{La}$  (environ 20 % de la puissance résiduelle du cœur est due à  $^{140}\text{Ba}$  et  $^{140}\text{La}$  entre 1 et 8 jours après l'arrêt du réacteur à eau sous pression (REP). Par conséquent, l'évaluation du relâchement du baryum est essentielle pour déterminer le déroulement d'un scénario accidentel avec un possible percement de la cuve du réacteur provoquée par une trop grande quantité de chaleur accumulée dans le cœur. De plus, le baryum et le molybdène ont des effets sur la santé, particulièrement sur les poumons et les os (Alpert *et al.*, 1988). Au-delà de son fort rendement de fission et de ses effets radiologiques, le molybdène agit sur les cinétiques et taux de relâchement des autres produits de fission du fait du couple redox Mo/MoO<sub>2</sub> qui contrôle en partie le potentiel d'oxygène du combustible et du fait également des interactions chimiques avec les autres éléments (formation de composés avec notamment le césium, le strontium et le barium). Dans la première partie de ce chapitre, nous décrivons la méthodologie qui nous a permis de développer des corrélations de pressions partielles de Ba et Mo pour calculer leurs cinétiques et taux de relâchement. Dans la seconde partie, nous détaillons la validation de ces modèles que nous avons implémentés dans le code de calcul « accident grave » ASTEC (*Accident Source Term Evaluation Code* (Van-Dorsselaere *et al.*, 2009, 2010)). La base de qualification est composée de l'ensemble des essais VERCORS avec du combustible ayant un taux de combustion intermédiaire ainsi que les deux séries d'essais canadiens effectuées au *Chalk River Laboratory*, à savoir les séries HCE3 (combustible gainé) et MCE1 (combustible non gainé).

### 3.2.1 Modélisation du relâchement des produits de fission

#### Baryum

Si on s'intéresse à la forme thermodynamiquement stable du baryum dans le combustible nucléaire, on peut utiliser le diagramme d'Ellingham (voir figure 44). On note que la phase oxyde BaO est plus stable que la phase métallique pour du combustible sur-stoechiométrique. En outre, le baryum peut s'associer avec d'autres éléments (tels Mo, Zr ou U pour former des phases séparées). Le baryum a une faible solubilité dans le combustible (Sari *et al.*, 1979 ; Kleykamp, 1993). Plusieurs précipités contenant du baryum ont été observés expérimentalement : l'oxyde de baryum BaO (Walker *et al.*, 1990 ; Hocking *et al.*, 1994 ; Sato *et al.*, 1999a), le zirconate de baryum BaZrO<sub>3</sub> (Ray *et al.*, 1992 ; Sato *et al.*, 1999a), l'uranate de baryum BaUO<sub>3</sub> (Sari *et al.*, 1979 ; Kleykamp, 1993) et une phase perovskite appelée « phase grise » qui peut s'écrire (Ba,Sr,Cs)(Zr,U,Pu,Mo,RE)O<sub>3</sub> (Sari *et al.*, 1979 ; Kleykamp *et al.*, 1985 ;

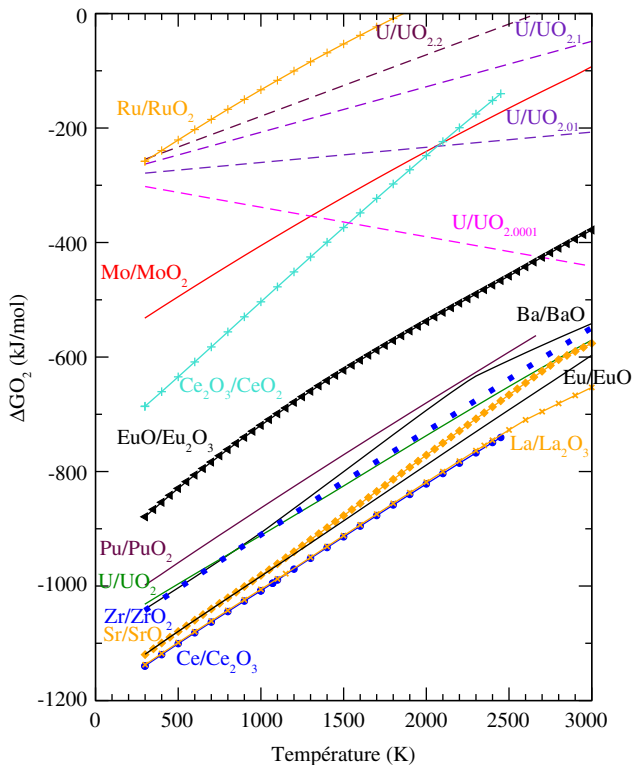


Figure 44. Diagramme d'Ellingham.

Kleykamp, 1985 ; Lucuta *et al.*, 1991). Cependant, aucun précipité de baryum n'a été observé dans un combustible  $\text{UO}_2$  de 50 GWj/tM (Thomas *et al.*, 1992). Il semble que le baryum précipite soit dans du combustible à fort taux de combustion soit dans les combustibles soumis à de très hautes températures (supérieures aux températures usuelles de fonctionnement des réacteurs à eau sous pression). Grimes et Catlow (1991) estiment, par des calculs utilisant des potentiels empiriques, que  $\text{BaO}$  est soluble dans  $\text{UO}_{2+x}$ . D'autre part, nous avons mis en évidence au moyen de calculs *ab initio* (Brillant et Pasturel, 2008) que le baryum est soluble dans  $\text{UO}_{2+x}$ . Il apparaît au travers de ces études théoriques que la solubilité de  $\text{BaO}$  dans le dioxyde d'uranium augmente avec le potentiel d'oxygène.

**Pression partielle de baryum** : dans un premier temps, nous avons évalué la distribution du baryum dans le dioxyde d'uranium pour une concentration de 0,4 at% au moyen du code GEMINIZ et de la base de donnée MEPHISTA (Barrachin *et al.*, 2006). Pour les températures inférieures à 1700 K, le baryum se situe principalement dans la phase perovskite  $\text{BaUO}_3$  (voir figure 45). Au-delà de cette température, le baryum est thermodynamiquement stable en phase dissoute dans le combustible solide ou liquide. En situation accidentelle pour du combustible avec un taux de combustion intermédiaire ou faible, le baryum est dans la matrice combustible, diffuse aux joints de grains lorsque la température augmente, et peut alors former des phases séparées. Néanmoins, le zirconium diffuse moins rapidement que le baryum (Sato *et al.*, 1999a) et n'est probablement pas présent aux joints de grains dans les premiers temps de l'accident. Par conséquent, les phases séparées sont l'oxyde de baryum et les uranates de baryum tant que le zirconium n'a pas atteint les joints de grains. Étant donnée la complexité, et le manque de données expérimentales, concernant les phases solides du système (Ba, Zr, Mo, U, O), nous avons choisi de simplifier le problème et de n'étudier dans la suite que les phases stoechiométriques suivantes :  $\text{BaO}$ ,  $\text{BaMoO}_3$ ,  $\text{BaMoO}_4$ ,  $\text{BaUO}_3$  et  $\text{BaZrO}_3$ .

Les pressions partielles de baryum au-dessus de  $\text{Ba}_{(s)}/\text{BaO}_{(s)}$  sont tracées à la figure 46 pour un potentiel d'oxygène du combustible de  $-100$  kJ/mol et  $-600$  kJ/mol. On observe que les pressions partielles de  $\text{Ba}_2\text{O}_{(g)}$  et  $\text{BaH}_{(g)}$  sont négligeables au vu des autres pressions partielles. Quatre espèces sont donc à considérer :  $\text{Ba}_{(g)}$  (pour les très faibles  $\Delta G_{\text{O}_2}$ ),  $\text{Ba}(\text{OH})_{2(g)}$  (pour les forts  $\Delta G_{\text{O}_2}$  et  $T \lesssim 2000$  K),  $\text{BaOH}_{(g)}$  et  $\text{BaO}_{(g)}$  (pour les forts  $\Delta G_{\text{O}_2}$  et  $T \gtrsim 2000$  K). Par conséquent, il apparaît que la présence d'hydrogène dans la phase gazeuse influe sur la pression partielle de baryum. Afin de quantifier cet effet, on a tracé à la figure 47 l'évolution de la somme des

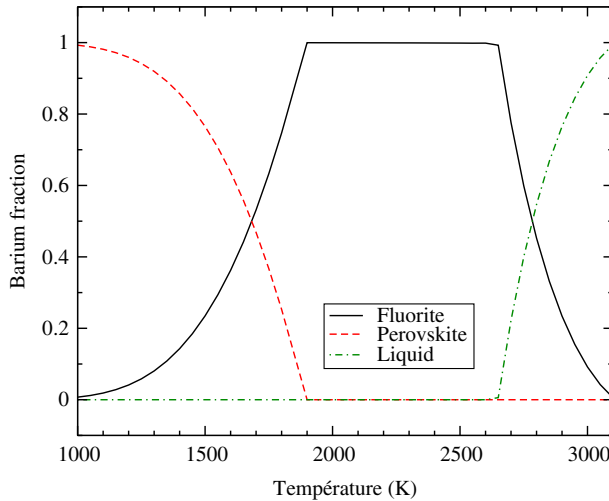


Figure 45. Distribution du barium entre les phases : fluorite ( $UO_2$ ), perovskite ( $BaUO_3$ ), et  $UO_2$  liquide.

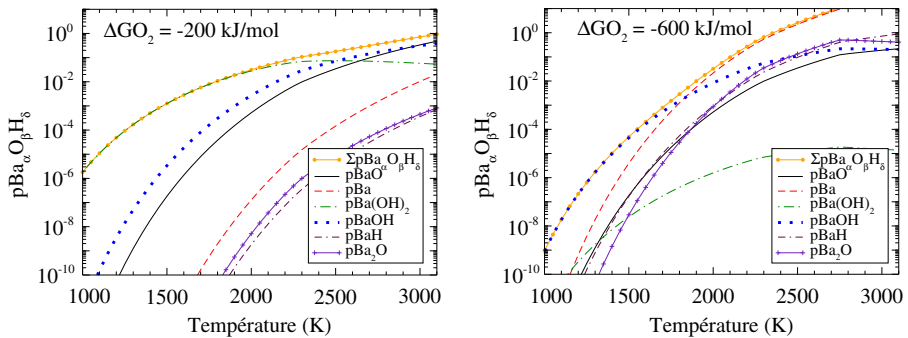


Figure 46. Impact du potentiel d'oxygène sur la pression partielle de barium au-dessus de  $Ba_{(s)}/BaO_{(s)}$  dans le cadre d'un mélange gazeux ( $H_2, H_2O, O_2$ ).

pressions partielles des espèces à base de baryum avec et sans prise en compte des espèces hydrogénées. On observe que l'absence d'hydrogène modifie sensiblement la pression partielle de baryum pour les « faibles » potentiels d'oxygène ( $\Delta G_{O_2} \lesssim -500$  kJ/mol) et pour les « faibles » températures ( $T \lesssim 2000$  K). Par exemple, à 1800 K et pour  $\Delta G_{O_2} = -300$  kJ/mol, la somme des pressions partielles de baryum est réduite de deux ordres de grandeur en cas d'absence d'hydrogène ( $\Sigma pBa_{\alpha}O_{\beta}H_{\delta} \approx 5,7 \times 10^{-3}$  ;  $\Sigma pBa_{\alpha}O_{\beta} \approx 3,2 \times 10^{-5}$ ). On peut noter que le baryum a un comportement particulier lors des essais avec du combustible dégainé tels les essais

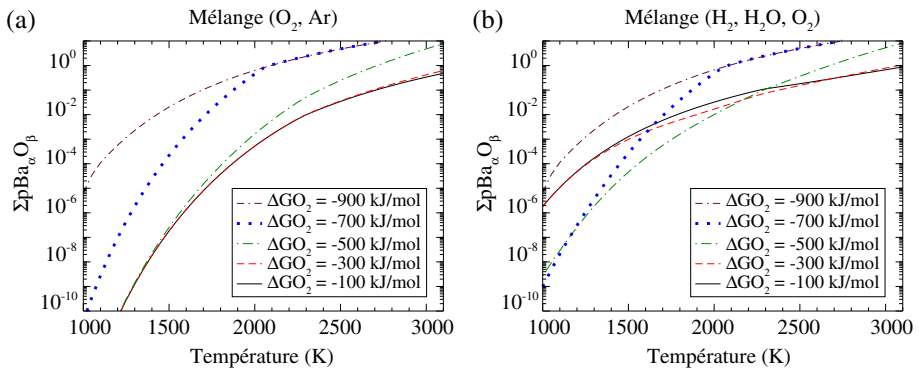


Figure 47. Impact de la présence d'hydrogène dans la phase gaz sur la pression partielle de barium au-dessus de  $Ba_{(s)}/BaO_{(s)}$ .

VERCORS RT3 (lit de débris  $UO_2$ ) et RT4 (lit de débris  $UO_2/ZrO_2$ ) ainsi que l'essai PHEBUS FPT4 (lit de débris  $UO_2/ZrO_2$ ). En effet, lors de ces essais, le relâchement du baryum débute pour des températures relativement faibles ( $T \sim 1800$  K) en comparaison des autres essais VERCORS et PHEBUS ( $T \gtrsim 2000$  K). De plus, la cinétique de relâchement est très rapide dès le début du relâchement. Il apparaît donc un comportement particulier du baryum pour les configurations du combustible en lit de débris. Cela peut s'expliquer au moyen des résultats précédents. En effet, en configuration lit de débris, l'accès gaz/combustible est beaucoup plus important et permet un contact direct hydrogène/combustible et donc hydrogène/baryum. Par conséquent, on peut supposer que les espèces gazeuses  $Ba(OH)_{2(g)}$ ,  $BaOH_{(g)}$  et  $BaH_{(g)}$  ne contribuent au relâchement du baryum que pour la configuration lit de débris. En outre, on peut noter que pour du combustible gainé, le baryum peut être piégé sur la gaine comme observé sur la tomographie- $\gamma$  post essai de l'échantillon VERCORS V5.

On observe, à la figure 48, que la pression partielle de baryum au-dessus de  $BaMoO_{3,4(s)}$  est dominée par le composé  $BaMoO_{4(g)}$ . Les pressions partielles de baryum calculées au-dessus de  $BaMoO_{3,4(s)}$ ,  $BaUO_3$  et  $BaZrO_3$  sont reportées à la figure 49. On note que la pression partielle de baryum au-dessus d'une phase perovskite est réduite en comparaison avec l'oxyde de baryum solide hormis en présence de molybdène (formation de  $BaMoO_{4(g)}$ ). Cependant, cette observation doit être modérée si l'on considère que  $BaO_{(s)}$  est sous forme dissoute dans le combustible tandis que la phase perovskite est sous forme de précipités aux joints de grains. En effet, dans ce cas, la pression partielle de baryum au-dessus de  $BaO$  dissous est fortement réduite (de l'ordre de la concentration de Ba dans  $UO_2$ ).

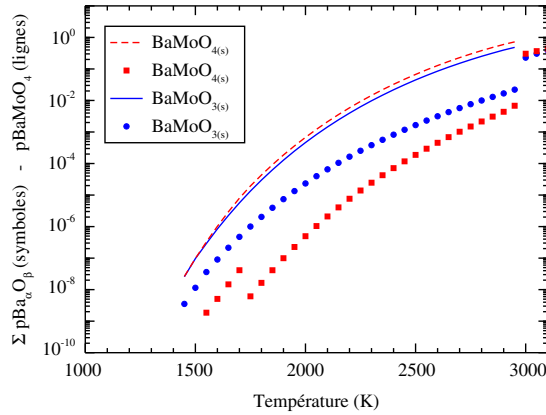


Figure 48. Pression partielle de barium au-dessus de  $BaMoO_{3(s)}$  et  $BaMoO_{4(s)}$  sous mélange gazeux ( $Ar, O_2$ ).

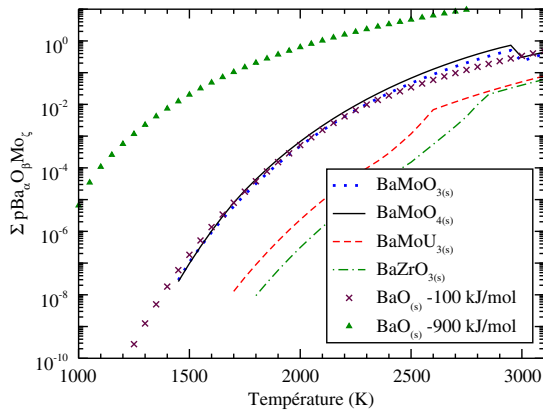


Figure 49. Pression partielle de barium au-dessus de  $BaO_{(s)}$ ,  $BaUO_{3(s)}$ ,  $BaMoO_{3,4(s)}$  et  $BaZrO_{3(s)}$  sous mélange gazeux ( $Ar, O_2$ ).

**Corrélation pour la pression partielle de baryum :** pour du combustible à taux de combustion intermédiaire, on fait l'hypothèse que le baryum se situe dans le combustible sous forme dissoute. On peut évaluer la pression partielle de baryum par des calculs d'équilibres thermodynamiques. Dans un premier temps, on considère que le baryum dissous est soit sous forme atomique Ba soit sous forme oxyde BaO. La limite entre ces deux formes peut être évaluée au moyen de la réaction chimique :



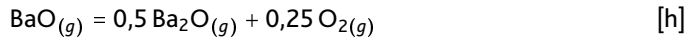
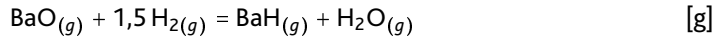
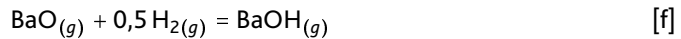
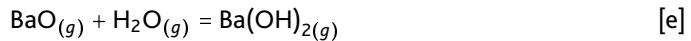
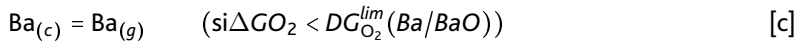
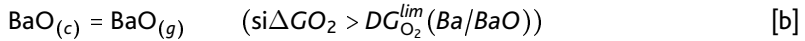
dont l'enthalpie libre de réaction peut être estimée avec la base de donnée COACH. Ainsi, le potentiel d'oxygène limite pour le couple Ba/BaO peut être évalué au moyen



de la corrélation suivante :

$$\Delta G_{O_2}^{lim}(Ba/BaO) = -1,08 \times 10^6 + 1,22 \times 10^2 T + 6,85 \times 10^{-2} T^2 - 1,64 \times 10^{-5} T^3 \quad (15)$$

Dans le système (Ba, O, H), on trouve les six espèces gazeuses suivantes :  $Ba_{(g)}$ ,  $BaH_{(g)}$ ,  $BaO_{(g)}$ ,  $Ba_2O_{(g)}$ ,  $BaOH_{(g)}$  et  $Ba(OH)_{2(g)}$ . Les pressions partielles de ces espèces ont été évaluées au moyen des valeurs extraites de la base de données COACH pour les réactions suivantes :



Les enthalpies libres de réaction peuvent être évaluées au moyen de la corrélation ci-dessous et des coefficients rassemblés au tableau 11.

$$\Delta G_r = A + B T + C T^2 \quad (16)$$

Au vu du paragraphe précédent, on peut estimer la somme des pressions partielles de baryum au-dessus de  $Ba_{(s)}/BaO_{(s)}$  en présence et en absence d'hydrogène au travers de la corrélation suivante :

■ en présence d'hydrogène :

— si  $\Delta G_{O_2} < \Delta G_{O_2}^{lim}(Ba/BaO)$

$$pBa^{tot} = K_c + \frac{K_c \cdot (pO_2)^{0,5}}{K_d} \cdot \left[ 1 + K_e \cdot pH_2O + K_f \cdot (pH_2)^{0,5} \right] \quad (17)$$

— sinon

$$pBa^{tot} = K_b \left[ 1 + K_d \cdot (pO_2)^{-0,5} + K_e \cdot pH_2O + K_f \cdot (pH_2)^{0,5} \right] \quad (18)$$

▪ En absence d'hydrogène :

— si  $\Delta G_{O_2} < \Delta G_{O_2}^{lim}(\text{Ba/BaO})$

$$pBa^{tot} = K_c \left[ 1 + \frac{(pO_2)^{0,5}}{K_d} \right] \quad (19)$$

— sinon

$$pBa^{tot} = K_b \left[ 1 + K_d \cdot (pO_2)^{-0,5} \right] \quad (20)$$

avec  $\Delta G_{O_2}^{lim}(\text{Ba/BaO})$  estimé au moyen de la corrélation (15),  $K_i = \exp(-\Delta G_i/RT)$  et  $\Delta G_i$  calculés au moyen des données du tableau 11. Afin d'estimer la pression partielle de baryum lorsque ce dernier est sous forme dissoute dans du dioxyde d'uranium, il est nécessaire de prendre en compte l'activité du baryum dissous. Dans le cas des faibles concentrations, l'activité peut être assimilée à la concentration de l'élément considéré (ici  $X_{Ba}$ ). Dans les situations où cette assimilation n'est pas vérifiée, on utilise le pré-facteur  $\gamma_{Ba}$  ou coefficient d'activité qui prend en compte l'écart par rapport au mélange idéal. La pression partielle de baryum lorsque celui-ci est dissous dans le dioxyde d'uranium peut donc être évaluée au moyen de l'expression suivante :

$$pBa = \gamma_{Ba} \cdot X_{Ba} \cdot pBa^{tot} \quad (21)$$

avec  $X_{Ba}$  la concentration en baryum dissous,  $pBa^{tot}$  la somme des pressions partielles des composés volatils de baryum estimée à partir de la corrélation précédente et avec  $\gamma_{Ba} = 1$  en première approximation.

Tableau 11. Enthalpies libres de réactions pour le système (Ba, O, H). ( $\Delta G_r = A + BT + CT^2$ ).

Réaction	A (J.mol <sup>-1</sup> )	B (J.mol <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	C (J.mol <sup>-1</sup> .K <sup>-2</sup> )
b	4,52 × 10 <sup>5</sup>	-2,06 × 10 <sup>2</sup>	2,13 × 10 <sup>-2</sup>
c	1,71 × 10 <sup>5</sup>	-81,2	-
d	3,35 × 10 <sup>5</sup>	-49,0	-
e	-2,35 × 10 <sup>5</sup>	82,9	-
f	-1,36 × 10 <sup>5</sup>	44,6	-
g	8,34 × 10 <sup>4</sup>	35,5	-
h	1,04 × 10 <sup>4</sup>	36,2	-

## Molybdène

Dans le combustible, le molybdène a été observé sous forme atomique ou d'oxyde dissous dans la matrice, sous forme métallique dans la phase  $\epsilon$ -Ru et occasionnellement dans la phase grise (Tourasse *et al.*, 1992 ; Sato *et al.*, 1999b ; Martin *et al.*,

2004 ; Maeda *et al.*, 2005). La position du couple oxydo-réducteur Mo/MoO<sub>2</sub> dans le diagramme d'Ellingham montre le rôle tampon que peut jouer le molybdène lors de l'oxydation du dioxyde d'uranium (Matzke, 1995 ; Park *et al.*, 1997 ; Serrano *et al.*, 2001). Selon les résultats de nos calculs *ab initio* (Brillant *et al.*, 2009), la solubilité du molybdène dans le dioxyde d'uranium est faible. Le molybdate de césium Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> semble participer à la redistribution du molybdène dans le combustible et au relâchement du molybdène hors du combustible (Sato *et al.*, 1997, 1999b ; Maeda *et al.*, 2005 ; McFarlane *et al.*, 1996). Du fait des très faibles quantités de molybdène observées dans la phase grise, cette dernière n'est pas prise en compte dans la suite pour l'étude du relâchement du molybdène. Par conséquent, la volatilité du molybdène est évaluée à partir de Mo<sub>(s)</sub> ou MoO<sub>2(s)</sub> et des espèces gazeuses Mo<sub>(g)</sub>, MoO<sub>(g)</sub>, MoO<sub>2(g)</sub>, MoO<sub>3(g)</sub>, les polymères de MoO<sub>3(g)</sub> ainsi que Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4(g)</sub>.

Les pressions partielles de ces espèces gazeuse sont tracées à la figure 50 pour une température de 2 000 K. On note que l'espèce MoO<sub>3(g)</sub> ainsi que ses polymères contribuent à la majeure partie de la pression totale de molybdène pour les potentiels d'oxygène supérieurs à -330 kJ/mol à  $T = 2\,000\text{ K}$  ( $p_{\text{O}_2} = 2,4 \times 10^{-9}$ ). Le molybdate de césium gazeux, supposé ici se former à partir de césium gazeux et de molybdène solide, a également un rôle important et ce même pour des pressions partielles de césium très faibles (voir figure 51). La pression partielle de molybdate de césium augmente lorsque la température diminue mais est limitée par sa pression de saturation en-dessous de 1 700 à 1 400 K selon le potentiel d'oxygène (voir figure 51).

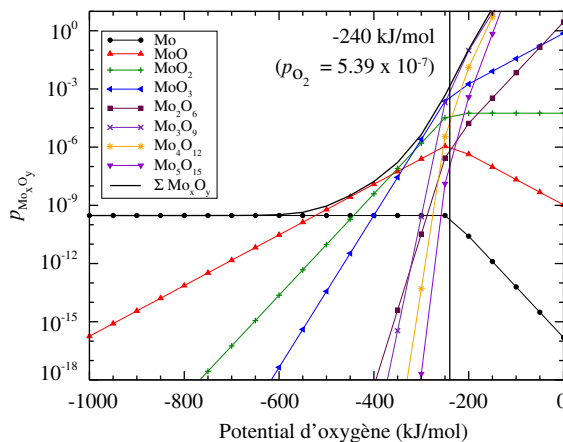


Figure 50. Pression partielle de molybdène au-dessus de Mo<sub>(s)</sub>/MoO<sub>2(s)</sub> à  $T = 2\,000\text{ K}$ .

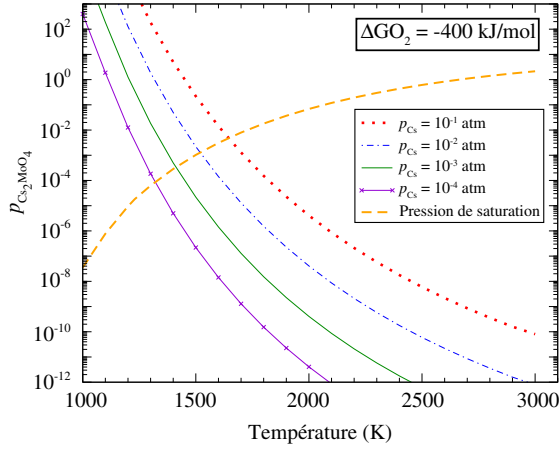
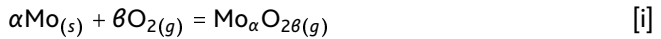


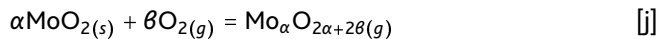
Figure 51. Impact de la pression partielle de césium sur la pression partielle de molybdate de césium à  $\Delta G_{O_2} = -400$  kJ/mol et pour  $T \in [1\ 000; 3\ 000]$  K (i.e.,  $p_{O_2} \in [1,27 \times 10^{-21}; 1,08 \times 10^{-7}]$ ).

**Corrélation pour la pression partielle du molybdène :** le molybdène est un produit de fission semi-volatile. L'étape limitante du relâchement est donc le transfert de masse en phase gazeuse. La modélisation du relâchement du molybdène consiste alors à évaluer la pression partielle de molybdène au-dessus du combustible. Nous avons donc développé une corrélation pour calculer la pression partielle de molybdène en fonction de la température, du potentiel d'oxygène du combustible et de la pression partielle de césium.

• **En l'absence de vapeur de césium.** Le relâchement du molybdène provient de la volatilisation de  $Mo_{(s)}$  ou  $MoO_{2(s)}$  (suivant le potentiel d'oxygène du combustible) sous forme d'oxydes suivant les réactions suivantes :



$$K_{\alpha\beta} = \frac{p_{Mo_{\alpha} O_{2\beta}}}{(p_{O_2})^{\beta}} \quad (22)$$



$$K_{\alpha\beta} = \frac{p_{Mo_{\alpha} O_{2\alpha+2\beta}}}{(p_{O_2})^{\beta}} \quad (23)$$

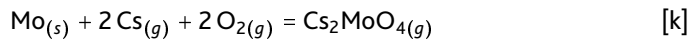
où les constantes de réaction  $K_{\alpha\beta}$  sont modélisées selon  $K_{\alpha\beta} = \exp(A_0 + A_1/T)$  avec les valeurs des constantes  $A_0$  et  $A_1$  données dans le tableau 12. La limite de potentiel d'oxygène entre  $\text{Mo}_{(s)}$  et  $\text{MoO}_{2(s)}$  est calculée au moyen de la corrélation (24) qui permet de choisir laquelle des corrélations (22) ou (23) doit être prise en compte.

$$\Delta G_{\text{Mo}/\text{MoO}_2} = -5,88 \times 10^5 + 192 * T - 9,05 \times 10^{-3} * T^2 \quad (24)$$

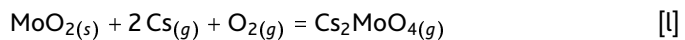
Tableau 12. Coefficients de la loi de modélisation des constantes des réactions de volatilisation de  $\text{Mo}_{(s)}$  et  $\text{MoO}_{2(s)}$  :  $K_{\alpha\beta} = \exp(A_0 + A_1/T)$ .

	$\text{Mo}_{(s)}$		$\text{MoO}_{2(s)}$	
	$A_0$	$A_1$	$A_0$	$A_1$
$\text{Mo}_{(g)}$	17,5	$-7,88 \times 10^4$	37,85	$-1,49 \times 10^5$
$\text{MoO}_{(g)}$	12,3	$-3,70 \times 10^4$	32,7	$-1,07 \times 10^5$
$\text{MoO}_2(g)$	3,93	$1,54 \times 10^3$	24,3	$-6,82 \times 10^4$
$\text{MoO}_3(g)$	-6,78	$4,19 \times 10^4$	13,6	$-2,79 \times 10^4$
$\text{Mo}_2\text{O}_6(g)$	-29,0	$1,17 \times 10^5$	12,8	$-2,27 \times 10^5$
$\text{Mo}_3\text{O}_9(g)$	-53,6	$2,24 \times 10^5$	9,20	$1,41 \times 10^4$
$\text{Mo}_4\text{O}_{12}(g)$	-76,6	$3,07 \times 10^5$	7,13	$2,64 \times 10^4$
$\text{Mo}_5\text{O}_{15}(g)$	-101	$3,88 \times 10^5$	3,88	$3,80 \times 10^4$

• **En présence de vapeur de césium.** Dans ce cadre, le molybdène est relâché principalement sous forme de molybdate de césium selon :



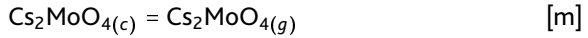
$$K_1 = \frac{p_{\text{Cs}_2\text{MoO}_4}}{(p_{\text{Cs}})^2 (p_{\text{O}_2})^2} = \exp\left(-41,2 + \frac{1,63 \times 10^5}{T}\right) \quad (25)$$



$$K_2 = \frac{p_{\text{Cs}_2\text{MoO}_4}}{(p_{\text{Cs}})^2 p_{\text{O}_2}} = \exp\left(-20,8 + \frac{9,31 \times 10^4}{T}\right) \quad (26)$$

On peut noter que la pression partielle de molybdate de césium se trouve limitée dans de nombreuses conditions par la pression de vapeur saturante. Cette dernière

correspond à la réaction suivante :



$$p\text{Cs}_2\text{MoO}_{4(sat)} = \exp\left(15,6 - \frac{3,52 \times 10^4}{T}\right) \quad (27)$$

De même que précédemment, la limite de potentiel d'oxygène entre  $\text{Mo}_{(s)}$  et  $\text{MoO}_{2(s)}$  peut être calculée au moyen de la corrélation (24).

• **Synthèse.** L'activité du molybdène dans le combustible est estimée par sa concentration  $X_{\text{Mo}}$ . La pression partielle de molybdène au-dessus du combustible est donc calculée au moyen de l'expression suivante ( $p\text{Mo}^{tot}$  est la somme des contributions de tous les composés volatils de molybdène) :

$$p\text{Mo}^{tot} = X_{\text{Mo}} \left[ \sum_{\alpha, \beta} p\text{Mo}_{\alpha}\text{O}_{2\beta} + \max(p\text{Cs}_2\text{MoO}_4, p\text{Cs}_2\text{MoO}_{4(sat)}) \right] \quad (28)$$

### 3.2.2 Validation des modèles sur les données expérimentales

Le comportement de plusieurs produits de fission a été étudié et une modélisation a pu être retenue pour le molybdène, le baryum, le ruthénium ainsi que pour quatre produits de fission moins volatils : le cérium, le lanthane, le strontium et l'euporium. Ces modèles de relâchement ont été implémentés dans le module ELSA du code d'accident ASTEC. La base de validation est notamment composée de l'ensemble des essais VERCORS avec du combustible ayant un taux de combustion intermédiaire ainsi que de plusieurs séries d'essais canadiens effectuées au *Chalk River Laboratory*, dont les séries HCE3 (combustible gainé) et MCE1 (combustible non gainé). Nous présentons dans cette partie la validation du code ASTEC/ELSA sur les essais VERCORS qui est représentative de l'ensemble de la base de validation.

**Essais VERCORS :** l'objectif du programme VERCORS était d'établir une base de résultats expérimentaux relative au relâchement des produits de fission hors d'un crayon combustible soumis à des conditions représentatives de celles rencontrées lors d'un accident sévère de REP, c'est-à-dire un accident au cours duquel le combustible est significativement dégradé par une fusion plus ou moins importante du cœur du réacteur. Ce programme expérimental est composé d'un ensemble d'essais analytiques,

ou à effet séparés, réalisés sur des échantillons de combustible REP irradiés, d'une trentaine de grammes. Ce programme a permis de tester différents types de combustibles (combustibles  $\text{UO}_2$  taux de combustion intermédiaires et élevés, combustibles MOX) ainsi que plusieurs natures de gaz porteurs ayant des propriétés oxydo-réductrices différentes (vapeur d'eau pure, hydrogène pur, mélange  $\text{H}_2\text{O}/\text{H}_2$ , air). Les principales conditions expérimentales de ces essais sont regroupées dans le tableau 13. Pour la majeure partie des essais, l'échantillon combustible consiste en un morceau de crayon formé de 3 pastilles irradiées et 2 demies pastilles vierges dans une gaine de Zircaloy ou d'alliage M5. Les relâchements des produits de fission à partir d'un lit de débris ont été mesurés lors des deux essais RT3 et RT4. L'essai RT4 s'est déroulé sous atmosphère oxydante avec un lit de débris composé d'un mélange de fragments  $\text{UO}_2$  et  $\text{ZrO}_2$ , tandis que l'essai RT3 s'est déroulé sous atmosphère mixte plutôt réductrice avec des débris de combustible seul. Les échantillons combustibles sont ré-irradiés juste avant l'essai (exceptions faites des deux essais RT1 et RT4) afin de recréer au sein du combustible les produits de fission de période radioactive courte et ainsi pouvoir suivre leur relâchement par spectrométrie gamma en ligne. Au cours de chaque essai, un plateau de température a été effectué (autour de 1 500-1 700 K) afin d'obtenir une oxydation complète de la gaine et d'éviter une fusion précoce de l'échantillon par la formation d'un eutectique  $\text{Zr}/\text{UO}_2$ .

**Validation du code ASTEC/ELSA :** les taux de relâchements de fin d'essai mesurés expérimentalement et calculés avec ASTEC/ELSA sont rassemblés dans le tableau 13 pour les expériences VERCORS avec du combustible  $\text{UO}_2$  avec un taux de combustion intermédiaire. On retrouve au travers de ces taux de relâchement les groupes de produits de fission discutés ci-dessus. Le césium a un comportement volatil et est presque totalement relâché à la fin des essais VERCORS. Le baryum et le molybdène sont des produits de fission semi-volatils avec des fractions relâchées comprises entre 7 % et 100 % suivant les essais. On note que le baryum est relâché plus fortement en conditions réductrices et le molybdène en conditions oxydantes. Le ruthénium est peu relâché (moins de 10 %) sous conditions réductrice et peu oxydante. En revanche, le ruthénium est fortement et rapidement relâché sous condition fortement oxydante (65 % pour l'essai HT2). On peut noter ici qu'un fort relâchement de ruthénium peut être mesuré sans qu'il y ait eu contact du combustible avec de l'air. Enfin, le cérium, le lanthane, l'euprotium et le strontium sont des produits de fission peu volatils avec des fractions relâchées en fin d'essai inférieures à 8 % pour du combustible gainé.

Tableau 13. Essais VERCORS : conditions expérimentales et taux de relâchements en fin d'essais mesurés expérimentalement et calculés avec ASTEC/ELSA.

VERCORS	V4	V5	HT1	HT2	HT3	RT1	RT3	RT4
Combustible REP	pastilles UO <sub>2</sub>	pastilles UO <sub>2</sub>	pastilles UO <sub>2</sub>	pastilles UO <sub>2</sub>	pastilles UO <sub>2</sub>	pastilles UO <sub>2</sub>	débris UO <sub>2</sub>	débris UO <sub>2</sub> /ZrO <sub>2</sub>
Taux de combustion (GWD/tU)	38,3	38,3	49,4	49,3	47,7	47,3	39,0	37,6
re-irradiation	oui	oui	oui	oui	oui	non	oui	non
T <sub>max</sub> (K)	2570	2570	2900	2420	2680	2570	2970	2520
atmosphère	-	25	-	25	-	25	1,25	14,6
de fin d'essai	0,2	-	0,2	-	0,2	0,5	1,25	0,4
(mg/s)	8	-	8	-	8	-	2	-
Mesures expérimentales								
Taux de relâchement final (%)								
Cs	93	93	100	100	100	100	100	96
Ba	80	55	49	38	85		94	> 50
Mo	47	92	49	100	33	70	33	100
Ru	6	6	8	65	6	9	2	8
Ce	3	< 3	5	1	1	3	1	3
La	< 3	< 3	8	6	13	-	13	-
Sr	< 6	< 6	< 5				< 1	1
Eu	< 5	< 3	9	1	10	1	4	1
Calculs avec ASTEC/ELSA								
Taux de relâchement final (%)								
Cs	79	95	100	100	89	85	100	86
Ba	72	60	89	40	85	67	100	84
Mo	29	95	17	100	47	85	20	83
Ru	0,6	4,2	0,1	76	0,9	1,5	0,4	0,4
Ce	2,3	6,3	4,1	7,8	4,1	4,4	17,4	0,9
La	1,3	0,7	2,9	0,4	2,5	0,1	14,6	0,0
Sr	0,5	0,7	1,2	0,4	1,0	0,2	5,4	0,0
Eu	1,8	0,7	2,0	0,4	3,7	0,1	8,7	0,0



Le relâchement du césium démarre un peu tard dans les calculs en comparaison avec les mesures expérimentales (voir figure 52 pour les essais V4 et V5 et la figure 53 pour les essais HT1 et HT2). La première étape du relâchement pendant le plateau d'oxydation aux environs de 1 600 K n'est pas totalement reproduit par les calculs. Cependant, l'aspect général de la cinétique de relâchement est reproduit par les calculs et les taux de relâchement du césium en fin d'essai sont en bon accord avec l'expérience (voir tableau 13).

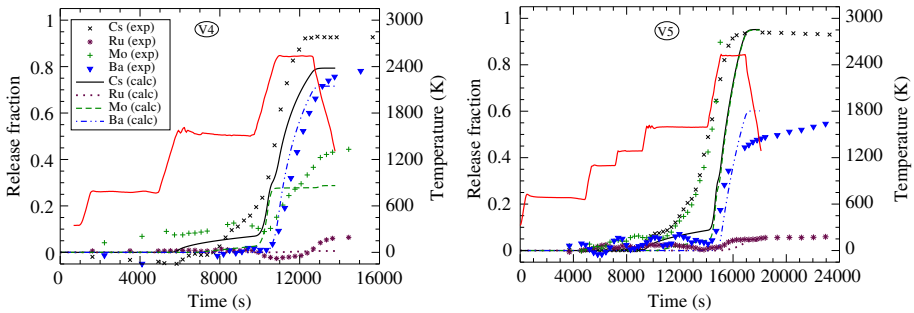


Figure 52. Cinétique de relâchement des produits de fission lors des essais VERCORS V4 et V5.

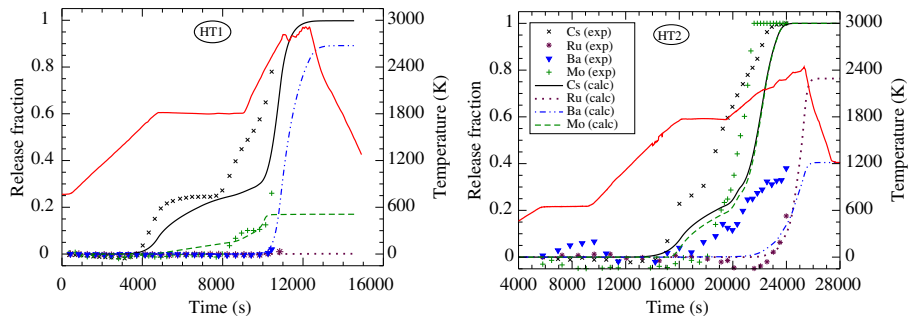


Figure 53. Cinétique de relâchement des produits de fission lors des essais VERCORS HT1 et HT2.

Concernant le baryum et le molybdène, les cinétiques de relâchement correspondent globalement bien avec les mesures et ce pour les conditions oxydantes et réductrices. Par exemple, les cinétiques de relâchement sont tracées à la figure 52 pour les essais VERCORS V4, sous atmosphère réductrice après le plateau d'oxydation, et VERCORS V5, sous atmosphère oxydante pendant l'ensemble de l'essai. Le relâchement du baryum est bien reproduit par les calculs pour les deux essais, même si le taux de relâchement final est légèrement surestimé pour l'essai V5 (60 % calc. et 55 % exp.) et sous-estimé pour l'essai V4 (72 % calc. et 80 % exp.). La cinétique de relâchement du

molybdène calculée avec ASTEC est environ 1 400 s en retard par rapport aux mesures expérimentales de l'essai VERCORS V5 ; cela peut être dû à une sous-estimation de l'oxydation du combustible. Les différences entre les calculs et les expériences pour le relâchement du molybdène lors de l'essai VERCORS V4 peut également être imputé au calcul de la cinétique d'oxydation du combustible. Le calcul des taux de relâchement en fin d'essai est globalement satisfaisant même si quelques différences avec les mesures expérimentales demeurent sur certains essais (voir tableau 13). Les différences les plus notables sont obtenues pour l'essai fortement réducteur VERCORS HT1 : 49 % pour Mo et 49 % pour Ba mesurés expérimentalement et 17 % pour Mo et 89 % pour Ba calculé avec ASTEC. Pour les autres essais, les différences sont relativement faibles. De plus, l'influence des conditions oxydo-réductrices de l'atmosphère sur les taux de relâchement est bien reproduites par ASTEC. Enfin, on peut noter que les relâchement de Ba et Mo sont bien estimés à la fois pour du combustible gainé et pour un lit de débris comme dans les essais RT3 et RT4.

Les taux de relâchement calculés pour le strontium (de 0,2 à 1,2 %) sont cohérents avec les mesures expérimentales. Le cérium est un peu plus relâché (de 2,3 à 7,8 %). On note une bonne estimation des taux de relâchement du cérium pour les tests avec une atmosphère réductrice et une surestimation pour les tests avec une atmosphère oxydante : 6,3 % pour VERCORS V5 (exp. < 3) et 7,8 % pour HT2 (exp. 1 %). D'un point de vue sûreté, ces surestimations sont les bienvenues quand il s'agit d'obtenir des valeurs conservatives des rejets de radioactivité. Cependant, la tendance opposée est obtenue pour le lanthane et l'euprium. En effet, on note une sous-estimation du taux de relâchement de ces deux produits de fission, particulièrement pour les conditions réductrices. Par exemple, on obtient une erreur de presque 10 % pour les deux essais VERCORS les plus réducteurs : HT1  $\mathcal{F}_{La} = 2,9\%$  et  $\mathcal{F}_{Eu} = 2,0\%$  (exp. 8 % et 9 %) ; HT3  $\mathcal{F}_{La} = 2,5\%$  et  $\mathcal{F}_{Eu} = 3,7\%$  (exp. 13 % et 10 %). Par conséquent, on doit appliquer des corrections sur les taux de relâchement calculés pour ces deux produits de fission afin d'obtenir des valeurs conservatives. Les différences entre les calculs et les expériences peuvent être en partie dues au choix principal de modélisation dans ASTEC/ELSA qui consiste à ne prendre en compte que l'étape limitante du relâchement pour chacun des produits de fission (diffusion atomique, volatilisation de phase condensées ou volatilisation du combustible). En outre, il est possible que des espèces chimiques gazeuses ou solides n'ayant pas été prises en compte lors du développement des modèles de relâchement aient un effet sur le relâchement de certains produits de fission.

## Conclusions

Les mécanismes de relâchement des produits de fission à partir du combustible  $\text{UO}_2$  dans les conditions d'un accident grave ont été étudiés *via* l'interprétation d'essais expérimentaux tel le programme VERCORS. Nous avons analysé les comportements physico-chimiques mis en jeu lors du relâchement des principaux produits de fission (baryum, molybdène, ruthénium, césium, cérium, lanthane, strontium et europium) et développé des modèles de relâchement. Pour cette phase de développement, nous avons considéré l'étape limitante du relâchement pour chacun des produits de fission et effectué des calculs d'équilibres thermodynamiques afin de déterminer les pressions partielles des produits de fission semi-volatils. Ces modèles de cinétique de relâchement ont alors été intégrés dans le module ELSA du code ASTEC et confrontés aux mesures effectuées lors des essais VERCORS mais aussi des essais PHEBUS et d'essais canadiens effectuées au *Chalk River Laboratory*, tels que les séries HCE3 et MCE1. De façon globale, le relâchement des produits de fission considéré est bien appréhendé par les calculs ASTEC/ELSA pour l'ensemble des essais de relâchement de produits de fission à partir de combustible à taux de combustion intermédiaire. Ces modèles sont maintenant utilisés dans les études de sûreté des REP français.

# Bibliographie

- D. J. Alpert, D. I. Chanin et L. T. Ritchie : Relative importance of individual elements to reactor accident consequences assuming equal release fractions. Rapport technique NUREG/CR-4467, SAND85-2575, Sandia National Laboratories, Albuquerque, 1988.
- M. Barrachin, P. Y. Chevalier, B. Cheynet et E. Fischer : A thermodynamic database for nuclear applications. In *MMSNF-5 Workshop*, Nice, France, 2006.
- F. Birch : Finite elastic strain of cubic crystals, *Phys. Rev.*, 71(11):809–824, 1947.
- A. A. Bolzan, C. Fong, B. J. Kennedy et C. J. Howard : Structural studies of rutile-type metal dioxides. *Acta Cryst. B*, 53:373–380, 1997.
- G. Brillant, F. Gupta et A. Pasturel : Investigation of molybdenum and caesium behaviour in urania by ab initio calculations. *J. Phys. : Condens. Matter*, 21:285602, 2009.
- G. Brillant et A. Pasturel : Study of barium and zirconium stability in  $\text{UO}_{2\pm x}$  by density functional calculations. *Phys. Rev. B*, 77(18):184110, 2008.
- G. Busker, R. W. Grimes et M. R. Bradford : The diffusion of iodine and caesium in the  $\text{UO}_{2\pm x}$  lattice. *J. Nucl. Mater.*, 279:46–50, 2000.
- G. Busker, R. W. Grimes et M. R. Bradford : The solution and diffusion of ruthenium in  $\text{UO}_{2\pm x}$ . *J. Nucl. Mater.*, 312:156–162, 2003.
- L. S. Calvacante, A. Z. Simoes, J. C. Sczancoski, V. M. Longo, E. Erlo, M. T. Escote, E. Longo et J. A. Varela :  $\text{SrZrO}_3$  powders obtained by chemical method : Synthesis, characterization and optical absorption behaviour. 9:1020–1027, 2007.
- C. R. A. Catlow : Defect clusters in doped fluorite crystals. *J. Phys. C : Solid State Phys.*, 6:64–70, 1973.
- C. R. A. Catlow : Point defect and electronic properties of uranium dioxide. *Proc. R. Soc. London A*, 353:533–561, 1977.
- E. H. P. Cordfunke et R. J. M. Konings : *Thermochemical data for reactor materials and fission products*. North Holland, 1990.
- J. P. Crocombette : Ab initio energetics of some fission products (Kr, I, Cs, Sr, and He) in uranium dioxide. *J. Nucl. Mater.*, 305:29–36, 2002.
- J. P. Crocombette, F. Jollet, L. Thien Nga et T. Petit : Plane-wave pseudopotential study of point defects in uranium dioxide. *Phys. Rev. B*, 64(104107):1–12, 2001.
- B. Dorado, M. Freyss et G. Martin : GGA+U study of the incorporation of iodine in uranium dioxide. *Eur. Phys. J. B*, 69:203–209, 2009.

- S. L. Dudarev, G. A. Botton, S. Y. Savrasov, C. J. Humphreys et A. P. Sutton : Electron energy loss spectra and the structural stability of nickel oxide : An LSDA+U study. *Phys. Rev. B*, 57:1505, 1998.
- S. L. Dudarev, A. I. Liechtenstein, M. R. Castell, G. A. D. Briggs et A. P. Sutton : Surface states on nio (100) and the origin of the contrast reversal in atomically resolved scanning tunneling microscope images. *Phys. Rev. B*, 56(8):4900–4908, 1997a.
- S. L. Dudarev, D. Nguyen Manh et A. P. Sutton : Effect of Mott-Hubbard correlations on the electronic structure and structural stability of uranium dioxide. *Phil. Mag. B*, 75:613–628, 1997b.
- S. L. Dudarev, D. Nguyen Manh et A. P. Sutton : Effect of Mott-Hubbard correlations on the electronic structure and structural stability of uranium dioxide. *Phil. Mag. B*, 75:613–628, 1997c.
- D. Errandonea, R. S. Kumar, X. Ma et C. Tu : High-pressure X-ray diffraction study of  $\text{SrMoO}_4$  and pressure induced structural changes. *J. Solid State Chem.*, 181:355–364, 2008.
- L. Eyring : *Hanbook on the physics and chemistry of rare earths*, volume 3, chapter 27. North Holland, Amsterdam, 1979.
- M. Freyss, T. Petit et J.-P. Crocombette : Point defects in uranium dioxide : Ab initio pseudopotential approach in the generalized gradient approximation. *J. Nucl. Mater.*, 347:44–51, 2005.
- M. Freyss, N. Vergnet et T. Petit : Ab initio modeling of the behavior of helium and xenon in actinide dioxide nuclear fuels. *J. Nucl. Mater.*, 352:144–150, 2006.
- P. Garcia, P. Martin, G. Carlot, E. Castelier, M. Ripert, C. Sabathier, C. Valot, F. D'Acapito, J.-L. Hazemann, O. Proux et V. Nassif : A study of xenon aggregates in uranium dioxide using X-ray absorption spectroscopy. *J. Nucl. Mater.*, 352(1–3):136–143, 2006.
- H. Y. Geng, Y. Chen, Y. Kaneta, M. Iwasawa, T. Ohnuma et M. Kinoshita : Point defects and clustering in uranium dioxide by LSDA+U calculations. *Phys. Rev. B*, 77:104120, 2008.
- G. W. Grimes et C. R. A. Catlow : The stability of fission products in uranium dioxide. *Phil. Trans. R. Soc. London A*, 335:609–634, 1991.
- W. H. Hocking, A. M. Duclos et L. H. Johnson : Study of fission product segregation in used CANDU fuel by X-ray photoelectron spectroscopy (XPS) II. *J. Nucl. Mater.*, 209:1–26, 1994.
- R. Jackson, C. R. A. Catlow et A. D. Murray : Point defect calculations on  $\text{UO}_2$ . *J. Chem. Soc., Faraday Trans. 2*, 83:1171–1176, 1987.

- R. A. Jackson, A. D. Murray, J. H. Harding et C. R. A. Catlow : The calculation of defect parameters in  $\text{UO}_2$ . *Phil. Mag. A*, 53:27–50, 1986.
- C. W. Jones, P. D. Battle et P. Lightfoot : The structure of  $\text{SrRuO}_3$  by the time-of-flight neutron powder diffraction. *Acta Cryst.*, C45:365–367, 1989.
- H. Kleykamp : The chemical state of the fission products in oxide fuels. *J. Nucl. Mater.*, 131:221–246, 1985.
- H. Kleykamp : The solubility of selected fission products in  $\text{UO}_2$  and  $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ . *J. Nucl. Mater.*, 206:82–86, 1993.
- H. Kleykamp, J. O. Paschoal, R. Pejsa et F. Thümmel : Composition and structure of fission product precipitates in irradiated oxide fuels : correlation with phase studies in the Mo-Ru-Rh-Pd and BaO- $\text{UO}_2$ -Zr<sub>2</sub>-Mo<sub>2</sub> systems. *J. Nucl. Mater.*, 130:426–433, 1985.
- K. S. Knight et N. Bonanos : The crystal structures of some doped and undoped alkaline earth cerate perovskites. 30(3):347–356, 1995.
- A. Kotani : Systematic analysis of core photoemission spectra for actinide di-oxides and rare-earth sesqui-oxides. *Prog. Theor. Phys. Suppl.*, 108:117–131, 1992.
- G. Kresse et J. Furthmüller : Efficiency of ab initio total energy calculations for metals and semiconductors using a plane-wave basis set. *Comput. Mater. Sci.*, 6:15–50, 1996.
- G. Kresse et D. Joubert : From ultrasoft pseudopotentials to the projector augmented-wave method. *Phys. Rev. B*, 59(3):1758–1775, 1999.
- K. N. Kudin, G. E. Scuseria et R. L. Martin : Hybrid density functional theory and the insulating gap of  $\text{UO}_2$ . *Phys. Rev. Lett.*, 89(26):266402–266405, 2002.
- K. Kurosaki, R. J. M. Konings, F. Wastin et S. Yamanaka : The low-temperature heat capacity and entropy of  $\text{SrZrO}_3$  and  $\text{BaZrO}_3$ . *J. Alloys Comp.*, 424:1–3, 2006.
- R. Laskowski, G. K. H. Madsen, P. Blaha et K. Schwarz : Magnetic structure and electric-field gradients of uranium dioxide : An ab initio study. *Phys. Rev. B*, 69:140408, 2004.
- A. B. Lidiard : Self-diffusion of uranium in  $\text{UO}_2$ . *J. Nucl. Mater.*, 19:106–108, 1966.
- T. B. Lindemer et T. M. Besmann : Thermodynamic review and calculations - alkali-metal oxide systems with nuclear fuels, fission products, and structural materials. *J. Nucl. Mater.*, 100:178–226, 1981.
- D. Logvinovich, R. Aguiar, R. Robert, M. Trottmann, S. G. Ebbinghaus, A. Reller et A. Weidenkaff : Synthesis, Mo-valence state, thermal stability and thermoelectric properties of  $\text{SrMoO}_{3-x}\text{N}_x$  ( $x > 1$ ) oxynitride perovskites. *J. Solid State Chem.*, 180(10):2649–2654, 2007.

- P. G. Lucuta, R. A. Verrall, Hj. Matzke et B. J. Palmer : Microstructural features of SIM-FUEL - simulated high-burnup  $\text{UO}_2$ -based nuclear fuel. *J. Nucl. Mater.*, 178:48–60, 1991.
- K. Maeda, K. Tanaka, T. Asaga et A. Furuya : Distributions of volatile fission products in or near the fuel-cladding gap of the FBR MOX fuel pins irradiated to high burn-up. *J. Nucl. Mater.*, 344:274–280, 2005.
- P. Martin, M. Ripert, G. Carlot, P. Parent et C. Laffon : A study of molybdenum behaviour in  $\text{UO}_2$  by X-ray absorption spectroscopy. *J. Nucl. Mater.*, 326:132–143, 2004.
- Hj. Matzke : Gas release mechanisms in  $\text{UO}_2$  - a critical review. *Rad. Eff.*, 53:219–242, 1980.
- Hj. Matzke : *Non-stoichiometric oxides*, Academic press, 1981.
- Hj. Matzke : Atomic transport properties in  $\text{UO}_2$  and mixed oxides  $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ . *J. Chem. Soc., Faraday Trans. 2*, 83:1121–1142, 1987.
- Hj. Matzke : Oxygen potential measurements in high burn-up LWR  $\text{UO}_2$  fuel. *J. Nucl. Mater.*, 223:1–5, 1995.
- J. McFarlane, J. C. Leblanc et D. G. Owen : High-temperature chemistry of molybdenum cesium, iodine and  $\text{UO}_{2+x}$ . Rapport technique 11708, AECL, 1996.
- C. Neamtu, Al. Darabont, E. Surducan et Gh. Borodi : Crystal growth and electrical properties of  $\text{TeO}_2$  single crystals. 2(5):487–492, 2000.
- S. Nicoll, Hj. Matzke, R. W. Grimes et C. R. A. Catlow : The behaviour of single atoms of molybdenum in urania. *J. Nucl. Mater.*, 240:185–195, 1997.
- D. R. Olander : *Fundamental aspects of nuclear reactor fuel elements*, Technical Information Center U.S., Department of Energy, 1976.
- K. Park, M.-S. Yang et H.-S. Park : The stoichiometry and the oxygen potential change of urania during irradiation. *J. Nucl. Mater.*, 247:116–120, 1997.
- J. P. Perdew, J. A. Chevary, S. H. Vosko, Koblar A. Jackson, Mark R. Pederson, D. J. Singh et Carlos Fiolhais : Atoms, molecules, solids, and surfaces : Applications of the generalized gradient approximation for exchange and correlation. *Phys. Rev. B*, 46(11):6671–6687, 1992.
- J. P. Perdew, M. Ernzerhof et K. Burke : Rationale for mixing exact exchange with density functional approximations. *J. Chem. Phys.*, 105:9982–9985, 1997.
- T. Petit : *Étude de la structure électronique des actinides et de leurs dioxydes. Application aux défauts ponctuels et aux gaz de fission dans le dioxyde d'uranium*. Thèse de doctorat, ENS Lyon, 1996.

- T. Petit, M. Freyss, P. Garcia, P. Martin, M. Ripert, J. P. Crocombette et F. Jollet : Molecular modelling of transmutation fuels and targets. *J. Nucl. Mater.*, 320:133–137, 2003.
- T. Petit, C. Lemaignan, F. Jollet, B. Bigot et A. Pasturel : Point defects in uranium dioxide. *Phil. Mag. B*, 77:779–786, 1998.
- A. Pialoux et B. Touzelin : étude du système U-Sr-O par diffraction X à haute température. *Can. J. Chem.*, 77:1384–1393, 1999.
- Y. Pontillon et G. Ducros : Behaviour of fission products under severe PWR accident conditions : The VERCORS experimental programme–Part 2 : Release and transport of fission gases and volatile fission products. *Nucl. Eng. Design*, 240(7):1853–1866, 2010a.
- Y. Pontillon et G. Ducros : Behaviour of fission products under severe PWR accident conditions. The VERCORS experimental programme–Part 3 : Release of low-volatile fission products and actinides. *Nucl. Eng. Design*, 240(7):1867–1881, 2010b.
- Y. Pontillon, G. Ducros et P. P. Malgouyres : Behaviour of fission products under severe PWR accident conditions VERCORS experimental programme–part 1 : General description of the programme. *Nucl. Eng. Design*, 240(7):1843–1852, 2010.
- I. D. Prodan, G. E. Scuseria et R. L. Martin : Assessment of metageneralized gradient approximation and screened Coulomb hybrid density functionals on bulk actinide oxides. *Phys. Rev. B*, 73:45104–45113, 2006.
- I. L. F. Ray, H. Thiele et H. Matzke : Transmission electron microscopy study of fission product behaviour in high burnup  $\text{UO}_2$ . *J. Nucl. Mater.*, 188:90–95, 1992.
- T. B. Rymer et P. G. Hambling : The lattice constant of caesium iodide. *Acta Cryst.*, 4(6):565, 1951.
- A. Santoro, I. Natali Sora et Q. Huang : Bond valence analysis of  $\text{BaRuO}_3$ . *J. Solid State Chem.* 151(2):245–252, 2000.
- C. Sari, C. T. Walker et G. Schumacher : Solubility and migration of fission product barium in oxide fuel. *J. Nucl. Mater.*, 79:255–259, 1979.
- I. Sato, H. Furuya, T. Arima, K. Idemitsu et K. Yamamoto : Behavior of fission products zirconium and barium in fast reactor fuel irradiated to high burnup. *J. Nucl. Sci. Tech.*, 36(9):775–780, 1999a.
- I. Sato, H. Furuya, T. Arima, K. Idemitsu et K. Yamamoto : Behavior of metallic fission products in uranium-plutonium mixed oxide fuel. *J. Nucl. Mater.*, 273:239–247, 1999b.



- I. Sato, H. Furuya, K. Idemitsu, T. Arima, K. Yamamoto et M. Kajitani : Distribution of molybdenum in FBR fuel irradiated to high burnup. *J. Nucl. Mater.*, 247:46–49, 1997.
- J. Schoenes : Recent spectroscopic studies of  $\text{UO}_2$ . *J. Chem. Soc., Faraday Trans. 2*, 83:1205–1213, 1987.
- M. Schwarz, G. Hache et P. von den Hardt : PHEBUS FP : a severe accident research programme for current and advanced light water reactors. *Nucl. Eng. Design*, 187:47–69, 1999.
- J. A. Serrano, J. P. Glatz, E. H. Toscano, J. Barrera et D. Papaioannou : Influence of low-temperature air oxidation on the dissolution behaviour of high burn-up LWR spent fuel. *J. Nucl. Mater.*, 294:339–343, 2001.
- D. K. Smith et W. Newkirk : The crystal structure of baddeleyite (monoclinic  $\text{ZrO}_2$ ) and its relation to the polymorphism of  $\text{ZrO}_2$ . *Acta Cryst.*, 18(6): 983–991, 1965.
- L. E. Thomas, C. E. Beyer et L. A. Charlot : Microstructural analysis of LWR spent fuels at high burnup. *J. Nucl. Mater.*, 188: 80–89, 1992.
- M. Tourasse, M. Boidron et B. Pasquet : Fission product behaviour in Phenix fuel pins at high burnup. *J. Nucl. Mater.*, 188:49–57, 1992.
- J. P. van Dorsselaere, C. Seropian, P. Chatelard, F. Jacq, J. Fleurot, P. Giordano, N. Reinke, B. Schwinges, H. J. Allelein et W. Luther : The ASTEC integral code for severe accident simulation. *Nucl. Technol.*, 165(3):293–307, 2009.
- J.-P. Van Dorsselaere, P. Chatelard, M. Cranga, G. Guillard, N. Trégourès, L. Bosland, G. Brillant, N. Girault, A. Bentaïb, N. Reinke et W. Luther : Validation status of the astec integral code for severe accident simulation. *Nucl. Technol.*, 170(3):397–415, 2010.
- N. G. Vannerberg : *Progress in Inorganic Chemistry*, volume 4, chapitre Peroxides, Superoxides, and Ozonides of the Metals of Groups Ia, IIa, and IIb, pages 125–197. 1962.
- C. T. Walker, C. Bagger et M. Mogensen : Migration of fission product barium in  $\text{UO}_2$  fuel under transient conditions. *J. Nucl. Mater.*, 173:14–25, 1990.
- R. W. G. Wyckoff : *Crystal structures 2<sup>nd</sup>ed.*, volume 1. Interscience Publisher, New York, 1963.
- K. Yamada, S. Yamanaka, T. Nakagawa, M. Uno et M. Katsura : Study of the thermodynamic properties of  $(\text{U,Ce})\text{O}_2$ . *J. Nucl. Mater.*, 247:289–292, 1997.
- S. Yamanaka, S. Yoshida, K. Kurosaki, M. Uno, K. Yamamoto et T. Namekawa : Mechanical properties of  $(\text{U,Ce})\text{O}_2$  with and without Nd or Zr. *J. Nucl. Mater.*, 327:281–284, 2001.

Y. Yun, O. Eriksson et P. M. Oppeneer : Theory of He trapping, diffusion, and clustering in  $\text{UO}_2$ . *J. Nucl. Mater.*, 385(3):510–516, 2009.

R. J. Zollweg : X-ray lattice constant of barium oxide. *Phys. Rev.*, 100(2):671–673, 1955.



## Chapitre 4

# Conclusions - Perspectives

---

Les travaux exposés dans ce mémoire s'inscrivent dans une logique d'amélioration du niveau de sûreté des installations nucléaires. Pour ce faire, j'ai effectué des recherches dans deux grands domaines de la physique, à savoir la mécanique des fluides et la physique du solide. Dans le premier domaine, je me suis focalisé sur des problématiques liées aux écoulements monophasiques turbulents anisothermes en utilisant la simulation des grandes échelles. Dans le second domaine, j'ai étudié le relâchement des produits de fission hors du combustible nucléaire lors de situations accidentelles.

La première partie de ce mémoire rassemble mes travaux de recherche relatifs à la thermohydraulique. Ces derniers consistent en l'élaboration de modèles adaptés à la simulation des grandes échelles d'écoulements turbulents et à l'application de ces développements sur deux configurations : *i*) la protection thermique d'une paroi par effusion d'un fluide froid dans une couche limite chaude et *ii*) l'évaluation des fluctuations de température lors d'un mélange de deux écoulements turbulents anisothermes.

- Nous avons pu observer que la simulation des grandes échelles est un outil de choix pour évaluer les fluctuations de température dans des écoulements turbulents monophasiques. L'utilisation d'une entrée de fluide turbulente est primordiale pour la qualité de ce type de simulations et nous a conduit à développer une méthode de recyclage des fluctuations. En outre, une analyse dimensionnelle, nous a permis de déterminer les comportements asymptotiques que devraient vérifier les modèles de diffusivité sous-maille suivant les conditions aux limites thermiques employées.
- La première application des méthodes citées ci-dessus correspond à l'étude de l'impact de l'effusion froide sur une couche limite turbulente chaude. Outre les simulations numériques, nous avons effectué des mesures expérimentales dans une veine d'essais au moyen de sondes anémométriques multi-fils chauds/froids. La comparaison des résultats expérimentaux et numériques a été rendue possible sur les grandeurs moyennes et fluctuantes de la vitesse et de la température mais aussi sur les corrélations doubles (vitesse/vitesse et vitesse/température). La gamme de taux d'effusion étudiée (0-5 %) nous a permis d'évaluer l'impact de l'effusion sur une couche limite jusqu'au décollement de cette dernière. Moyennant l'utilisation de la condition d'entrée de fluide avec recyclage des fluctuations, nous avons obtenu un bon accord entre les simulations et les données expérimentales. La simulation des grandes échelles s'est avérée être un très bon outil sur cette configuration relativement complexe.
- L'évaluation du risque de faïençage thermique des conduites des centrales nucléaires nécessite des simulations fines d'écoulements turbulents pour estimer l'amplitude des fluctuations de température ainsi que leur répartition spectrale. Nous avons considéré la configuration d'un Té de mélange de la centrale Phénix pour laquelle des données expérimentales étaient disponibles. Nous avons pris en compte dans nos simulations numériques la résolution dynamique et thermique de l'écoulement dans le Té de mélange mais aussi la résolution thermique dans l'épaisseur d'acier de la conduite principale. Les résultats obtenus par simulation des grandes échelles nous ont permis de retrouver l'emplacement du pic des fluctuations thermiques observé sur la paroi de la conduite de la centrale Phénix et donc le point le plus soumis au faïençage thermique. La simulation des grandes échelles couplée à une résolution de la conduction thermique dans les parois solides est ainsi un outil de choix dans l'évaluation des risques de fatigue thermique.

La deuxième partie de ce mémoire regroupe mes travaux de recherche relatifs au relâchement des produits de fission hors du combustible nucléaire en situation

accidentelle. Ces travaux ont été effectués à deux échelles différentes : *i*) à l'échelle microscopique avec la détermination des énergies de solution et de diffusion des produits de fission dans la matrice fluorite du dioxyde d'uranium et *ii*) à l'échelle macroscopique avec le développement et la validation de modèles de relâchement pour évaluer le terme source au moyen d'un code d'accident grave.

- Le recours à des calculs *ab initio* a été très profitable pour l'étude du comportement des produits de fission dans le dioxyde d'uranium. Nous avons ainsi pu évaluer les énergies d'incorporation et les énergies de solution des produits de fission dans les différents sites d'accueil possibles de la matrice  $\text{UO}_2$ . Par ailleurs, nous avons également pu évaluer la stabilité des produits de fission dissous dans la matrice combustible vis-à-vis de la formation de phases secondaires. Ces informations sont de toutes premières importances pour le développement des modèles de relâchement à l'échelle macroscopique.
- Suite à un accident sur une centrale nucléaire, la partie de l'inventaire de produits de fission libérée dans l'enclaustrage de confinement, et susceptible d'être libérée dans l'environnement, est appelée terme source. L'estimation de ce terme source requiert une bonne évaluation de la première étape du relâchement, c'est-à-dire le relâchement des produits de fission hors des pastilles combustibles. Afin de pouvoir estimer au mieux ce terme source par les simulations dans une large gamme de conditions (température, pression d'oxygène, composition d'atmosphère dans le cœur...), nous avons développé des modèles de relâchement des produits de fission hors du combustible. Ces modèles ont été élaborés sur la base de l'interprétation du comportement des produits de fission dans des expériences représentatives, de calculs *ab initio* et de calculs d'équilibres thermodynamiques. Nous avons implémenté ces modèles dans le code de calcul ASTEC et validé ces derniers sur les essais du programme VERCORS avec du combustible à taux de combustion intermédiaire.

Plusieurs axes de recherche peuvent se dégager pour les perspectives de ces travaux selon la thématique thermohydraulique et relâchement des produits de fission :

- une problématique des futures années concerne l'élaboration et la construction des réacteurs de génération IV. Les réacteurs à l'étude utilisent comme fluide caloporteur du sodium (avec le futur réacteur ASTRID prévu en France à l'horizon 2020-2025), de l'hélium ou encore du dioxyde de carbone supercritique. Les nombres de Prandtl de ces fluides, et donc leur comportement thermique, sont très différents de l'eau ou de l'air. Des méthodes numériques et modèles pour la simulation des grandes échelles devront donc être développés dans les

prochaines années pour prendre en compte la spécificité des faibles nombres de Prandtl des métaux liquides, et du sodium en particulier ;

- concernant l'évaluation des risques de fatigue thermique, il sera important de coupler à l'avenir la résolution thermohydraulique de l'écoulement et thermique de la paroi à une résolution mécanique d'amorçage et de propagation des fissures jusqu'à la rupture de la tuyauterie. Cet axe de recherche nécessitera un rapprochement de compétences de plusieurs domaines - hydraulique, thermique, mécanique, numérique - afin d'aboutir à une modélisation complète de tous les phénomènes physiques mis en jeu et à l'élaboration d'un code de calcul rassemblant l'ensemble de ces modèles. En outre, la fatigue thermique n'apparaît pas uniquement au niveau des Té de mélange. Il est donc envisagé d'étendre notre champ d'étude à d'autres configurations telles que la zone supérieure du cœur d'un réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium pour laquelle les températures de sortie des assemblages sont différentes ou encore la zone supérieure de la cuve où les fluctuations du niveau de sodium induisent des fluctuations de température ;
- l'axe de recherche à l'échelle microscopique par calculs *ab initio* devra être poursuivi. En effet, le développement des modèles de relâchement des produits de fission volatils nécessite des données d'entrée relatives à la diffusion atomique dans les grains de dioxyde d'uranium. Ces données d'entrée pourront être obtenues au moyen de calcul *ab initio*. Le recours à des calculs de dynamique moléculaire pourra également être envisagé. En outre, ce type d'étude devra être étendu à d'autres combustibles tels que les combustibles oxyde mixte (U,Pu)O<sub>2</sub> (MOX) en introduisant le plutonium dans les calculs mais aussi aux combustibles carbure, envisagés dans le cadre du réacteur ASTRID, pour lesquels les interactions chimiques entre les produits de fission et la matrice combustible sont tout à fait différentes ;
- l'effort de modélisation sur le relâchement des produits de fission qui a été fait sur le cas du combustible UO<sub>2</sub> à taux de combustion moyen devra être reproduit sur les autres combustibles utilisés sur les réacteurs à eau pressurisée du parc français (combustibles UO<sub>2</sub> à forts taux de combustion et mixte (U,Pu)O<sub>2</sub>). Les spécificités de ces combustibles (potentiel d'oxygène plus élevé, formation d'une zone rim...) devront être prises en compte dans l'élaboration des modèles de relâchement et les résultats du programme VERDON, dont le premier essai a été réalisé en septembre 2011, seront utilisés comme base de validation ;
- du fait de l'élaboration du futur réacteur à caloporteur sodium prévu en France, un nouvel axe de recherche s'ouvre sur la sûreté des réacteurs au sodium. Dans ce cadre, l'ébullition du sodium et les propriétés des écoulements diphasiques

de sodium devront être étudiés en détails ainsi que la dégradation du cœur d'un réacteur en situation accidentelle. C'est pourquoi, un projet européen dénomé JASMIN (*Joint Advanced Severe accidents Modelling and Integration for Na-cooled fast neutron reactors*) vient de débiter en vue de rassembler les connaissances au niveau européen sur les écoulements de sodium et de mutualiser ces dernières au sein d'un futur code de calcul ASTEC-Na.





# Chapitre 5

## Présentation personnelle

---

### **5.1 *Curriculum Vitae***

**Brillant Guillaume**

36 ans, né le 23 Janvier 1976 à Argentan (61)

Marié, 2 enfants

Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN)

IRSN/PSN-RES/SEREX/LE2M

BP3

13115 Saint-Paul-lez-Durance Cedex

Tél : 04.42.19.94.41

email : [guillaume.brillant@irsn.fr](mailto:guillaume.brillant@irsn.fr)

## Parcours professionnel

- Doctorat, Centre de thermique de Lyon CETHIL (UMR 5008), CEA Grenoble DEN/DER/SSTH/LMDL, 2004.
- Agrégé préparateur, École normale supérieure de Lyon, 2004.
- Ingénieur-chercheur à l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire, pôle Sûreté des installations et des systèmes nucléaires, au Service des accidents graves, de 2004 à 2016 et au Service d'étude de recherche expérimentale depuis septembre 2016.

## Formation initiale

- Élève normalien, École normale supérieure de Lyon (1997-2001).
- Agrégation de Sciences physiques, option physique, École normale supérieure de Lyon.
- DEA Thermique et Énergétique, INSA de Lyon, Centre de thermique de Lyon CETHIL UMR 5008, « Simulations des grandes échelles sur une plaque plane soumise à de l'effusion » sous la direction de F. Bataille-Daumas (2001).
- Magistère de sciences de la matière, ENS Lyon, université Claude Bernard Lyon I (2001).
- Doctorat de l'INSA de Lyon spécialité thermique et énergétique, Centre de thermique de Lyon UMR 5008, CEA Grenoble DEN/DER/SSTH/LMDL, « Simulations des grandes échelles thermiques et expériences dans le cadre d'effusion anisotherme », bourse CFR du CEA Grenoble, sous la direction de F. Bataille-Daumas et de F. Ducros (juin 2004).

## Activités de recherche

### *Thématiques*

- Aspects dynamiques et thermiques d'écoulements turbulents anisothermes.
- Comportement des produits de fission dans du combustible nucléaire.

### *Publications*

- 22 articles dans des revues d'audience internationale.
- 14 publications dans des actes de conférences avec comité de lecture, texte complet - dont 11 conférences internationales et 3 nationales.
- 4 publications dans des actes de conférences internationales avec comité de lecture, résumés et posters.
- 13 présentations lors de séminaires - dont 9 internationaux et 4 nationaux.
- 18 rapports de recherche et rapports techniques.

## Activités d'enseignement et d'encadrement

### *Enseignement*

- Vacances en CPGE au Lycée du Parc - 200 h, (2000-2004).
  - interrogations orales de sciences physiques (Maths sup).
- Monitorat à l'INSA de Lyon - 276 h eq. TP, (2001-2004).
  - travaux pratiques de sciences physiques (1<sup>re</sup> année INSA).
  - travaux dirigés en Mécaniques des fluides (3<sup>e</sup> année INSA).
- Agrégé Préparateur à l'ENS de Lyon - 60 h eq. TP, (2004).
  - travaux pratiques de sciences physiques (préparation à l'agrégation).
- Formation continue au CAST - 12 h eq. TP (2003).
  - cours et travaux dirigés de Mécaniques des fluides au Centre d'actualisation scientifique et technique.

### *Encadrement*

- 5 stages de Master M2 et de Magistère de physique de l'ENS Lyon :
  - S. Massiera (2001-2002) : « Évaluation des capacités du code FLUENT pour la simulation des grandes échelles », Master M2, INSA de Lyon.
  - S. Floch (2002-2003) : « Étude des instabilités thermiques dans une couche limite par anémométrie fil chaud/fil froid », Magistère de Physique de l'ENS de Lyon.
  - S. Husson (2003-2004) : « Simulation des grandes échelles pour les écoulements turbulents anisothermes », Master M2, INSA de Lyon.
  - R. Monod (2008-2009) : « Calcul d'un canal plan turbulent par simulation des grandes échelles afin de définir une entrée turbulente pour un Té de mélange », Master M2, université de Perpignan.
  - F. Aulery (2009-2010) : « Modélisation d'un Té de mélange sous FLUENT : Étude du faïençage thermique de la centrale Phénix », Master M2, université de Perpignan.
- 2 stages de fin d'études de l'INSA de Lyon (2001 et 2003).
- 2 thèses de doctorat (co-encadrement) :
  - F. Gupta (2005-2008) : « Étude du comportement du produit de fission césium dans le dioxyde d'uranium par méthode *ab initio* », université Paris XI.
  - R. Monod (2009-2012) : « Évaluation des fluctuations de température par simulation des grandes échelles », université de Perpignan.
- Membre de jury de thèse :
  - S. Husson, « Simulations des grandes échelles pour les écoulements turbulents anisothermes », INSA de Lyon, 2007.

## Autres activités

### *Valorisation de la recherche*

- Membre du comité d'organisation du séminaire international VERCORS (Gréoux-les-bains, oct. 2007).
- Expertise d'articles soumis dans :
  - *Journal of American Mineralogist*
  - *Nuclear Engineering and Design*
  - *Science (AAAS)*
- Expertise pour les groupes permanents sur les réacteurs nucléaires
  - participation au GP conséquences radiologiques N2 (2009)

### *Contrats et collaborations nationales*

- Participation au projet « Modélisation Terme Source » avec EDF (2004-2008).
- Participation aux programmes VERCORS et VERDON avec le CEA et EDF (2004-2008).
- Mise en place d'une collaboration avec le CNRS de Grenoble (2005-2010).
- Mise en place d'une collaboration avec le CNRS de Perpignan (depuis 2009).

### *Contrats et collaborations internationales*

- Participation au projet européen du 6<sup>e</sup> PCRD "Severe accident research network" (2004-2008).
- Représentant IRSN pour le groupe de travail lié au logiciel SIMMER avec les partenaires JAEA (Japon), KIT (Allemagne), PSI (Suisse) et ENEA (Italie), (depuis 2008).
- Participation au groupe de travail lié aux logiciels SAS-4A et SAS-SFR avec les partenaires CEA (France), JAEA (Japon), et KIT (Allemagne), (depuis 2009).
- Participation au projet européen du 7<sup>e</sup> PCRD "Collaborative Project for a European Sodium Fast Reactor", (depuis 2009).
- Représentant IRSN dans le projet européen du 7<sup>e</sup> PCRD "Thermal Hydraulics for Innovative Nuclear Systems", (depuis 2010).
- Participation au projet européen du 7<sup>e</sup> PCRD "Joint Advanced Severe accidents Modelling and Integration for Na-cooled fast neutron reactors", (depuis 2011).

## Activités administratives et d'intérêt général

- Membre élu du Conseil de laboratoire, Centre de thermique de Lyon, INSA, (2002-2004).

- Membre élu du Conseil d'unité du Service étude et modélisation de l'incendie, du corium et du confinement, IRSN, (2005-2008).
- Représentant du Laboratoire d'étude et du transfert des radioéléments auprès de la commission informatique de la Direction de la prévention des accidents majeurs, IRSN, (2006-2008).

## 5.2 Liste détaillée des publications

### 5.2.1 Articles dans des revues d'audience internationale (22)

*Facteurs d'impact et citations des articles dans des revues d'audience internationale.*

Ref.	Nombre de citations ( $\Sigma = 118$ , $h = 6$ )	Revue	Facteur d'impact (ISI - JCR)
A-[1]	3	Theoret. Comp. Fluid Dyn.	1,127
A-[2]	1	Eur. Phys. J. B	1,575
A-[3]	3	Theoret. Comp. Fluid Dyn.	1,127
A-[4]	2	J. Appl. Mech., Trans ASME	0,620
A-[5]	38	Phil. Mag.	1,304
A-[6]	8	Nucl. Eng. Design	0,885
A-[7]	2	Int. J. Heat Mass Transfer	1,899
A-[8]	2	Int. J. Heat Fluid Flow	1,802
A-[9]	15	Phys. Rev. B	3,774
A-[10]	6	J. Phys. : Condens. Matter	2,332
A-[11]	11	J. Nucl. Mater.	1,272
A-[12]	3	J. Nucl. Mater.	1,272
A-[13]	4	Radiochim. Acta	1,128
A-[14]	3	Progress Nucl. Ener.	1,085
A-[15]	7	Phys. Rev. B	3,774
A-[16]	2	Nucl. Technol.	0,662
A-[17]	0	Progress Nucl. Ener.	1,085
A-[18]	8	J. Nucl. Mater.	1,272
A-[19]	0	App. Therm. Eng.	1,826

- A-[1] G. Brillant, F. Chillá et J.-F. Pinton, Transmission of sound through a single vortex, *Eur. Phys. J. B*, 37(2):229–239, 2004.
- A-[2] G. Brillant, F. Bataille et F. Ducros, Large-eddy simulation of a turbulent boundary layer with blowing, *Theoret. Comp. Fluid Dyn.*, 17(5-6):433–443, 2004.
- A-[3] J.-F. Pinton et G. Brillant, Sound and vorticity interactions : transmission and scattering, *Theoret. Comp. Fluid Dyn.*, 18(6):413–433, 2005.

- A-[4] G. Brillant, S. Husson et F. Bataille, Subgrid-scale diffusivity : wall behaviour and dynamic methods, *J. Appl. Mech., Trans ASME*, 73(3):360–367, 2006.
- A-[5] F. Gupta, G. Brillant et A. Pasturel, Correlation effects and energetics of point defects in uranium dioxide : a first principle investigation, *Phil. Mag.*, 87(17):2561–2569, 2007.
- A-[6] A. Auvinen, G. Brillant, N. Davidovich, R. Dickson, G. Ducros, Y. Dutheillet, P. Giordano, M. Kunstar, T. Karkela, M. Mladin, Y. Pontillon, C. Seropian et N. Ver, Progress on ruthenium release and transport under air ingress conditions, *Nucl. Eng. Design*, 238(12):3418–3428, 2008.
- A-[7] G. Brillant et A. Pasturel, Study of Barium and Zirconium stability in  $\text{UO}_{2+x}$  by density functional calculations, *Phys. Rev. B*, 77(18):184110, 2008.
- A-[8] G. Brillant, S. Husson et F. Bataille, Experimental study of the blowing impact on a hot turbulent boundary layer, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 51(7-8): 1996–2005, 2008.
- A-[9] G. Brillant, S. Husson et F. Bataille, Study of the blowing impact on a hot turbulent boundary layer using Thermal Large Eddy Simulation, *Int. J. Heat Fluid Flow*, 29(6):1670–1678, 2008.
- A-[10] G. Brillant, F. Gupta et A. Pasturel, Investigation of Molybdenum and Caesium behaviour in uranium by ab initio calculations, *J. Phys. : Condens. Matter*, 21:285602, 2009.
- A-[11] F. Gupta, A. Pasturel et G. Brillant, Ab initio study of solution energy and diffusion of caesium in uranium dioxide, *J. Nucl. Mater.*, 385(2):368–371, 2009.
- A-[12] G. Brillant, Interpretation and modelling of fission product Ba and Mo releases from fuel, *J. Nucl. Mater.*, 397(1-3):40–47, 2010.
- A-[13] G. Brillant, C. Marchetto et W. Plumecocq, Ruthenium release from fuel in accident conditions, *Radiochim. Acta*, 98(5):267–275, 2010.
- A-[14] P. Giordano, A. Auvinen, G. Brillant, J. Colombani, N. Davidovich, R. Dickson, T. Haste, T. Kärkelä, J.S. Lamy, C. Mun, D. Ohai, Y. Pontillon, M. Steinbrück et N. Vér, Recent advances in understanding ruthenium behaviour under air-ingress conditions during a PWR severe accident, *Progress Nucl. Ener.*, 52(1):109–119, 2010.
- A-[15] F. Gupta, A. Pasturel et G. Brillant, Diffusion of oxygen in uranium dioxide : a first principles investigation, *Phys. Rev. B*, 81(1):014110, 2010.
- A-[16] J.-P. Van Dorsselaere, P. Chatelard, M. Cranga, G. Guillard, N. Trégourès, L. Bosland, G. Brillant, N. Girault, A. Bentaïb, N. Reinke et W. Luther, Validation status of the ASTEC integral code for severe accident simulation, *Nucl. Technol.*, 170(3):397–415, 2010.

- A-[17] G. Brillant, Models for the release from fuel of Ce, La, Sr, and Eu in accident conditions, *Progress Nucl. Ener.*, 53(1):125–131, 2011.
- A-[18] G. Brillant, F. Gupta et A. Pasturel, Fission products stability in uranium dioxide, *J. Nucl. Mater.*, 412(1):170–176, 2011.
- A-[19] F. Aulery, A. Toutant, G. Brillant, R. Monod et F. Bataille, Numerical simulations of sodium mixing in a T-junction, *Appl. Therm. Eng.*, 37:38–43, 2012.
- A-[20] G. Brillant, C. Marchetto et W. Plumecocq, Fission product release from nuclear fuel I. Physical modelling in the ASTEC code, *Ann. Nucl. Ener.*, 61:88–95, 2013.
- A-[21] G. Brillant, C. Marchetto et W. Plumecocq, Fission product release from nuclear fuel II Validation of ASTEC/ELSA on analytical and large scale experiments, *Ann. Nucl. Ener.*, 61:96–101, 2013.
- A-[22] R. Monod, G. Brillant, A. Toutant et F. Bataille, Dimensionless equations for conjugate heat transfers, *Int. Comm. Heat Mass Transfer*, - :soumis, 2012.

## 5.2.2 Publications dans des actes de conférences avec comité de lecture - Texte complet (14)

### 5.2.2.1 Conférences internationales (11)

- B1-[1] F. Bataille et G. Brillant, Large-eddy simulation of a turbulent boundary layer with blowing, In 4<sup>th</sup> ASME JSME Joint Fluids Engineering Conference, pages 1949–1959, Honolulu, USA, 2003.
- B1-[2] M. Michard, M. Ait Ameer, G. Brillant et F. Bataille, Experimental study of mixing between a heated turbulent flow and a cold airstream transpired through a porous wall, In 4<sup>th</sup> ASME JSME Joint Fluids Engineering Conference, pages 131–136, Honolulu, USA, 2003.
- B1-[3] G. Brillant, S. Husson et F. Bataille, Large Eddy Simulations of heat and mass transfers in case of non isothermal blowing, In W. Rodi et M. Mulas, éditeurs, *Engineering Turbulence Modelling and Experiments 6*, pages 751–760, Sardinia, Italy, May 2005.
- B1-[4] F. Bataille, G. Brillant et Y. Hussaini, Generalization of the eddy viscosity model - Application to a temperature spectrum, *Mathematical and Physical Theory of Turbulence*, volume 250 de *Lectures notes in Pure and Applied Mathematics*. Chapman and Hall/CRC, pages 125–130, 2006.



- B1-[5] A. Auvinen, G. Brillant, N. Davidovich, R. Dickson, G. Ducros, Y. Dutheillet, P. Giordano, M. Kunstar, T. Karkela, M. Mladin, Y. Pontillon, S. Seropian et N. Ver, Progress on ruthenium release and transport under air ingress conditions, In 2<sup>nd</sup> European Review Meeting on Severe Accident Research, pages S4-4, Karlsruhe, Germany, 2007.
- B1-[6] P. Giordano, Auvinen A., G. Brillant, J. Colombani, Davidovich N., R. Dickson, G. Ducros, T. Haste, T. Karkela, J.-S. Lamy, C. Mun, D. Ohai, Y. Pontillon, M. Steinbrück et N. Ver, Ruthenium behaviour under air ingress conditions : main achievements in the SARNET project, In 3<sup>rd</sup> European Review Meeting on Severe Accident Research, Nesseber, Bulgaria, 2008.
- B1-[7] F. Gupta, A. Pasturel et G. Brillant, Ab initio study of solution energy and diffusion of caesium in uranium dioxide, In EMRS Symposium N Nuclear Materials, Strasbourg, France, 2008.
- B1-[8] F. Aulery, A. Toutant, R. Monod, G. Brillant et F. Bataille, Numerical simulations of thermal fatigue due to turbulent fluctuations in a mixing Tee, In 16<sup>th</sup> Int. Solar Paces Concentrating Solar Power Symposium, pages 1-8, Perpignan, France, 2010.
- B1-[9] F. Roelofs, M. Rohde, I. Otic, G. Brillant, I. Tiselj, H. Anglart, B. Niceno, Y. Bartosiewicz, D. Angeli, W. Ambrosini, D. Lakehal, E. Baglietto, Hassan Y. et X. Cheng, Cross-cutting European Research for Single Phase Turbulence in Innovative Reactors, In NUTHOS-8, International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermo Hydraulics, Operation and Safety, page N8P0012, Shanghai, China, Oct. 2010.
- B1-[10] F. Roelofs, M. Rohde, I. Otic, G. Brillant, I. Tiselj, H. Anglart, B. Niceno, L. Bricteux, D. Angeli, W. Ambrosini, D. Lakehal, E. Baglietto, Hassan Y. et X. Cheng, European developments in single phase turbulence for innovative reactors, In 14<sup>th</sup> International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics, NURETH-14, Toronto, Canada, Sept. 2011.
- B1-[11] R. Monod, G. Brillant, A. Toutant et F. Bataille, Large eddy simulation of a turbulent periodic channel with conjugate heat transfer at low Prandtl number, In 6<sup>th</sup> European Thermal Sciences Conference, Eurotherm, Poitiers, France, Sept. 2012.

### 5.2.2.2 Conférences nationales (3)

- B2-[1] G. Brillant et Bataille, Simulation des grandes échelles d'un écoulement turbulent chauffé au-dessus d'une paroi plane poreuse soumise à de l'effusion,

Sciences et technologies thermiques face au XXI<sup>e</sup> siècle, Congrès français de thermique, SFT 2001, Nantes, France, 2001.

- B2-[2] F. Aulery, A. Toutant, R. Monod, G. Brillant et F. Bataille, Simulation des grandes échelles du faïeçage thermique dans un Té de mélange, Énergie solaire et thermique, Congrès français de thermique, SFT 2011, Perpignan, France, 2011.
- B2-[3] R. Monod, G. Brillant et F. Bataille, Étude numérique des fluctuations de température dans un Té de mélange, Énergie solaire et thermique, Congrès français de thermique, SFT 2011, Perpignan, France, 2011.

### **5.2.3 Publications dans des actes de conférences internationales avec comité de lecture - résumé et poster (4)**

- C-[1] L. Mathelin, G. Brillant, F. Bataille et A. Lallemand, Blowing impact on the wake of a circular cylinder, IUTAM, Marseille, France, 2000.
- C-[2] F. Gupta, A. Pasturel et G. Brillant, Ab initio calculations of caesium's incorporation energies in UO<sub>2</sub>, MMSNF-5 Workshop, Nice, France, 2006.
- C-[3] J. Bonnin, G. Ducros, M.P. Ferroud-Plattet, A. Gallais-During, Y. Pontillon, G. Brillant et F. Andreo, Objectives and progress of the VERDON programme, devoted to fission product release from irradiated UO<sub>2</sub> and MOX fuels in severe accident conditions, Nuclear Energy for New Europe 2008, Portoroz, Slovenia, 2008.
- C-[4] C. Mun, T. Kärkela, N. Vér, D. Corbin, G. Brillant et M. Steinbrück, Main achievements of the European R&D on the issue of air ingress during a LWR severe accident, EUROSAFE, Paris, France, 2008.

### **5.2.4 Présentations lors de séminaires (13)**

#### **5.2.4.1 Séminaires internationaux (9)**

- D1-[1] G. Brillant et P. Taylor, Fuel oxidation and fission product release in air, 3<sup>rd</sup> ST OXIDEN meeting, Aix en provence, France, 2006.
- D1-[2] G. Brillant, Fission product release under air ingress ELSA calculation of AECL tests MCE1 and HCE3, 4<sup>th</sup> ST OXIDEN meeting, Espoo, Finland, 2007.
- D1-[3] G. Brillant, Interpretation and modelling of fission products behaviour in VERCORS tests, International VERCORS Seminar, Gréoux-les-bains, France, 2007.

- D1-[4] G. Brillant, ASTEC/ELSA calculations of AECL tests : HCE1-M17, HCE2-LM4, UCE12-T02 and UCE12- T15, 5<sup>th</sup> ST OXIDEN meeting, Aix en provence, France, 2008.
- D1-[5] I. Ivanov, S. Pignet, J. Papin et G. Brillant, IRSN activities on SIMMER, 14<sup>th</sup> SIMMER review meeting, Karlsruhe, Germany, 2008.
- D1-[6] G. Brillant, J. Papin et I. Pignet, S. Ivanov, IRSN activities related to SIMMER, 15<sup>th</sup> SIMMER review meeting, O-arai, Mito, Japan, 2010.
- D1-[7] G. Brillant, Calculations of separated test cases with SIMMER-III, 15<sup>th</sup> SIMMER review meeting, O-arai, Mito, Japan, 2010.
- D1-[8] G. Brillant, Calculation of the accident scenario initiated by a Total Instantaneous Blockage, CP-ESFR meeting, Chatou, France, 2010.
- D1-[9] G. Brillant, Modelling of fission product release, Final Phebus FP seminar, Aix-en-Provence, France, 2012.

#### 5.2.4.2 Séminaires nationaux (4)

- D2-[1] F. Bataille, M. Michard et G. Brillant, Échanges thermiques au voisinage d'une paroi, Mécanique des fluides hautes température, Aix en provence, France, 2002.
- D2-[2] S. Husson, G. Brillant et F. Daumas-Bataille, Turbulent inlet for thermal large eddy simulations, Colloque en l'honneur du Professeur Jean Mathieu, Lyon, France, 2004.
- D2-[3] F. Bataille, S. Husson et G. Brillant, Simulation des grandes échelles et thermique, Journée AUM, La Rochelle, France, 2006.
- D2-[4] G. Brillant et J. Papin, La synergie expertise-recherche au temps de Superphénix, Séminaire sur la sûreté des réacteurs à neutrons rapides, Fontenay-aux-Roses, 2010.

#### 5.2.5 Rapports de recherche et rapports techniques (18)

- E-[1] G. Brillant, Présentation d'une méthode pour créer des fluctuations turbulentes à l'entrée d'un domaine de calcul pour Trio U / PRICELES, Rapport technique DEN/DER/SSTH/LMDL-2002012, CEA, 2002.
- E-[2] G. Brillant, Interprétation et modélisation préliminaire du relâchement de Ba, Mo, Ru, Cs depuis UO<sub>2</sub> taux de combustion moyen, Rapport technique SEMIC-2005-245, IRSN, 2005.

- E-[3] G. Brillant, Interprétation préliminaire du relâchement du césium depuis du combustible MOX, Rapport technique SEMIC-2005-272, IRSN, 2005.
- E-[4] G. Brillant, Analyse de l'oxydation du combustible et du relâchement des produits de fission sous air lors des essais MCE1 et HCE3, Rapport technique SEMIC-2006-394, IRSN, 2006.
- E-[5] G. Brillant, Complément à l'analyse de l'oxydation du combustible et du relâchement des produits de fission sous air lors des essais MCE1 et HCE3, Rapport technique SEMIC-2006-393, IRSN, 2006.
- E-[6] G. Brillant, Calculs du relâchement des produits de fission depuis du combustible  $UO_2$  taux de combustion moyen lors des essais VERCORS, Rapport technique SEMIC-2006-392, IRSN, 2006.
- E-[7] G. Brillant, Relâchement de Fe, Ni, Cr, Zr à partir des matériaux de structure - Modélisation des pressions partielles de vapeur, Rapport technique SEMIC-2006-045, IRSN, 2006.
- E-[8] G. Brillant, Modélisation du relâchement des produits de fission peu volatils Cérium, Lanthane, Strontium et Europium, Rapport technique SEMIC-2007-382, IRSN, 2007.
- E-[9] G. Brillant, Modélisation de l'oxydation et de la réduction du combustible sous vapeur d'eau et sous air, Rapport technique SEMIC-2007-383, IRSN, 2007.
- E-[10] G. Brillant, Qualification des modèles d'oxydation d' $UO_2$  et du relâchement du ruthénium sous air, Rapport technique SEMIC-2007-384, IRSN, 2007.
- E-[11] G. Brillant, Fission products release modelling : requirements for micro-analysis of VERCORS fuel samples, Rapport technique SEMIC-2007-160, ISTEP-49, IRSN, 2007.
- E-[12] G. Brillant, Baryum : stabilité thermodynamique dans le combustible et modélisation du relâchement hors du combustible, Rapport technique SEMIC-2008-165, IRSN, 2008.
- E-[13] G. Brillant, Validation des modèles de relâchements des produits de fission Cs, Mo, Ba, Ru, Ce, Sr, La et Eu, Rapport technique SEMIC-2008-199, IRSN, 2008.
- E-[14] G. Brillant, Relâchement des produits de fission lors des essais VERCORS : cas des combustibles  $UO_2$  taux de combustion élevés et MOX, Rapport technique SEMIC-2008-354, IRSN, 2008.
- E-[15] G. Brillant, Contribution du DPAM/SEMIC au GP CR N2, Rapport technique SEMIC-2009-084, IRSN, 2009.

- E-[16] G. Brillant, Preliminary calculations of separated test cases with SIMMER-III, Rapport technique SEMIC-2009-412, IRSN, 2009.
- E-[17] G. Brillant, Review of molten materials freezing models, Rapport technique SEMIC-2010-297, IRSN, 2010.
- E-[18] G. Brillant, Sodium thermalhydraulics in ASTEC/CESAR, Rapport technique SAG-2012-000, IRSN, 2012.

# Annexes

## Tirés à part des principales publications

G. Brillant, S. Husson et F. Bataille, Subgrid-scale diffusivity : wall behaviour and dynamic methods, *J. Appl. Mech., Trans ASME*, 73(3), 360-367, 2006.

doi: 10.1115/1.2173005

G. Brillant, S. Husson et F. Bataille, Experimental study of the blowing impact on a hot turbulent boundary layer, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 51(7-8), 1996-2005, 2008.

doi: 10.1016/j.ijheatmasstransfert.2007.06.022

F. Aulery, A. Toutant, R. Monod, G. Brillant et F. Bataille, Numerical simulations of sodium mixing in a T-junction, *Appl. Therm. Eng.*, 37, 38-43, 2012.

doi: 10.1016/j.applthermaleng.2011.12.044

G. Brillant et A. Pasturel, Study of Barium and Zirconium stability in  $\text{UO}_{2\pm x}$  by density functional calculations, *Phys. Rev. B*, 77(18), art. 184110, 2008.

doi: 10.1103/PhysRevB.77.184110

G. Brillant, C. Marchetto et W. Plumecocq, Ruthenium release from fuel in accident conditions, *Radiochim. Acta*, 98(5), 267-275, 2010. doi: 10.1524/ract.2010.1719



Collection HDR

Mémoire d'habilitation à diriger des recherches

# Écoulements turbulents anisothermes et relâchement de produits de fission en situation accidentelle sur un réacteur nucléaire

Par Guillaume BRILLANT,  
Laboratoire d'expérimentation en mécanique  
et matériaux (IRSN/PSN-RES/SEREX/LE2M)

L'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN) est un organisme public d'expertise et de recherche pour la sûreté nucléaire et la radioprotection. Il intervient comme expert en appui aux autorités publiques. Il exerce également des missions de service public qui lui sont confiées par la réglementation. Il contribue notamment à la surveillance radiologique du territoire national et des travailleurs, à la gestion des situations d'urgence et à l'information du public. Il met son expertise à la disposition de partenaires et de clients français ou étrangers.

ISBN 978-2-9545237-3-6

#### **Siège social**

31, avenue de la Division Leclerc  
92260 Fontenay-aux-Roses  
RCS Nanterre B 440 546 018

**Téléphone** +33 (0) 1 58 35 88 88

#### **Courrier**

BP 17 - 92262 Fontenay-aux-Roses Cedex

**Site internet** [www.irsn.fr](http://www.irsn.fr)

**IRSN**

INSTITUT  
DE RADIOPROTECTION  
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE