

# Étude expérimentale et numérique de la fusion de l'alliage Zamak (Zn-4Al) utilisé comme matériau à changement de phase (MCP) dans une enceinte fermée en acier inoxydable

## Experimental and numerical study of melting of Zamak (Zn-4Al) alloy used as phase change material (PCM) in closed Stainless Steel box

Judy ROSSO<sup>1,3</sup>, Simon LI<sup>2</sup>, Rémi SANSON<sup>1</sup>, Frederic TOPIN<sup>3</sup>, Grégory LARGILLER<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>Univ. Grenoble Alpes, CEA, LITEN, DTCH, Thermal Storage Laboratory 17 rue des Martyrs, F-38054 Grenoble Cedex 9, France

<sup>2</sup>CEA-Cadarache, 13108 Saint-Paul-lez-Durance 13

<sup>3</sup>Aix Marseille Université, CNRS IUSTI, Marseille, France

\*(Corresponding author: gregory.largiller@cea.fr)

**Résumé** – Le réacteur ATRIUM introduit un système de stockage modulaire passif comme dispositif de sécurité innovant, utilisant un matériau à changement de phase (MCP) métallique comme dissipateur thermique. Ce travail vise à évaluer la faisabilité du système de stockage et à développer un modèle numérique décrivant son fonctionnement. Un dispositif expérimental représentatif d'une unité du système de stockage a été mis au point pour tester la fusion du Zamak (Zn-4Al) à l'intérieur d'une enceinte en acier inoxydable (SS430). Les résultats obtenus apportent des informations sur la dynamique de fusion au sein de l'enceinte et sur l'interaction entre l'acier inoxydable de la paroi et le MCP fondu.

**Abstract** - The ATRIUM reactor introduces the design of a passive modular storage as an innovative safety feature, employing a metallic phase change material (PCM) as a heat sink. The work presented is part of a study that aims at investigating the feasibility of the storage system and develop a numerical model to describe its working behavior. An experimental setup representative of a single unit of the storage system is developed to test the melting of Zamak (Zn-4Al) inside a stainless steel (SS430) box. The results obtained give valuable insights on the melting dynamics inside an enclosure and the interaction between the SS of the wall of the box and the molten PCM on the inside.

### 1. Introduction

La conception du réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium (RNR-Na) ATRIUM, introduit des innovations technologiques pour répondre aux exigences de sûreté [1]. Parmi celles-ci figure un système modulaire d'évacuation de la puissance résiduelle (EPuR) qui utilise un matériau à changement de phase métallique pour évacuer la chaleur excédentaire produite dans le cœur lors d'un arrêt d'urgence du réacteur suite à une panne de courant par exemple. Ce système est conçu pour un usage unique en cas de défaillance. L'EPuR est conçu comme un système d'évacuation thermique modulaire composé de plusieurs caissons quasi-cubiques en acier inoxydable (SS430) d'environ 65 cm de côté, remplis presque entièrement de lingots de zamak (Zn-4Al), le matériau à changement de phase (MCP) choisi pour stocker l'énergie thermique excédentaire du système. Un gaz inerte remplit l'espace entre le MCP et les parois

internes du caisson [2]. Ces caissons sont organisés en groupes de quatre disposés autour des tuyaux contenant le fluide caloporteur (NaK) horizontalement puis empilés en colonnes (Figure 1). Le MCP placé dans chaque unité doit répondre à des exigences spécifiques : une densité de stockage d'énergie volumique et une conductivité thermique élevées ainsi qu'un point de fusion compatible avec les températures de fonctionnement ; de plus, il doit être facile à manipuler et disponible. Le choix s'est finalement porté sur l'alliage commercial zinc-aluminium (4 % en poids d'Al) appelé Zamak 3 (acronyme allemand de *Zink Aluminium Magnesium Kupfer*, certains alliages pouvant contenir du cuivre et du magnésium), présentant des propriétés thermiques adéquates pour l'application visée. Sa compatibilité avec l'acier inoxydable SS430 des caissons et leurs interactions en conditions de fonctionnement doivent être analysées plus en détails, car elles pourraient avoir une incidence sur la répartition thermique et les performances du système. L'étude de cette interaction constitue le premier aspect d'un travail de modélisation numérique de la fusion du Zamak à l'intérieur des caissons en acier inoxydable SS430.

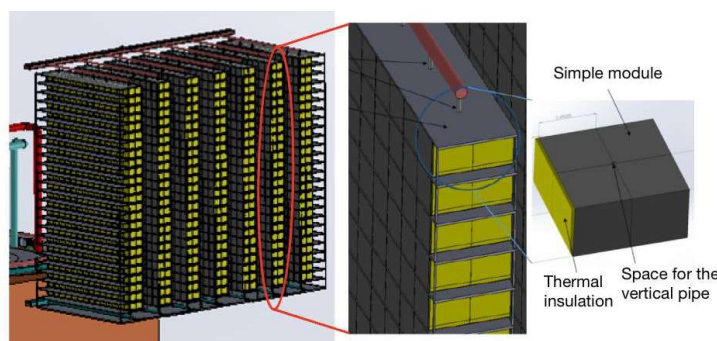


Figure 1: Schéma du système d'évacuation de la puissance résiduelle

La complexité et la taille de l'unité élémentaire industrielle nécessitent une simplification et une approche progressive lors de l'analyse. L'interaction entre les matériaux est d'abord étudiée à l'échelle du laboratoire, où l'influence de la couche d'oxyde sur le comportement de mouillage a été observée lors de la fusion de petits blocs de Zamak sur un substrat en acier inoxydable SS430 ; cette partie de l'étude a été présentée dans une contribution précédente [3]. Nous nous concentrerons ici sur la mise à l'échelle du système avec le développement d'un dispositif expérimental destiné à être représentatif d'une unité élémentaire ayant une géométrie simplifiée et réduite.

Plusieurs aspects clés doivent être pris en compte lors de la mise à l'échelle du système afin de garantir la représentativité de la conception de l'EPuR, notamment la fusion confinée et le chauffage latéral. Ces conditions introduisent des complexités supplémentaires : l'observation directe du processus de fusion est impossible et nécessite donc une analyse indirecte du comportement dynamique du système ; par ailleurs, le chauffage non homogène de l'enceinte entraîne une distribution thermique non uniforme au cours de l'évolution du système. Pour relever ces défis, un dispositif expérimental, nommé ZABOX, a été développé.

## 2. Matériaux et dispositif expérimental

Le Zamak (Zn-Al 4 % en poids) a été fourni par « Roger Fonderie » (France) sous forme de lingots, l'acier inoxydable 430 par Stainless Früchtel GmbH (Allemagne). Les matériaux ont été usinés et mis en forme aux dimensions souhaitées dans notre laboratoire pour la réalisation des expériences. Leur masse volumique à 20 °C est de 6 600 kg.m<sup>-3</sup> [4] et 7 700 kg.m<sup>-3</sup> [5] pour le Zamak et l'acier SS430 respectivement. La conductivité thermique et la capacité thermique sont

resp. de  $113 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $419 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$  [4] pour le Zamak et  $25 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $460 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$  [5] pour l'acier SS430 à  $20^\circ\text{C}$ . La température de fusion et la chaleur latente de fusion du zamak sont respectivement de  $382^\circ\text{C}$  et  $110 \text{ kJ.kg}^{-1}$  [3].

Le comportement de mouillage joue un rôle crucial dans la détermination de la forme et de l'étalement du métal fondu sur le substrat. De plus, les interactions chimiques entre le Zamak fondu et la paroi en acier inoxydable peuvent entraîner la corrosion de cette dernière, provoquant une fragilisation structurelle, comme observé pour les systèmes Zn-Fe sous contrainte ([6], [7]). Dans une communication précédente [3], l'affinité entre les deux matériaux a été étudiée à l'échelle du laboratoire, mettant en évidence l'influence de la couche d'oxyde superficielle sur les alliages Zn-Al. Comme indiqué dans la littérature ([8], [9], [10]), cette couche d'oxyde empêche le contact direct entre le métal en fusion et le substrat, ainsi que l'interaction qui pourrait en résulter. Cela a par ailleurs été observé pour des alliages Zn-Al lors de l'évaluation du mouillage sur un substrat en acier inoxydable [11]. Il est donc nécessaire de déterminer si le comportement observé à l'échelle laboratoire se maintient dans le cas de volumes de matériau plus importants et de quantifier son impact sur le comportement thermique du système étudié.

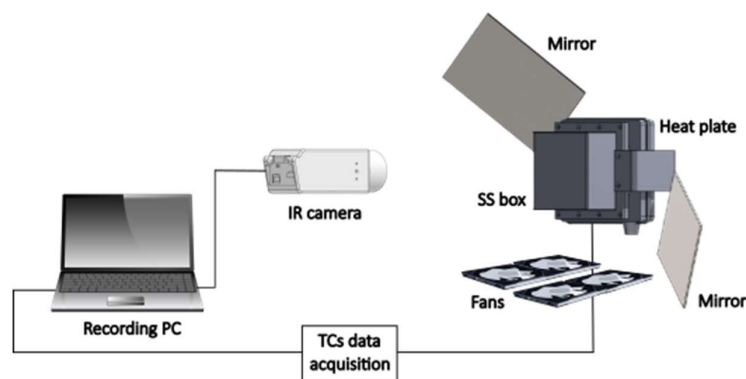


Figure 2: Schéma de principe du dispositif expérimental Zabox

Le dispositif expérimental ZABOX (Figure 2) est composé d'une boîte en acier inoxydable entièrement fermée ( $150 \times 150 \times 80 \text{ mm}$ ) chauffée sur une seule face. Toutes les parois de la boîte ont une épaisseur de  $2 \text{ mm}$ , à l'exception de celle chauffée, qui a une épaisseur de  $5 \text{ mm}$ . Le système de chauffage comprend une plaque chauffante et un diffuseur thermique en cuivre afin d'homogénéiser la température sur la face chauffée de la boîte ; des feuilles de graphite expansé sont ajoutées pour compenser la dilatation thermique des différents composants. La température des éléments chauffants est régulée par un thermocouple (TC) intégré au diffuseur en cuivre. A sa fermeture, la boîte est remplie d'azote sous une pression relative légèrement négative afin d'éviter toute surpression et toute déformation due à la dilatation thermique de l'azote. De plus, quatre ventilateurs sont installés sous la boîte pour contrôler le flux d'air et permettre la quantification du transfert thermique à travers la paroi ainsi que la définition des conditions limites en vue d'établir un modèle numérique représentatif.

Une caméra (FLIR A655sc) est utilisée pour enregistrer des images infrarouges de toutes les parois externes de la boîte grâce à des miroirs en aluminium poli qui réfléchissent les faces cachées dans le champ de vision direct de la caméra. La surface extérieure du boîtier est recouverte d'une peinture à émissivité constante (LabIR HERP-HT). Plusieurs TCs sont fixés sur cette surface pour l'analyse dynamique ainsi que l'étalonnage des mesures infrarouges. Tous les dispositifs d'enregistrement sont configurés pour acquérir une mesure de température toutes les  $15 \text{ secondes}$ .

Un programme a été spécialement développé pour analyser les données infrarouges enregistrées par la caméra. Il effectue une homographie géométrique afin de reconstruire la géométrie exacte des faces réfléchies par les miroirs à partir des coordonnées des coins identifiées et des dimensions connues. Les valeurs brutes des pixels des données expérimentales sont ensuite converties en champs de température grâce à des courbes d'étalonnage que nous avons obtenues en corrélant les mesures des TCs aux valeurs locales des pixels. L'ensemble du dispositif est placé dans une chambre noire isolée afin de garantir un environnement stable et contrôlé.

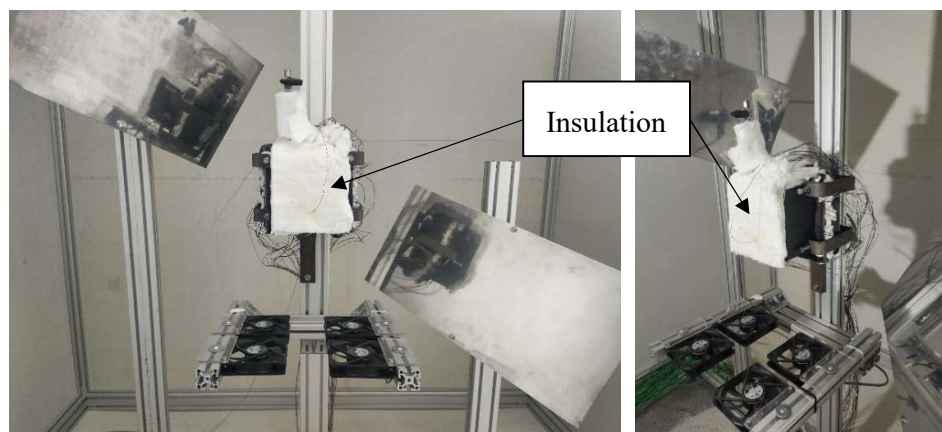


Figure 3: Photos du dispositif expérimental Zabox

L'expérience consiste à placer un lingot de Zamak (95 x 40 x 20 mm) équipé de TCs dans le dispositif ZABOX. Un de ses angles est chanfreiné pour mieux s'adapter au coin interne du boîtier en acier inoxydable (Figure 4). Le lingot est positionné dans le boîtier, comme illustré sur la Figure 5, dans l'angle de sorte qu'une de ses faces soit en contact avec la paroi chauffée. Ce positionnement permet d'évaluer le comportement du Zamak lors de la fusion dans différentes conditions de transfert thermique, en fonction de sa proximité avec les parois.

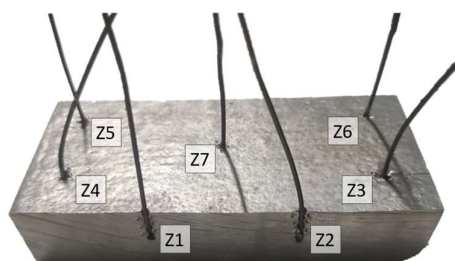


Figure 4: Vue du bloc de Zamak avec ses thermocouples

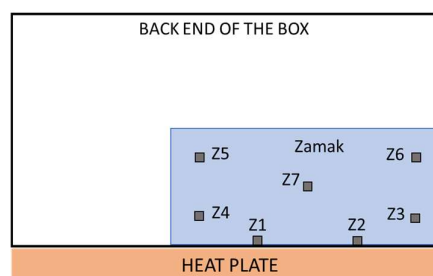


Figure 5: Position du bloc de Zamak et des thermocouples dans la boîte. (vue de dessus)

Pour réduire les pertes de chaleur du système, deux des faces du boîtier en acier inoxydable sont isolées par trois couches de laine de roche (face perpendiculaire à la caméra et face supérieure de la boîte en acier SS430), pour une épaisseur totale d'environ 3 cm. La configuration du boîtier ZABOX avec l'ajout de l'isolation est illustrée à la Figure 3. Les écarts de température entre les surfaces externes de l'enceinte et la surface de l'isolant sont mesurés afin de caractériser les conditions aux limites thermiques utilisées dans le modèle numérique.

### 3. Résultats et Discussion

L'expérience a consisté à chauffer le système jusqu'à un plateau à 450 °C, au niveau des éléments chauffants en contact avec le boîtier en acier inoxydable, avant d'entamer la montée en température finale. Le système possède deux faces isolées thermiquement, les deux autres (faces latérales) étant exposées à un flux d'air forcé. La température du bloc de Zamak à l'intérieur du boîtier se stabilise à 310 °C, en dessous de sa température de fusion de 382 °C. La plaque chauffante est ensuite réglée à sa puissance maximale afin de faire fondre le bloc de Zamak ; la température maximale atteinte est de 620 °C au niveau du chauffage. Le chauffage est alors interrompu et le boîtier est refroidi par une augmentation de la vitesse des ventilateurs.

Tout au long de l'expérience et jusqu'à la fusion, il est observé une bonne homogénéité des températures enregistrées par les TCs dans le bloc de Zamak, avec une différence maximale d'environ 5 °C lors de la montée en température. La Figure 6 montre une inflexion notable des courbes de température du Zamak lors de la première montée en température, avant le plateau thermique, où toutes les mesures de température présentent une légère stabilisation. Sur le diagramme de phase des alliages Zn-Al, présenté Figure 7, la ligne rouge correspond à la composition de l'alliage Zamak 3. Le plateau de température observé pour le Zamak lors de la montée en température correspond à la transformation eutectoïde solide-solide rapportée à 275 °C dans le diagramme de phases. Comme pour la transition de phase solide-liquide, cette transformation est endothermique et isotherme. L'énergie requise est estimée à environ 4 % de celle associée à la transition de phase solide-liquide ; son effet pourrait être intégré dans le modèle numérique bien qu'il n'ait pas d'influence sur le mécanisme de fusion.

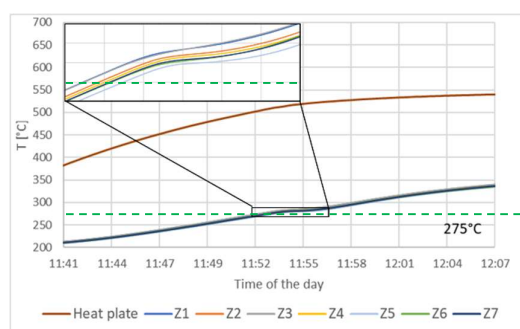


Figure 6: Température mesurées dans le bloc de Zamak

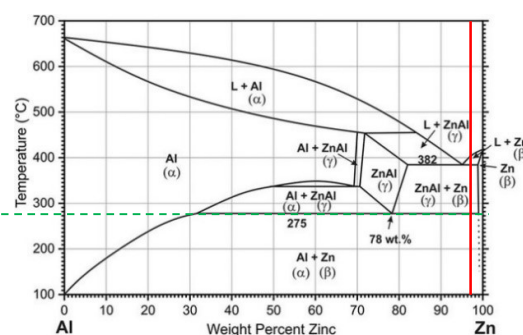


Figure 7: Diagramme de phases de l'alliage Zn-Al

La Figure 8 présente les relevés des thermocouples situés sur la surface extérieure inférieure de la boîte, ainsi qu'un schéma à droite indiquant leur position par rapport au bloc de Zamak. Les thermogrammes permettent de suivre la progression du processus de fusion. La forte hausse enregistrée par les thermocouples B7 et B6 indique que le Zamak liquide s'est initialement propagé vers le côté opposé au contact bloc-boîte (flèche N°1). Après environ 2 minutes, l'augmentation observée pour le thermocouple B5 suggère que le matériau fondu s'est étendu vers le coin arrière de la boîte (flèche N°2). Quelques minutes plus tard, la propagation commence vers la face arrière, avec la hausse de température des thermocouples B3 et B4 (flèche N°3). Enfin, environ 8 minutes plus tard, de plus faibles variations de température dans les thermocouples situés près de l'arrière indiquent une seconde vague de propagation de la fusion (flèche N°4). Les relevés de température des thermocouples intégrés au bloc de Zamak confirment l'observation concernant la position du front de fusion, cependant, une fois le Zamak fondu, il devient difficile d'évaluer la position des thermocouples qui ne sont alors plus maintenus. L'analyse porte donc sur les températures enregistrées à la surface extérieure de l'enceinte.

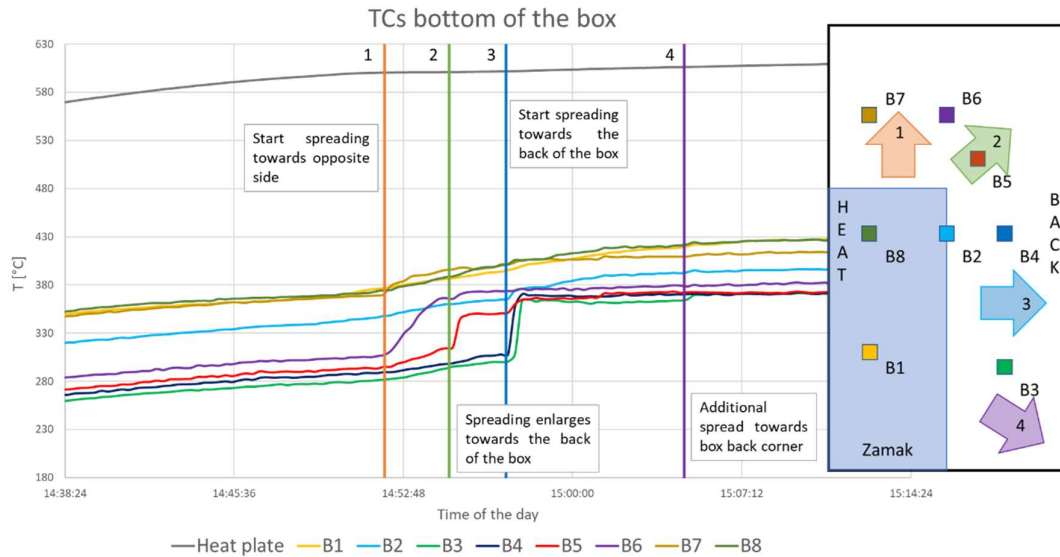


Figure 8: *Température (TCs) sur l'extérieur de la face inférieure de la boîte.*

La séquence d'images infrarouges traitées présentée sur la Figure 9 illustre la dynamique de la carte de température de la surface externe de la face inférieure du boîtier en acier inoxydable. À titre de référence, le boîtier est chauffé par la gauche sur chaque image, et la position du bloc de Zamak massif est délimitée sur la première image de la séquence par un rectangle bleu. Les images 1 à 4 correspondent aux intervalles de temps indiqués et numérotés sur la Figure 8. La dernière image (5) montre la carte de température une minute après le dernier mouvement du Zamak fondu (4), et donc sa forme finale, qui reste visuellement inchangée avant le début du refroidissement. L'évolution de la carte de température est en bonne corrélation avec les valeurs locales de températures (TC) enregistrées et fournit une analyse détaillée de la forme et de la dynamique du Zamak fondu.

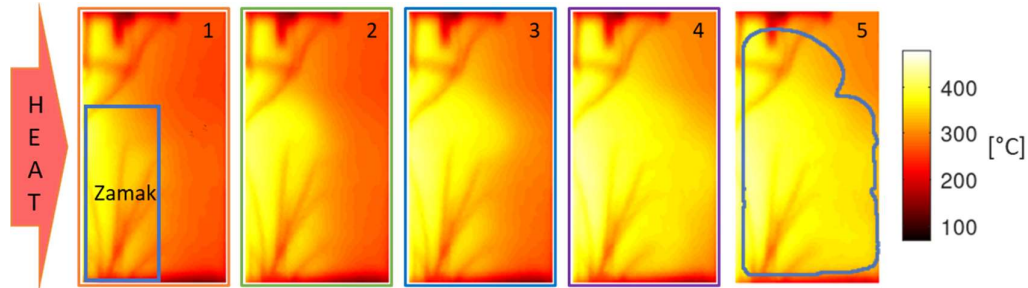


Figure 9: *Séquence d'images infrarouges de la surface extérieure du fond de la boîte. La position initiale et finale du Zamak sont représentées respectivement sur la première et la dernière image.*

L'interprétation des données de température est corroborée par les relevés des TCs sur les faces adjacentes, qui montrent des sauts de température coïncidant avec l'apparition de la fusion dans cette partie du caisson. Ces résultats suggèrent que malgré l'homogénéité apparente des relevés de température dans le Zamak lors de la montée en température jusqu'à la fusion, la position de la source de chaleur influence la répartition et la dynamique de fusion. Ceci est illustré par la propagation de la fusion vers le fond du caisson, retardée de quelques minutes par rapport au début de la fusion près de la face chauffée de l'enceinte.

Une fois le système revenu à température ambiante, la boîte est ouverte afin d'observer le bloc de Zamak resolidifié. Aucune adhérence n'a été observée entre le Zamak fondu et les parois internes de la boîte ; le bloc s'est détaché facilement par une légère traction. Cette absence

d'adhérence est cohérente avec les observations réalisées en laboratoire et indique l'absence d'interaction chimique entre le Zamak et l'acier inoxydable.

La Figure 10 montre la surface inférieure du bloc de Zamak fondu après resolidification (cette image est inversée par rapport aux images infrarouges enregistrées par la caméra sur la Figure 9). La forme initiale du bloc est facilement identifiable, car elle correspond à la surface d'oxyde natif indiquée par la ligne pointillée bleue. La matière fondue a acquis une forme finale qui concorde avec l'analyse thermique de la dynamique d'étalement (Figure 8), où le mouvement enregistré, indiqué par les flèches sur la Figure 10, correspond à la forme observée.

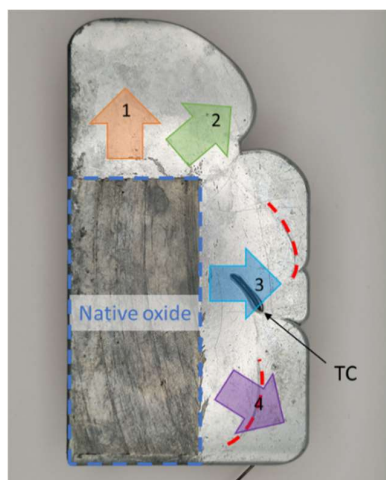


Figure 10: Face inférieure du bloc de Zamak resolidifié (image miroir de l'image IR). Ligne pointillée bleue : position initiale du zamak ; ligne rouge : plis dus à la solidification du liquide.

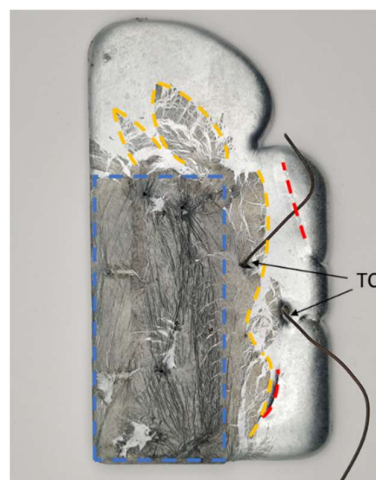


Figure 11: Partie supérieure du bloc de Zamak resolidifié. Ligne pointillée bleue : position initiale du Zamak ; orange : oxyde natif résiduel ; rouge : plis dus à la solidification du liquide.

La Figure 11 présente la surface supérieure du bloc de Zamak après son retrait de la boîte. La ligne foncée visible sur l'image correspond à l'un des TCs placé à l'intérieur du bloc de Zamak, resté enrobé dans le matériau resolidifié (malgré un dépôt antiadhésif lors du placement) ; tous les autres TC ayant été retirés. Comme sur la Figure 10, la couche d'oxyde natif initiale et le bain de fusion solidifié qui l'a traversée sont clairement visibles.

On observe le déplacement d'une portion de la couche d'oxyde supérieure, suivant le mouvement du Zamak fondu depuis sa position initiale. Ce déplacement révèle la fissuration et la fragmentation de la couche, permettant ainsi d'absorber le mouvement du bain de fusion sans se mélanger à celui-ci. On peut donc supposer que les zones plus claires de la surface résultent de la rupture de la couche d'oxyde natif, autorisant l'étalement du Zamak fondu. Le manque d'adhérence peut être attribué soit à la faible réactivité du bain de Zamak avec l'acier inoxydable, soit à la réoxydation de la surface du bain, due à la forte affinité de l'aluminium pour l'oxygène, phénomène rendu possible par l'impossibilité de maintenir des conditions de vide poussé dans l'enceinte.

Les plis visibles sur les faces supérieure et inférieure du bloc resolidifié sont cohérents avec le mouvement du bain de fusion, correspondant à une deuxième vague liquide se propageant vers le fond et le coin du coffret.

## 4. Conclusion et Perspectives

L'expérience réalisée s'inscrit dans le cadre de la première mise à l'échelle d'un système représentatif de la conception industrielle d'un système de stockage thermique d'urgence à usage

unique. Ce système est constitué d'un boîtier fermé en acier inoxydable dans lequel fond un matériau métallique qui sert d'absorbeur thermique. Un dispositif à petite échelle, nommé ZABOX, comprenant une source de chaleur, des thermocouples et une caméra infrarouge a été développé pour étudier la fusion de l'alliage en milieu clos. Ce dispositif de surveillance s'est avéré approprié pour suivre la dynamique de fusion dans une enceinte. La fréquence d'échantillonnage de l'enregistrement devra être ajustée pour les expériences futures afin de mieux suivre le mouvement et l'évolution du système et d'éviter des variations de température trop brusques, mais les résultats obtenus donnent déjà un bon aperçu.

L'absence d'interaction chimique observée à l'échelle du laboratoire persiste lors de la première montée d'échelle du système, même après la fissuration visible de la couche d'oxyde native présente à la surface du Zamak. Les résultats indiquent également que l'évolution dynamique de la fusion dépend de la position du lingot par rapport à la source de chaleur.

Des expériences complémentaires devront être menées avec différentes quantités et configurations de Zamak afin d'évaluer leur influence sur la dynamique de fusion et les interactions interfaciales. Les résultats déjà obtenus, ainsi que les données futures recueillies grâce au dispositif expérimental ZABOX, permettront d'élaborer un modèle numérique visant à simuler avec précision l'évolution du système boîte-PCM en conditions de fonctionnement. Ce modèle numérique constituera un outil essentiel pour prédire le comportement thermique du système lors des passages à l'échelle supérieure.

## References

- [1] A. Pantano, P. Gauthier, M. Errigo, and P. Sciora, 'Pre-design of an innovative passive decay heat removal system for ATRIUM AMR-SFR', *Nuclear Engineering and Design*, vol. 378, no. May, p. 111259, 2021, doi: 10.1016/j.nucengdes.2021.111259.
- [2] A. Pantano, L. Brissonneau, and J. Pouvreau, 'Liquid Metal Cooled Nuclear Reactor Incorporating a Fully Passive Decay Heat Removal (DHR) System with a Modular Cold Source', 2023
- [3] J. Rosso, G. Largiller, S. Li, and F. Topin, 'Experimental and numerical study of constrained melting of metallic phase change material (PCM)', 2025, doi: 10.25855/SFT2025-051.
- [4] Xometry, 'Zamak 3- Data sheet'. p. 71098.
- [5] thyssenkrupp M. Services, 'Material Data Sheet- Ferritic corrosion resisting steel'. pp. 1–4.
- [6] D. Bhattacharya *et al.*, 'Transgranular cracking in a liquid Zn embrittled high strength steel', *Scripta Materialia*, vol. 175, pp. 49–54, 2020, doi: 10.1016/j.scriptamat.2019.09.006.
- [7] C. DiGiovanni, A. Ghatei Kalashami, E. Biro, and N. Y. Zhou, 'Liquid metal embrittlement transport mechanism in the Fe/Zn system: Stress-assisted diffusion', *Materialia*, vol. 18, p. 101153, Aug. 2021, doi: 10.1016/j.mtla.2021.101153.
- [8] L. P. H. Jeurgens, W. G. Sloof, F. D. Tichelaar, and E. J. Mittemeijer, 'Structure and morphology of aluminium-oxide films formed by thermal oxidation of aluminium', *Thin Solid Films*, vol. 418, no. 2, pp. 89–101, 2002, doi: 10.1016/S0040-6090(02)00787-3.
- [9] Y. Chen, P. Schneider, and A. Erbe, 'Investigation of native oxide growth on zinc in different atmospheres by spectroscopic ellipsometry', *Physica Status Solidi (A) Applications and Materials Science*, vol. 209, no. 5, pp. 846–853, 2012, doi: 10.1002/pssa.201100542.
- [10] M. Mehrabian, B. Nayeibi, D. Dietrich, T. Lampke, and M. Shokouhimehr, 'Characteristics of dynamically-formed surface oxide layers on molten zinc-aluminum alloys: A multimodality approach', *Thin Solid Films*, vol. 667, no. October, pp. 34–39, 2018, doi: 10.1016/j.tsf.2018.10.008.
- [11] J. Yang, S. Xue, Y. Wu, C.-N. Yu, and D. P. Sekulic, 'Wetting behaviour of Zn-Al filler metal on a stainless steel substrate', *Science and Technology of Welding and Joining*, vol. 23, no. 1, pp. 1–6, Jan. 2018, doi: 10.1080/13621718.2017.1314657.