

Méthodes de fusion de bains d'oxydes et de métaux ayant un liquidus entre 1800 et 3000 K.

Application à la recherche sur les accidents graves de réacteurs nucléaires.

Christophe JOURNEAU*, Manon BOTTIN, Viviane BOUYER, Nathalie CASSIAUT-LOUIS, Pascal FOUQUART, Jean-François HAQUET, Romuald MALLET, José MONERRIS, Pascal PILUSO, Marc VALERIAN, Guy WILLERMOZ

CEA, DEN, Cadarache, SMTA, F13108 St Paul lez Durance

* (auteur correspondant : christophe.journeau@cea.fr)

Résumé - La réalisation de programmes de recherche sur les accidents graves de réacteurs nucléaires, nécessite l'étude expérimentale polyphasique de l'interaction du corium, liquide formé de la fusion du combustible nucléaire, avec des matériaux et des fluides. Plusieurs installations expérimentales réalisent la fusion du corium et la simulation de sa puissance radiologique résiduelle. Les différentes technologies de fusion du corium seront présentées ainsi que leurs avantages et inconvénients : chauffage neutronique, fusion chimique de type SHS, chauffage électrique direct, chauffage par induction (avec suscepteur, creuset froid ou creuset sacrificiel), chauffage par résistances (y compris les arcs plasma).

1. Introduction

La réalisation de programmes de recherche sur les accidents graves de réacteurs nucléaires, tels que l'accident de Fukushima Daïchi [1], nécessite l'étude expérimentale du corium, liquide formé de la fusion du combustible nucléaire, de sa gaine et de matériaux de structure, et de ses interactions avec des fluides et des matériaux. Le liquidus du corium s'étendant entre 1800 K et 3000 K selon sa composition, ces expérimentations se déroulent à de hautes températures et on observe des couplages forts entre les divers phénomènes. Ceci, ajouté aux caractéristiques physico-chimiques de l'oxyde d'uranium, réduit la possibilité de trouver des matériaux simulants respectant les lois de similitudes pertinentes [2] et implique la réalisation d'essais en matériaux dits prototypiques (ayant la même composition chimique que le corium mais une composition isotopique différente ; en pratique, on utilise des mélanges à base d'uranium appauvri).

Après un bref descriptif des caractéristiques des bains de corium qui peuvent apparaître lors d'un scénario d'accident grave, on présentera les diverses techniques de chauffage haute température qui ont été employées pour la recherche expérimentale sur le corium ainsi que leurs avantages et inconvénients : chauffage neutronique, fusion chimique de type Self-propagating High-temperature Synthesis (SHS), chauffage électrique direct, chauffage par induction (avec suscepteur, creuset froid ou creuset sacrificiel), chauffage par résistances (y compris les arcs plasma).

2. Caractéristiques du Corium

Lors d'un accident grave de réacteur nucléaire à eau, l'ébullition du caloporteur entraîne un dénoyage du cœur. La puissance radioactive résiduelle, ainsi que la chaleur due aux oxydations exothermiques ne peuvent plus être évacuées et la température du combustible peut augmenter jusqu'à la formation d'un bain. Entre 1200 et 2100 K, les constituants

métalliques du cœur (composants des barres de commande, acier de structure, gainage en alliage de zirconium) fondent, suivi par les constituants oxydes (oxydes d'uranium du combustible et de zirconium, issu de l'oxydation des gaines). Bien que le point de fusion du dioxyde d'uranium soit vers 3120 K, la présence d'eutectiques peut amener une fusion significative plusieurs centaines de degrés en dessous de cette valeur. Ce bain liquide, appelé *corium*, va se mélanger avec des matériaux de structures, en particulier avec le béton du puits de cuve, en cas d'écoulement hors de la cuve [3]. Dans ce cas le liquidus du bain pourra se trouver entre 1800 et 2800 K

La présence d'une lacune de miscibilité entre phases oxydes et métalliques implique la présence de deux phases liquides qui peuvent soit former une émulsion, soit sédimenter plus ou moins complètement en deux couches de liquide [4] **Erreur ! Source du renvoi introuvable.**

3. Panorama des méthodes de chauffage du corium à hautes températures

De nombreuses techniques de chauffage ont été utilisées pour réaliser des expériences mettant en œuvre des bains de corium. Nous allons les passer en revue en mettant en avant leurs avantages et leurs inconvénients. Il convient de noter que ces expérimentations recouvrent deux besoins de chauffage : d'une part, il est nécessaire de fabriquer un bain de corium en fondant une charge initialement à basse température, d'autre part, pour réaliser des essais de longue durée, simulant un état quasi-stationnaire, il est nécessaire de simuler la puissance radiologique résiduelle. Pour l'étude de phénomènes transitoires rapides (interaction corium-eau, étalement,...), l'inertie thermique du corium est telle qu'il n'est pas nécessaire de simuler la puissance résiduelle.

Afin de fixer quelques ordres de grandeur, l'enthalpie nécessaire pour mener un kilogramme d' UO_2 de la température ambiante à l'état liquide est de 1,4 MJ/kg [6]. La puissance résiduelle varie entre environ 0,5 kW/kg d'uranium 1 h après l'arrêt de la réaction nucléaire et 0,2 kW/kg d'uranium 1 jour après [7].

3.1. Chauffage neutronique

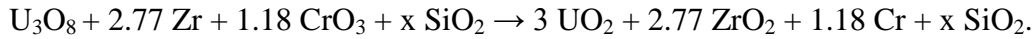
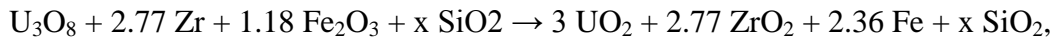
La façon la plus proche de la réalité pour chauffer du corium consiste à activer des réactions nucléaires dans les atomes d'uranium. Ceci peut être réalisé dans des réacteurs de recherche. Lors de tels essais, un dispositif d'essai comprenant soit des crayons de combustible, soit des débris de combustible et de matériaux de structure est placé à l'intérieur du cœur du réacteur. La chaleur produite par les réactions nucléaires permet de fondre du corium et, éventuellement, de simuler la puissance résiduelle.

L'inconvénient majeur de cette approche est la complexité et le coût lié à l'utilisation d'un réacteur de recherche et à l'irradiation des échantillons de corium qui en résulte. De plus, les caractéristiques des réacteurs d'essais impliquent une limitation de la taille des sections d'essais (121 mm de diamètre externe, 73 mm de diamètre utile pour les essais Phébus PF [8] ; environ 2 fois plus pour les essais EAGLE [9]). Par contre, la représentativité du chauffage, la capacité d'insérer très rapidement de l'énergie (fusion de 8 kg d' UO_2 en moins de 5 s pour l'essai EAGLE WD par exemple) et la possibilité d'étudier les relâchements des produits de fission en font un outil irremplaçable pour certaines thématiques.

3.2. Fusion chimique de type SHS

Alors que les gammes de température à atteindre ne permettent pas la mise en œuvre d'un chauffage chimique par brûleurs, d'autres procédés de fusion chimique permettent d'atteindre

la fusion du corium. Ce sont des techniques adaptées de l'aluminothermie utilisant le caractère exothermique de réactions d'oxydo-réduction afin d'obtenir les bains d'oxydes et de métal désirés. Ces techniques de Synthèse Autopropagée à Haute Température (SHS) utilisent par exemple les réactions [10]:



La réaction est déclenchée en chauffant électriquement une zone restreinte de la charge, puis le front de réaction se propage dans la charge. Des masses dépassant la tonne de corium liquide ont été produites par ce procédé dans le cadre des programmes MACE et CCI au Laboratoire National d'Argonne, Etats-Unis [11]. Un des avantages de cette technique est la rapidité de la fusion (quelques dizaines de secondes, y compris pour des charges d'une tonne) et la faible quantité d'énergie consommée. Ses inconvénients sont le fait qu'il n'est pas possible d'arrêter la réaction, une fois initiée, et que toutes les proportions entre phases et constituants ne peuvent générer une chaleur suffisante pour porter la charge à la fusion.

3.3. Chauffage électrique direct

Alors que les oxydes sont très peu conducteurs à température ambiante, leur conductivité est significative à haute température, surtout à l'état liquide. De ce fait, il est possible de chauffer le corium par effet Joule. Deux approches différentes ont été utilisées :

- Utiliser l'effet Joule pour simuler la puissance résiduelle dans un bain préalablement fondu. C'est par exemple ce qui est utilisé au laboratoire national d'Argonne [11] où des électrodes en tungstène sont disposées de part et d'autre du bain de corium (obtenu par réaction thermitique). Cette technique est très performante pour des bains d'oxydes (résistifs et compatibles avec le tungstène) et permet une mesure simple et fiable de la puissance générée par effet Joule dans le bain. Par contre l'acier liquide dissout le tungstène (et les autres métaux réfractaires), empêchant l'utilisation de cette technique pour des bains d'oxyde et de métal. De plus, il faut noter que, vu les différences importantes de conductivité électrique entre le bain liquide et les croûtes solides, le courant ne passe que par le liquide et donc la puissance n'est générée que dans le bain liquide, contrairement au cas réel, où la radioactivité n'est pas affectée par la solidification du corium.
- L'effet Joule peut aussi servi à fondre une charge de corium depuis la température ambiante. Cette technique a, par exemple, été utilisée dans le four de l'installation FARO [12] où plusieurs centaines de kilogrammes de corium étaient fondus et amenés à plus de 2700°C. La résistivité du corium oxyde varie de plus de 6 ordres de grandeurs entre l'état initial et l'état final. De plus, la très faible conductivité thermique de la charge initiale entraîne des temps très longs (~10 h) pour que la chaleur diffuse à partir de l'arc électrique où le chauffage commence. Finalement, comme précédemment, cette technologie ne permet pas de fondre des compositions comportant une phase métallique du fait de l'attaque des électrodes en tungstène par l'acier fondu.

Dans ces deux approches, l'utilisation d'électrodes métalliques (généralement en tungstène) à de hautes températures implique une limitation de ces dispositifs à des atmosphères réductrices ou neutres afin d'éviter l'oxydation des électrodes.

3.4. Chauffage radiatif

Une autre approche consiste à utiliser des résistances chauffantes. Du fait des hautes températures et du caractère corrosif des bains, il est impossible de plonger ces résistances dans le bain. La solution retenue est donc d'utiliser un transfert radiatif de chaleur entre des résistances et la charge à fondre.

3.4.1. Résistors métalliques

Des résistors en métaux réfractaires (généralement du tungstène) peuvent être utilisés pour mener la charge de corium à 3000°C. Par exemple, dans le four KROTOS [13], un creuset d'un litre de capacité est disposé à l'intérieur d'un résistor cylindrique en tungstène. Huit écrans concentriques, en tungstène, molybdène et acier, permettent de réduire les pertes thermiques (Figure 1). Néanmoins, le rendement de chauffage est faible (de l'ordre de quelques pourcents) et il faut une alimentation électrique de 130 kW (sous 30 V triphasés) pour fondre environ 5 kg de corium en 2 à 3 heures. L'utilisation de pièces métalliques implique une atmosphère neutre ou réductrice. Notons qu'on a observé de meilleurs résultats avec de l'hélium qu'avec de l'argon [13].

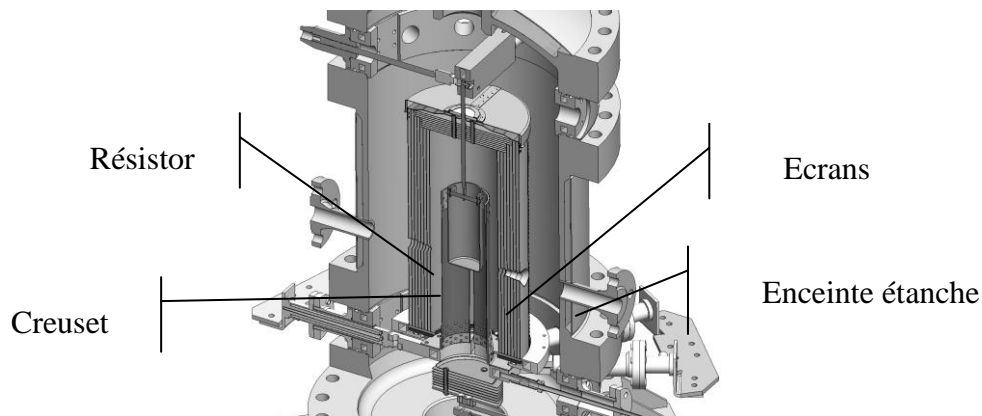


Figure 1 : Four résistif KROTOS

3.4.2. Arc plasma

Les arcs plasmas constituent un type particulier de résistors dont la principale caractéristique est, n'étant pas à l'état solide, de pouvoir atteindre des températures très élevées. Basé sur les recherches du CNRS Odeillo [14], le four VULCANO [15] est un four rotatif dans lequel la charge est centrifugée et est chauffée par un arc plasma d'une puissance de 100 à 200 kW créé entre deux électrodes en graphite (le long de l'axe du four cylindrique). Un auto-creuset est généré en chauffant une première charge, dite de culottage, jusqu'à obtenir une fusion partielle. Cette approche permet de limiter l'apport d'impuretés dans la charge. Le versement du bain fondu s'effectue par basculement. Du fait du foisonnement des poudres de la charge, le volume du bain est très inférieur à celui de la poudre et il s'avère nécessaire de réaliser 2 passes de chauffage pour remplir le four.

Ce four a permis de fondre et de verser des quantités de corium comprises entre 20 et 60 kg à des températures entre 1800 et 2700°C. En fait, les températures obtenues dans le four sont généralement voisines de la température de liquidus du mélange et dépendent donc de la composition de la charge. Les avantages de ce type de dispositif sont la possibilité de fondre une grande gamme de compositions (néanmoins il n'est pas possible de fondre des mélanges contenant plus de 5% de métal) et de travailler en air. Par contre, le pilotage de ce type de four est relativement complexe, car il fonctionne dans un régime thermique instationnaire, et,

en comptant les phases de refroidissement entre chaque phase de chauffage, il faut compter une dizaine d'heures (réparties sur 2 jours) avant de fondre et couler le corium.

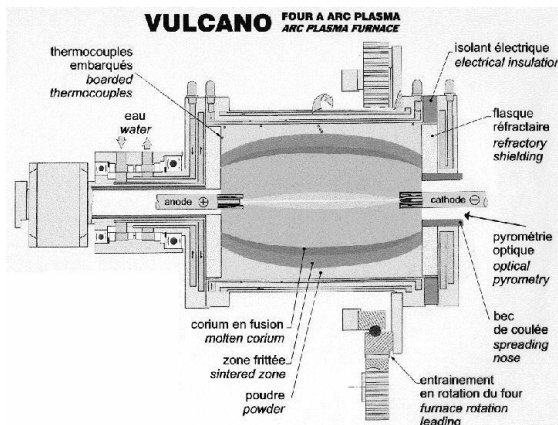


Figure 2 : Four VULCANO à arc plasma

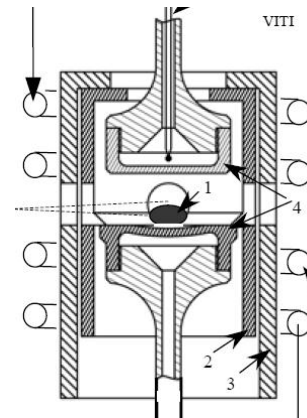


Figure 3 : Schéma de principe de VITI [16]
Chauffage d'une goutte sustentée via un suscepteur. 1 : goutte; 2 : suscepteur ; 3 : protection thermique ; 4 : diffuseurs

3.5. Chauffage par induction

Les procédés de chauffage par induction utilisent l'effet Joule créé par les courants induits. Lorsqu'on utilise un suscepteur, le principe de chauffage est voisin de celui d'un résistor, si ce n'est qu'il n'est pas relié directement à l'installation électrotechnique. Dans d'autres cas, ce sont les champs induits dans le bain de corium qui vont générer la puissance thermique.

3.5.1. Chauffage via suscepteur

Le corium peut être chauffé par un suscepteur, pièce conductrice elle-même chauffée par le champ induit. Ceci permet de séparer thermiquement les spires refroidies de l'inducteur du suscepteur et du corium. Par exemple dans l'installation VITI [16][17][18], un inducteur solénoïdal relié à un générateur haute fréquence (30 kHz) induit des courants dans un suscepteur en graphite. Ce dernier sert à chauffer quelques grammes de corium disposés soit dans un creuset [17], soit formant une goutte en sustentation aérodynamique au-dessus d'un diffuseur poreux (Figure 3).

Une autre approche consiste à utiliser le creuset comme suscepteur (« creuset chaud »). C'est par exemple le cas du four VG135 [18] du centre nucléaire national du Kazakhstan où le creuset en graphite sert de suscepteur. Le problème principal de ce type de chauffage est de garantir l'absence d'interactions chimiques entre le creuset (qui est l'élément le plus chaud du four) et le bain de corium.

3.5.2. Creuset froid

Une technique évitant les interactions entre le creuset et la charge est celle du creuset froid [19]. Un ensemble de tubes métalliques refroidis assure la formation d'un auto-creuset qui maintiendra le bain de liquide, tout en assurant une transparence électromagnétique permettant de coupler directement avec la charge : les courants induits dans la charge échauffent celle-ci par effet Joule. La profondeur de pénétration électromagnétique dépend de la fréquence et de la résistivité électrique du corium (typiquement comprise pour les phases

oxydes entre 10^{-4} et 10^{-2} $\Omega.m$ selon la composition et la température, de l'ordre de 10^{-7} $\Omega.m$ pour l'acier liquide) et de la perméabilité magnétique.

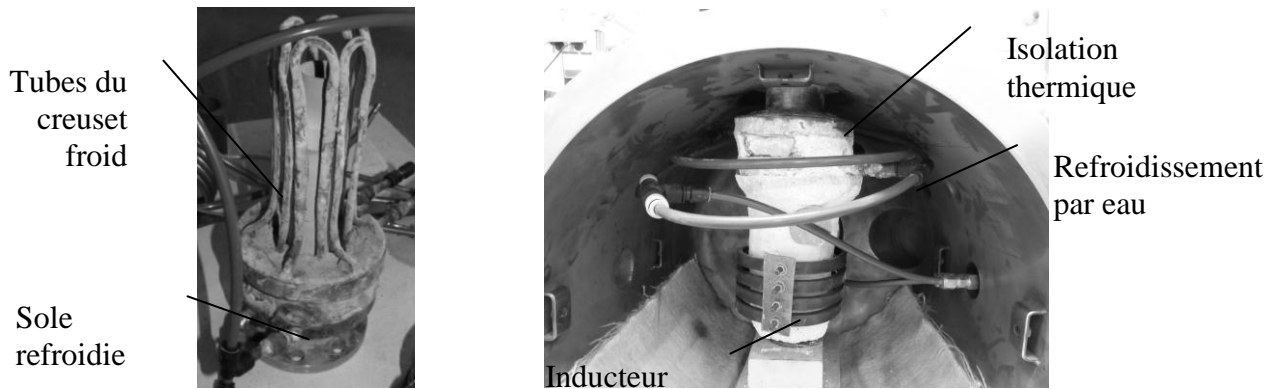


Figure 4 : Exemple de creuset froid dans l'installation VITI

Ce type de chauffage est utilisé soit en régime transitoire pour fondre du corium, soit en régime permanent pour simuler la puissance résiduelle. Il permet de chauffer tant des oxydes que des métaux ou leur mélange. Les avantages du chauffage par induction en creuset froid sont la rapidité de chauffage, dû à la possibilité d'obtenir des densités de chauffage élevées, la possibilité de générer la chaleur dans la masse de la charge (en adaptant la profondeur de pénétration électromagnétique), la formation d'un auto-creuset qui empêche la pollution du bain par son contenant. Par contre, l'estimation précise de la puissance effectivement injectée (et dans les cas de bains multiphasiques de sa répartition spatiale) est relativement complexe et entachée d'incertitudes. De plus, comme pour le chauffage direct par effet Joule, il faut noter que les croûtes solides ne sont pas chauffées et que la puissance n'est générée que dans une partie de la phase fondue. Néanmoins, on observe que plus de la moitié des installations en corium actuellement en fonctionnement dans le monde utilisent des creusets froids (par ex. [20][21][22]).

3.5.3. Creuset sacrificiel

Une solution voisine consiste à utiliser un creuset isolant, refroidi par les spires de l'inducteur et à coupler avec le bain de corium. Le creuset pourra être ablaté, jusqu'à atteindre l'épaisseur telle que le flux de chaleur pouvant être évacué en régime permanent par conduction dans le creuset égale le flux convectif local issu du bain de corium. Cette approche est par exemple utilisée pour des expériences relatives à l'interaction entre le corium et des matériaux tels que le béton. Dans l'installation VULCANO-ICB [23], le corium est fondu dans le four à arc plasma [15], versé dans une section d'essais en béton dans laquelle est creusée une cavité hémicylindrique (*Figure 5*). Un inducteur entoure la section d'essai et permet de générer une puissance thermique dans le corium. L'ablation du béton par le corium est suivi par thermocouples tout au long des quelques heures de l'essai. La géométrie hémicylindrique a été choisie afin d'optimiser le couplage par comparaison avec une géométrie cylindrique coaxiale pour laquelle le bain serait près de l'axe de symétrie et donc dans une région où les champs magnétiques sont faibles, dès lors qu'une épaisseur significative (> 20 cm) de béton doit être prévue pour l'ablation.

Ce dispositif peut aussi être utilisé avec des bains contenant des oxydes et des métaux. A la fréquence de 45 kHz, plus de 95% de la puissance est générée dans la phase oxyde liquide, ce qui est conforme à la répartition de la puissance radioactive en cas d'accident grave. L'efficacité du couplage inductif varie au cours de l'essai, le mélange du béton fondu avec le corium modifiant significativement la conductivité électrique du bain. L'estimation de la

puissance effectivement déposée dans le bain est assez délicate, surtout en présence de deux phases liquides de conductivité très différentes.

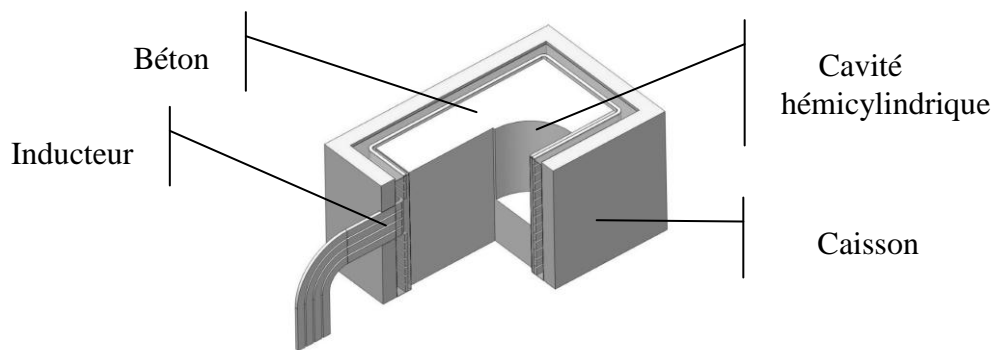


Figure 5 : Veine d'essai VULCANO ICB avec inducteur

4. Conclusion

De nombreuses techniques de chauffage ont été mises au point pour réaliser des expériences en corium pour la recherche en sûreté nucléaire : chauffage neutronique, chimique ou électrique. D'autres techniques telles que les fours solaires ou les fours à image n'ont pas été choisies, en particulier pour les problèmes de confinement des matières nucléaires et de production d'aérosols. De même le chauffage laser ou le bombardement électronique qui ne permettent que de chauffer de petites masses n'ont pas été décrits ici. Il convient de noter que chaque technologie a ses avantages et ses inconvénients.

Actuellement, le CEA a lancé l'avant-projet d'une nouvelle installation (PLINIUS-2 [24]) de plusieurs centaines de kilogrammes de corium pour laquelle nous étudions le chauffage thermitique et l'induction avec creuset froid.

Références

- [1] R. Gauntt et al., *Fukushima Daiichi Accident Study (Status of April 2012)*, Rapport public Sandia National Laboratory SAND2012-6173 (2012).
- [2] C. Journeau, P. Piluso, G. Cognet, D. Magallon, J.-M. Seiler, Importance of Prototypic-Corium Experiments for Severe Accident Research, *Proc. 9th Int Conf. Nucl. Eng., ICON9*, Nice (2001).
- [3] D. Jacquemain et al., *Les accidents de fusion du cœur des réacteurs nucléaires de puissance, Etat des connaissances*, edp sciences (2013).
- [4] D.F. Tsurikov, V.F. Strizhov, S.V. Bechta, V.N. Zagriazkin, N.P. Kiselev, *Main Results of the MASCA 1 and 2 Projects*, RRC Kurchatov Institute, Moscou (2007).
- [5] C. Journeau, J.M. Bonnet, E. Boccaccio, P. piluso, J. Monerri, M. Breton, G. Fritz, T. Sevon, P. H. Pankakoski, S. Holmström, J. virta, European Experiments on 2D Molten Core Concrete Interaction: HECLA and VULCANO, *Nucl. Technol.*, 170 (2010), 189-200.
- [6] J.K. Fink, M.C. Pietri, *Thermophysical Properties of Uranium Dioxide*, Rapport public du Laboratoire National d'Argonne, ANL/RE-97/2 (1997).
- [7] M. Baichi, *Contribution à l'étude du corium d'un réacteur nucléaire accidenté: aspects puissance résiduelle et thermodynamique des systèmes U-UO₂ et UO₂-ZrO₂*, Thèse de doctorat, INPG Grenoble (2001).
- [8] P. March, B. Simondi-Teisseire, Overview of the facility and experiments performed in Phébus FP, *Ann. Nucl. Energ.*, 61 (2013), 11-22.

- [9] K. Konishi et al., The result of a wall failure in-pile experiment under the EAGLE project, *Nucl. Eng. Des.*, 237 (2007) 2165-2174.
- [10] P. Piluso, K. Mwamba, C. Journeau, Uranothermitic process as an efficient SHS process to synthesize severe accident nuclear materials, *Int. J. Self-propag. High-temp. Synth.*, 18 (2009), 241-251.
- [11] M.T. Farmer, B.W. Spencer, D.J. Kilsdonk, R.W. Aeschlimann, Status of large scale MACE core coolability experiments, *Proc. OECD Wkshp Ex-Vessel Debris Coolability*, Karlsruhe, Allemagne (1999).
- [12] H. Hohmann, D. Magallon, H. Schins, R. Zeyen, H. Laval, A. Benuzzi, Contribution to FBR accident analysis: the FARO programme at JRC Ispra, *Proc Int Conf Fast Reactor Safety*, Guernsey (1986).
- [13] I. Huhtiniemi, H. Hohmann, D. Magallon, FCI experiments on the corium/water system, *Nucl. Eng. Des.*, 177 (1997), 339-349.
- [14] L. Fulcheri, *Fusion d'un matériau poreux soumis à un flux surfacique intense. Application à la caractérisation énergétique d'un réacteur rotatif à source plasma*, Thèse de Doctorat de l'Université de Perpignan (1988).
- [15] C. Jégou, G. Cognet, A. Roubaud, J.M. Gatt, G. Laffont, F. Kassabji, Plasma transferred arc rotary furnace for corium melting, *J. High Temp. Mater. Proc.*, 1 (1998), 409-420.
- [16] D. Grishchenko, P. Piluso, Recent progress in the gas-film levitation as a method for thermophysical properties measurements: application to $ZrO_2-Al_2O_3$ system, *High Temp.-High Press.*, 40 (2011) 127-149.
- [17] K. Frolov, C. Journeau, P. Piluso, M. Duclot, Electrochemical determination of Oxidic melt diffusion coefficients, *Int. J. Thermophys.*, 26 (2005), 1181-1192.
- [18] K. Plevacova, C. Journeau, P. Piluso, V. Zhdanov, V. Baklanov, J. Poirier, Zirconium carbide coating for corium experiments related to water-cooled and sodium-cooled reactors, *J. Nucl. Mater.*, 414 (2011), 23-31.
- [19] Y. B. Petrov, D. G. Ratnikov, *Creusets Froids* [en Russe], Metallurgiya, Moscou (1972)
- [20] J.H. Song, BT Min, JH Kim, HW Kim, SW Hong, SH Chung, An electromagnetic and thermal analysis of cold crucible melting, *Int. Comm. Heat Mass Transfer*, 32, (2005) 1325-1336.
- [21] S.A. Smirnov, V.S. Granovsky, S. Bechta, DNS of Molten corium pool inductively heated in cold crucible, *Proc. OECD/NEA MASCA2 Seminar*, Aix en Provence (2007).
- [22] P.M. Rao, Numerical Analysis on Induction Heating Behavior of Fast Reactor Core Materials, soulis à l'*Int. J. Therm. Sci.* (2014).
- [23] C. Journeau, P. Piluso, P. Correggio, L. Ferry, G. Fritz, J.F. Haquet, J. Moneris, J.M. Ruggieri, M. Sanchez-Brusset, C. Parga, Contributions of the VULCANO experimental programme to the understanding of MCCI phenomena, *Nucl. Eng. Technol.*, 44(2012), 261-272.
- [24] G. Willermoz, PLINIUS-2: A versatile platform for severe accident mitigation device and simulation assessment, *ICAPP'2014*, Charlotte, NC, USA (2014).

Remerciements

Les auteurs tiennent à remercier MM. Cognet, Jégou, Laffont et Roubaud qui ont initié cette réflexion il y a une vingtaine d'années. P. Chellapandi (Centre Indira Gandhi de Recherche Atomique) est remercié pour la fourniture du creuset froid de la *Figure 4*.