



HAL
open science

Modélisation multiphysique de l'élaboration de verre en creuset froid

Guillaume Barba Rossa

► **To cite this version:**

Guillaume Barba Rossa. Modélisation multiphysique de l'élaboration de verre en creuset froid. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Grenoble Alpes, 2017. Français. NNT : 2017GREAI050 . tel-01860351

HAL Id: tel-01860351

<https://theses.hal.science/tel-01860351v1>

Submitted on 23 Aug 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE LA COMMUNAUTE UNIVERSITE GRENOBLE ALPES

Spécialité : **MEP : Mécanique des fluides, Énergétique,
Procédés**

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

Guillaume BARBA ROSSA

Thèse dirigée par **Annie GAGNOUD**, Directeur de recherche,
CNRS, et
co-encadrée par **Émilien SAUVAGE**, Ingénieur de recherche,
CEA

préparée au sein du **CEA/LDPV (Laboratoire de Développement
des Procédés de Vitrification)**
et du **Laboratoire SIMaP (Science et Ingénierie des Matériaux
et Procédés)**
dans l'**École Doctorale I-MEP2 (Ingénierie – Matériaux,
Mécanique, Environnement, Énergétique, Procédés,
Production)**

Modélisation multiphysique de l'élaboration de verre en creuset froid

Multiphysics flow modeling of glass in a Cold Crucible Induction Melter

Thèse soutenue publiquement le **7 novembre 2017**,
devant le jury composé de :

M. Yves DELANNOY

Professeur des Universités, Grenoble INP – Phelma, Président

M. Marc MÉDALE

Professeur des Universités, Aix-Marseille Université – Polytech Marseille,
Rapporteur

M. Franck PIGEONNEAU

Chargé de Recherche, Mines ParisTech – Centre de Mise en Forme des
Matériaux, Rapporteur

M. Alain CARTALADE

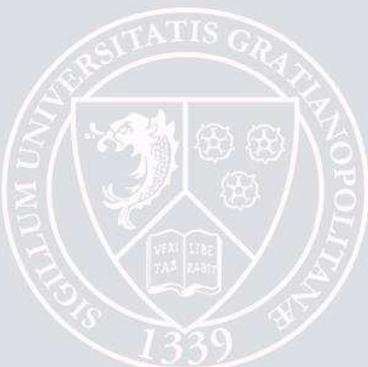
Ingénieur de Recherche, CEA Saclay, Examineur

Mme. Annie GAGNOUD

Directeur de Recherche, Grenoble INP – Phelma, Directeur de thèse

M. Émilien SAUVAGE

Ingénieur de Recherche, CEA Marcoule, Co-encadrant de thèse



Ce document a été édité avec \LaTeX . Les figures vectorisées ont été réalisées avec \Inkscape et les graphiques avec \Gnuplot . Les références bibliographiques ont été gérées avec \JabRef . Ces logiciels sont distribués sous licence open source.

Remerciements

C'est avec un grand plaisir que je tiens à remercier les nombreuses personnes qui m'ont assisté pendant mes travaux de thèse. L'aboutissement des études présentées est lié au soutien continu, qu'il soit matériel, intellectuel ou moral, de ces personnes. J'espère que ces quelques lignes contribueront à corriger l'injustice de ne mentionner qu'un seul auteur pour le présent document.

Ma première pensée s'adresse tout naturellement à mon encadrant ÉMILIEN SAUVAGE, qui m'a accompagné quotidiennement lors de ces trois dernières années. Si mes travaux permettent de répondre aujourd'hui à des problématiques industrielles clés, je le dois à son ouverture d'esprit et à sa capacité à gérer un projet complexe et ramifié, tout comme je dois énormément à nos longues discussions pendant lesquelles ses remarques diablement pertinentes et toujours bienveillantes ont orienté mes travaux. Pour le temps conséquent qu'il m'a consacré et son entrain communicatif permanent, je le remercie donc chaleureusement. Merci à ma directrice de thèse ANNIE GAGNOUD, pour son suivi attentionné, son regard critique et les journées qu'elle m'a consacrées, pendant lesquelles elle a su me transmettre avec gentillesse et précision ses connaissances et son expérience des concepts qui font l'objet de ces travaux.

Quoi que l'on puisse en penser, la thèse a été pour ma part avant tout un travail d'équipe. Je ne serais pas allé bien loin sans l'ensemble des membres du Laboratoire de Développement des Procédés de Vitrification. Aussi je tiens à tous les remercier chaleureusement, et tout particulièrement ses chefs JACQUES LACOMBE puis SOPHIE SCHULLER mais également ses ingénieurs dont MILÈNE DELAUNAY, PATRICE BRUN, CLAUDE ROCHE, VIRGINIE LABE, RÉGIS DIDIERLAURENT et l'ensemble des techniciens dont GEOFFROY PRUVOST, ALAIN ARTICO et CARINE CASTANO, pour le partage de leurs compétences sans aucune réserve, leur disponibilité, la conduite des essais (et les séances de course à pied). Un grand merci à ÉTIENNE ROGNIN, dont le passage dans notre laboratoire a permis d'ouvrir de nombreuses voies de recherche. Je tiens également à remercier ÉLISE RÉGNIER et MURIEL NEYRET, ingénieurs au Laboratoire d'étude de Développement des Matrices de Conditionnement, pour le partage des connaissances des propriétés physico-chimiques du verre nucléaire.

Je remercie également les nombreux relecteurs du manuscrit que je n'ai pas encore cités, qui ont largement contribué à l'amélioration de sa qualité et de sa pertinence. Parmi eux, le jury de soutenance, dont YVES DELANNOY, que je remercie d'avoir accepté la présidence. Merci en particulier à ANABELA RODRIGUES, du pôle Vitrification d'Areva, pour le suivi de mes travaux et sa relecture attentive du manuscrit. Je tiens à remercier le CEA, Areva et EDF pour le soutien financier des travaux réalisés dans le cadre de cette thèse.

J'ai également une pensée toute particulière pour tous mes amis du CEA Marcoule, doctorants, stagiaires ou autres, avec qui j'ai pu partager tant de bons moments et que je ne nommerai pas ici par peur d'en oublier. Ils se reconnaîtront. Enfin, le temps passé à travailler sur mes problématiques de recherche n'aurait sûrement pas été aussi fructueux sans le temps passé avec AMANDINE. Merci à elle et à ma famille, en particulier ma mère, pour leur soutien sans faille. Pour terminer, toutes les personnes qui ne sont pas citées ici et qui auraient souhaité l'être reçoivent mes remerciements doublés d'excuses.

Table des matières

Remerciements	iii
Table des figures	ix
Liste des tableaux	xiii
Notations	xv
1 Introduction	1
1.1 Vitrification des déchets radioactifs	2
1.1.1 Principe de confinement	2
1.1.2 Procédés d'élaboration	2
1.2 Description du creuset froid inductif	3
1.2.1 Conception et fonctionnement	3
1.2.2 Le matériau « verre nucléaire » en creuset froid	4
1.3 Modélisation et simulation numérique du creuset froid : motivations et état de l'art	7
1.4 Objectifs et démarche	9
1.4.1 Avancées attendues	9
1.4.2 Méthodologie	10
2 Modélisation et formulation	13
2.1 Électromagnétisme	15
2.1.1 Équations de Maxwell	15
2.1.2 Méthodes d'imposition d'un champ électromagnétique externe	18
2.1.3 Condition de jauge de Coulomb	20
2.1.4 Conditions aux limites	20
2.1.5 Adimensionnement dans le cas harmonique	21
2.2 Thermohydraulique	22
2.2.1 Équations de Navier-Stokes et de l'énergie	23
2.2.2 Approximation de Rosseland	24
2.2.3 Approximation de Boussinesq	26
2.2.4 Écriture des conditions aux bords	28
2.2.5 Adimensionnement	30
2.2.6 Dépendance à la température des propriétés du verre nucléaire	32
2.2.7 Modélisation de la résistance thermique aux parois	34
2.3 Transport de particules	37
2.3.1 Approche Eulérienne	38
2.3.2 Détermination d'une équation de transport	38

2.3.3	Détermination de la diffusivité	42
2.3.4	Dépendance des paramètres de transport à la température	45
2.3.5	Mode de sédimentation « en agrégats »	45
2.3.6	Adimensionnement	47
2.4	Retour sur les couplages	47
2.4.1	Couplages pris en compte	47
2.4.2	Phénomènes négligés	48
2.5	Conclusion	50
3	Méthodes de simulation numérique	51
3.1	Schémas numériques et codes de calcul	52
3.1.1	Discrétisation spatiale	52
3.1.2	Discrétisation temporelle	54
3.1.3	Codes de calcul	54
3.2	Simulation de l'induction électromagnétique	55
3.2.1	Principe	55
3.2.2	Formulation alternative du schéma pour la résolution du potentiel scalaire	56
3.2.3	Benchmarks	58
3.3	Simulation du transport des particules	62
3.3.1	Transport 1D dans un fluide au repos	62
3.3.2	Fluide en mouvement	63
3.4	Stratégie de couplage par ségrégation	65
3.5	Conclusion	66
4	Induction électromagnétique dans une suspension	69
4.1	Conductivité électrique effective de milieux hétérogènes diphasiques	72
4.1.1	Hypothèses	72
4.1.2	Formulation générale	73
4.1.3	Modèles analytiques de conductivité effective	75
4.1.4	Benchmark	77
4.2	Étude d'un verre chargé en particules de platinoïdes	78
4.2.1	Acquisition et prétraitement de mesures par microtomographie	78
4.2.2	Résultats des simulations numériques	83
4.2.3	Prise en compte d'une conductivité du verre dépendante de la tem- pérature	84
4.3	Pertinence de l'utilisation d'une conductivité électrique effective dans le calcul de la puissance Joule	87
4.4	Conclusion	89
5	Comportement des particules en suspension	91
5.1	Instabilité de Rayleigh-Taylor	92
5.1.1	Force appliquée par les particules sur le fluide suspendant	92
5.1.2	Analyse de stabilité linéaire temporelle d'une stratification	93
5.1.3	Simulation numérique directe	98
5.2	Sédimentation dans un fluide au repos	101
5.2.1	Sédimentation totale	101
5.2.2	Comparaisons expérimentales	102
5.3	Conclusion	108

6	Comportement thermique du creuset froid	109
6.1	Loi d'échelle de flux thermique en régime de convection forcée	110
6.1.1	Principe d'évaluation des transferts thermiques	110
6.1.2	Analyse de couche limite à viscosité constante	111
6.1.3	Impact d'une viscosité fortement thermo-dépendante	113
6.1.4	Détermination d'une température de mélange	117
6.2	Réponse dynamique	118
6.3	Comparaisons expérimentales	120
6.3.1	Configuration	120
6.3.2	Résultats	121
6.4	Conclusion	123
7	Simulation numérique couplée appliquée au procédé de creuset froid	125
7.1	Cas 0 - Test de couplage sur géométrie simplifiée	127
7.1.1	Configuration physique	127
7.1.2	Résultats	128
7.2	Cas 1 - Creuset froid en régime nominal	131
7.2.1	Configuration physique et intensité des phénomènes	131
7.2.2	Paramètres numériques et stratégie de convergence	133
7.2.3	Étude qualitative des résultats de simulation couplée	134
7.2.4	Bilan d'énergie global	137
7.2.5	Couche pariétale de fritte de verre	141
7.3	Cas 2 - Creuset froid avec sédimentation des platinoïdes	143
7.3.1	Sédimentation des platinoïdes	143
7.3.2	Modification de la réponse à l'induction électromagnétique et des flux thermiques	145
7.3.3	Performances de la simulation numérique	146
7.4	Cas 3 - Creuset froid avec mesure spécifique de flux thermique surfacique .	148
7.4.1	Conception d'un outil de mesure spécifique	148
7.4.2	Comparaisons quantitatives de flux thermique	151
7.5	Conclusion	153
8	Conclusions et perspectives	155
8.1	Conclusions	156
8.1.1	Modélisation thermohydraulique	156
8.1.2	Modélisation des particules et de l'induction	156
8.1.3	Simulation numérique	157
8.2	Perspectives	157
	Bibliographie	159

Table des figures

1.1	Creuset froid utilisé pour l'élaboration de verre	5
1.2	Photographie de l'intérieur du creuset froid lors de la fusion de verre - l'agitateur mécanique se trouve ici hors du bain, couvert de verre solidifié	6
2.1	Imposition de champ électromagnétique grâce aux conditions aux limites sur les potentiels	22
2.2	Gestion de l'approximation de Rosseland en bord de domaine	25
2.3	Coefficient d'atténuation d'un verre de type UOx en fonction de la longueur d'onde du rayonnement dans le proche infrarouge - modèle de coefficient constant utilisé dans l'approximation de Rosseland	26
2.4	Masse volumique d'un verre de type UOx sans particules de platinoïdes - modèle affine utilisé dans l'approximation de Boussinesq	28
2.5	Conductivité thermique et capacité thermique d'un verre de type UOx en fonction de la température	33
2.6	Couche résistive fritte/air entre la fonte et la paroi refroidie	35
2.7	Température au bord du domaine fluide en fonction de la porosité de la couche de fritte infondue pour différentes valeurs de flux thermique - un rapport de conductivités indépendant de la température $\frac{\lambda_f}{\lambda_a} = 20$ et $\frac{T_{ext}}{T_f} = 0,41$ ont été prescrits	37
2.8	Comparaison pour des suspensions polydisperses entre la relation 2.43 et les données expérimentales issues de [64] - les étiquettes de données indiquent l'écart type de polydispersion σ	45
2.9	Lignes de courant du fluide suspendant autour des particules pour les deux modes de sédimentation (particules individuelles à gauche ou « en agrégats » à droite)	46
2.10	Schéma représentatif des couplages entre physiques considérés	48
3.1	Représentation schématique de deux mailles d'espace voisines (cas conforme)	53
3.2	Comparaison du poids barycentrique de la cellule amont pour le schéma à moyenne harmonique et le schéma proposé	58
3.3	Boule conductrice soumise à un champ magnétique externe uniforme harmonique - simulation numérique et résultats analytiques	60
3.4	Configuration physique étudiée - un cylindre conducteur présentant une cavité sphérique est plongé dans un champ magnétique harmonique	61
3.5	Comparaison des profils de densité de puissance Joule dissipée dans un cylindre conducteur présentant une cavité sphérique isolée - code développé AV-AF et FLUX® 3D (avec et sans boule métallique)	62

3.6	Courants induits en quadrature de phase avec le champ magnétique imposé - observation de la déviation due à la présence d'une inclusion isolée électriquement de la charge	62
3.7	Profils de sédimentation 1D obtenus par simulation pour $\mathcal{N} = 20$, $C(t = 0) = 10^{-2}$ et différents horizons de temps	63
3.8	Stratégie de couplage par ségrégation	66
4.1	Propriétés électriques à basse température d'un simulant de verre nucléaire de type UOx chargé en particules de platinoïdes, obtenues par impédancemétrie à quatre électrodes	73
4.2	Domaine matériel considéré pour le calcul de conductivité effective	74
4.3	Quelques modèles de conductivité effective fonction de la fraction volumique en inclusions pour les paramètres $R = 10^4$, $C_p = 0,25$, $t = 2$ et $s = 2/3$ - les modèles sont détaillés dans [84-86]	78
4.4	Observation des particules de platinoïdes (billes de palladium-tellure et aiguilles de dioxyde de ruthénium) dans l'échantillon 2 de verre sédimenté pendant 211 h à 1200 °C et soumis à analyse par Microscopie Électronique à Balayage (MEB) et par microtomographie aux rayons X	80
4.5	Analyse spectrale des échantillons tomographiés	82
4.6	Fréquence d'apparition des valeurs v dans deux des échantillons tomographiés. Les trois portions de courbe représentent respectivement, de gauche à droite, les valeurs correspondant à la matrice de verre, au dioxyde de ruthénium et à l'alliage de palladium-tellure - l'intégration de la fréquence correspondant aux deux dernières portions donne la fraction volumique moyenne en particules	83
4.7	Calculs de conductivité électrique sur l'échantillon tomographié 2	85
4.8	Conductivité électrique effective d'une suspension de platinoïdes, comparaison entre plus de 200 points obtenus par simulation numérique et modèle de percolation C^0	85
4.9	Comparaison entre les mesures de conductivité électrique d'un verre de type UOx obtenues par impédancemétrie à quatre électrodes et les prédictions du modèle de conductivité effective thermo-dépendante pour les paramètres $A_\sigma = 3,9.10^4$ S/m et $B_\sigma = 8,4.10^4$ J/mol	87
4.10	Représentation schématique des courants électriques dominants dans une suspension de particules plus conductrices que la matrice soumise à induction électromagnétique - de gauche à droite, le cas percolé $C \geq C_p$, le cas non percolé $C < C_p$ où les courants intraparticulaires dominant et le cas non percolé $C < C_p$ où les courants macroscopiques dominant	89
5.1	Comparaison des résultats analytiques et calculés par le code d'analyse de stabilité linéaire temporelle ST-SCI dans le cas non visqueux pour $Gr_p = 1,6.10^6$, $\Delta C = 5.10^{-3}$ et $k \in [0; 15]$	98
5.2	Résultats obtenus avec le code d'analyse de stabilité linéaire temporelle ST-SCI dans le cas visqueux avec approximation de Boussinesq pour $\Delta C = 5.10^{-3}$ et $k \in [0; 15]$	99
5.3	Norme L^2 du champ de vitesse $\ \mathbf{u}\ _{L^2(\Omega)}(t)$ lors de la simulation numérique d'une cavité carrée fermée initialement stratifiée pour différentes valeurs du Grashof particulaire $Gr_p \in \{5,3.10^5; 8.10^5; 1,6.10^6\}$	100

5.4	Comparaison des résultats de la simulation de sédimentation en nuage avec des observations expérimentales de cristaux de spinelle dans du verre fondu	101
5.5	Fraction volumique maximale à l'équilibre en fond de domaine pour $\mathcal{N} = 22$ et $C_a = 0,6$ en fonction de la fraction volumique moyenne	102
5.6	Distributions réelle et apparente des rayons de particules de palladium-tellure dans un échantillon de verre	105
5.7	Comparaison des profils expérimentaux et issus de la simulation d'expérience de sédimentation de verres chargés en particules de platinoïdes isothermes - les barres d'erreur ont la taille des symboles	107
5.8	Comparaison du profil expérimental et issu de la simulation d'une expérience de sédimentation de verre chargé en particules de platinoïdes et soumis à un gradient thermique - les barres d'erreur ont la taille des symboles	107
6.1	Configuration de la cavité carrée fermée	111
6.2	Dépendance du nombre de Nusselt Nu aux paramètres adimensionnés dans le cas d'un fluide de viscosité indépendante de la température - comparaison entre simulation numérique et résultats de l'analyse de couche limite	113
6.3	Représentation schématique des degrés de liberté associés au transfert thermique d'une paroi chaude vers une paroi froide dans un système fluide-solide - à gauche le cas d'un solide indéformable, à droite le cas du fluide solidifié au contact de la paroi froide	115
6.4	Résultats de simulation numérique de la cavité fermée entraînée avec un fluide à viscosité fortement dépendante de la température pour les paramètres $Pn = 0,6$, $D = 0,1$, $Pr = 200$ et $Re = 10$. Une couche de fluide solidifié est présente le long de la paroi froide	117
6.5	Résultats de simulation numérique de la cavité entraînée permettant d'apprécier l'influence du Pearson Pn et de D sur les transferts thermiques pour un fluide à viscosité dépendante de la température - comparaison avec le modèle analytique proposé	117
6.6	Variations du flux thermique reçu par l'agitateur lors de la fusion de verre en creuset froid	122
7.1	Évolution des grandeurs thermiques intégrées au cours du temps : puissance Joule totale et flux thermique à travers la base refroidie - les pics de puissance Joule courts et de faible intensité correspondent à l'apparition des polypes de Rayleigh-Taylor	128
7.2	Champ de fraction volumique en particules (droite) et densité de puissance dissipée par effet Joule (gauche) à différents instants - iso-contour bleue de viscosité $f_\nu = 10$ dessinant la poche de verre fluide ($\eta < 20 \text{ Pa}\cdot\text{s}$)	130
7.3	Géométrie du creuset froid simulé - deux cannes de température à gauche, 3 injecteurs d'air sur la sole, arbre de l'agitateur centré et canne de recalage à droite - les pales de l'agitateur mécanique ainsi que les doigts de gant des thermocouples ont été volontairement dissimulés pour raison de confidentialité	131
7.4	Observation du phénomène de modération du champ magnétique dans la charge de verre en fusion - normes des composantes réelle et imaginaire du potentiel vecteur magnétique (normalisées par A_θ) sur un rayon du creuset en fonction de la distance à l'axe r (normalisée par le rayon)	135

7.5	Puissance dissipée par effet Joule dans la charge de verre p_J lors de la simulation numérique du creuset froid en régime nominal de fonctionnement	135
7.6	Potentiel scalaire électrique en quadrature de phase avec le champ magnétique imposé V_i lors de la simulation numérique du creuset froid en régime nominal de fonctionnement - vue d'un plan de coupe horizontal	136
7.7	Iso-contours de source volumique de quantité de mouvement verticale liée au bullage $\mathbf{S} \cdot \mathbf{e}_z = 500 \text{ N/m}^3$ lors de la simulation numérique du creuset froid en régime nominal de fonctionnement - observation de trois colonnes de bullage liées aux injecteurs de la sole et une colonne liée à l'injection d'air à l'extrémité de la canne de recalage	137
7.8	Champ de vitesse du fluide $\ \mathbf{u}\ $ lors de la simulation numérique du creuset froid en régime nominal de fonctionnement	137
7.9	Champ de température du verre T lors de la simulation numérique du creuset froid en régime nominal de fonctionnement	138
7.10	Évolution temporelle de la puissance de dissipation visqueuse totale diminuée de la puissance mécanique transmise au verre par les trains de bulles $E_v - W_b$ lors de deux tours complets de l'agitateur à la vitesse $\omega = 6,28 \text{ rad/s}$ en régime périodique établi	141
7.11	Reliquat de verre présent sur la sole du creuset après vidange totale (en cours de retrait) - couche de fritte de verre restante après retrait du reliquat de verre coalescé	142
7.12	Épaisseur de fritte de verre infondue sur la sole du creuset e	142
7.13	Comparaison quantitative entre simulation et expérience de l'épaisseur de fritte de verre infondue sur la sole du creuset e	142
7.14	Champ de fraction volumique en particules de platinoïdes dans le verre C lors de la simulation numérique du creuset froid en régime de sédimentation (forte agrégation de particules)	144
7.15	Zones de sédimentation préférentielle des particules de platinoïdes sur la sole du creuset	145
7.16	Déviations des lignes de courants induits en quadrature de phase \mathbf{j}_i vers les zones de sédimentation des platinoïdes, colorées par la puissance Joule locale	146
7.17	Accélération en latence observée lors de la simulation numérique du creuset froid - comparaison à la loi d'Amdahl pour une valeur de fraction parallélisée $p = 97,2\%$	147
7.18	Géométrie du cylindre de mesure de flux thermique	148
7.19	Géométrie interne du cylindre de mesure de flux thermique - les flèches indiquent le sens de circulation de l'eau de refroidissement	150
7.20	Canne de mesure de flux implantée sur le creuset froid nucléarisé	151
7.21	Évolution au cours du temps de la température chaude de consigne T_h et du flux thermique surfacique moyen \bar{q} reçu par l'embout de mesure lors de paliers de stabilisation à différentes températures de consigne	152
7.22	Répartition du flux thermique surfacique sur l'embout de mesure obtenue par simulation numérique instationnaire, pour une température de consigne de 1473 K	153

Liste des tableaux

1	Nomenclature : grandeurs à symboles latins	xv
2	Nomenclature : grandeurs à symboles grecs	xvii
3	Nomenclature : nombres adimensionnés	xix
4	Notations de calcul tensoriel - s , \mathbf{a} et \mathbf{T} désignent respectivement un scalaire, un vecteur et un tenseur d'ordre 2	xix
1.1	Quelques propriétés physico-chimiques typiques des verres utilisés à la température nominale d'élaboration	7
1.2	Quelques nombres adimensionnés typiques de l'élaboration de verre en creuset froid	7
3.1	Liste des codes de calcul développés lors de cette étude. La première partie du tableau est relative aux codes volumes finis qui, sauf mention contraire, permettent des simulations tridimensionnelles	55
4.1	Benchmark du code de calcul de la conductivité effective de milieux hétérogènes K-OF avec un rapport de conductivités $R = 10^3$	78
4.2	Fractions volumiques moyennes (entre parenthèses la valeur a priori) et valeurs de la longueur d'autocorrélation obtenues par analyse des résultats de tomographie d'échantillons de verre de type UOx	82
5.1	Comparaison quantitative entre simulation numérique directe et analyse de stabilité linéaire de la croissance des instabilités de Rayleigh-Taylor dans une suspension de particules diluée et stratifiée	100
5.2	Caractéristiques des expériences de sédimentation réalisées sur des verres chargés en particules de platinoïdes - les éléments entre parenthèses sont présents en suspension mais ne sont pas considérés	103
5.3	Paramètres du modèle de transport utilisés pour la simulation numérique des expériences de sédimentation réalisées sur des verres chargés en particules de platinoïdes	106
5.4	Temps caractéristiques des différents phénomènes de transport de particules et application numérique au cas de fusion de verre en creuset froid pour des paramètres nominaux de fonctionnement	108
6.1	Paramètres VFT des différents verres utilisés	121
6.2	Comparaison entre valeurs théoriques et expérimentales de la température de mélange pour les différentes expériences	122
6.3	Valeurs expérimentales de l'exposant de loi puissance du flux thermique en fonction de la vitesse de rotation de l'agitateur	122

7.1	Valeurs de certains paramètres physico-chimiques utilisées pour les simulations numériques couplées appliquées au procédé de creuset froid	126
7.2	Valeurs des paramètres utilisées pour la simulation couplée d'un amas de platinoïdes dans du verre chauffé par induction	127
7.3	Valeurs des nombres adimensionnés déterminants	128
7.4	Valeurs des paramètres dimensionnés déterminants les conditions aux limites thermiques utilisées lors de la simulation d'une fonte de verre en creuset froid	132
7.5	Valeurs de quelques nombres adimensionnés déterminant l'intensité des phénomènes en régime nominal de fonctionnement du creuset froid - les paramètres déjà évalués plus tôt dans l'étude ne sont pas reportés	133
7.6	Comparaison quantitative entre expérience et simulation numérique de flux thermiques reçus par les différents éléments refroidis du creuset en régime nominal de fonctionnement - incertitude relative expérimentale de 6%	140
7.7	Paramètres expérimentaux de l'expérience de sédimentation en similitude hydraulique approchée réalisée par Riva et al.	144
7.8	Comparaison quantitative de flux thermiques reçus par les différents éléments refroidis du creuset entre un régime nominal de fonctionnement et un régime de sédimentation des platinoïdes.	146
7.9	Série d'offsets $(\Delta T_{0i})_{1 \leq i \leq 4}$ mesurés à flux thermique nul	152
7.10	Comparaisons quantitatives de flux thermique surfacique sur un instrument de mesure dédié	153

Notations

Lorsqu'aucune confusion n'est possible, certaines grandeurs se voient attribuer une notation identique, communément admise et utilisée. Afin de ne pas alourdir les équations, les variables adimensionnées ne sont pas marquées comme telles, la distinction avec les variables dimensionnées est laissée à l'appréciation du lecteur. Toute ambiguïté sera levée dans le corps du texte.

Tableau 1 – Nomenclature : grandeurs à symboles latins

Symbole	Nom	Unité (SI)
a	Diffusivité thermique	m^2/s
A	Aire de section de passage	m^2
\mathbf{A}	Potentiel vecteur du champ magnétique	$\text{T}\cdot\text{m}$
A_σ, B_σ	Paramètres de conductivité électrique	$\text{S}/\text{m}, \text{J}/\text{mol}$
A, B, T_v	Coefficients VFT	$\text{m}^2/\text{s}, \text{J}/\text{mol}, \text{K}$
\mathbf{B}	Champ magnétique	T
c	Célérité de la lumière	m/s
C	Fraction volumique en particules	–
C_l, C_h	Fraction volumique en particules faible, élevée	–
\mathcal{C}	Moment par rapport à l'axe des forces fluides	$\text{N}\cdot\text{m}$
C_a	Fraction volumique compacte	–
c_p	Capacité thermique massique à pression constante	$\text{J}/\text{kg}/\text{K}$
C_p	Seuil de percolation	–
d, D	Diamètre	m
d	Densité	–
\mathbf{d}	Tenseur des taux de déformation	s^{-1}
D_h	Diamètre hydraulique	m
\mathcal{D}	Matrice de différentiation discrète	–
e	Épaisseur de matériau granulaire	m
E	Densité Spectrale de Puissance intégrée	–
\mathbf{E}	Champ électrique	N/C
$(\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y, \mathbf{e}_z)$	Base cartésienne orthonormale	–
E_c	Énergie cinétique	J
E_p	Énergie potentielle	J
E_m	Énergie mécanique	J
E_v	Puissance de dissipation visqueuse	W
f	Fréquence	Hz
\mathbf{g}	Accélération de la pesanteur	m/s^2
h	Coefficient de transfert thermique	$\text{W}/\text{m}^2/\text{K}$
h	Niveau de verre	m

H	Coefficient de transfert thermique total	$W/m^2/K$
I	Intensité de courant électrique	A
\mathbf{j}	Densité de courant	A/m^2
k	Nombre d'onde	m^{-1}
k	Conductivité	S/m ou $W/m/K$
k_B	Constante de Boltzmann	$m^2 \cdot kg/s^2/K$
k_c	Nombre d'onde de coupure	m^{-1}
l	Taille d'une coupe	m
l	Hauteur immergée	m
L	Taille du système	m
m	Masse	kg
\mathbf{n}	Vecteur unitaire normal sortant	—
n	Indice de réfraction	—
n	Porosité	—
N_A	Nombre d'Avogadro	mol^{-1}
N_c	Nombre de mailles	—
p, P	Périmètre	m
p	Fraction de code parallélisée	—
p'	Pression statique	Pa
P	Densité Spectrale de Puissance adimensionnée	—
p_J	Densité volumique de puissance Joule	W/m^3
P_J	Puissance Joule totale	W
\mathbf{q}	Flux thermique surfacique	W/m^2
\mathbf{q}_r	Flux thermique radiatif interne	W/m^2
Q	Débit volumique d'écoulement interne	m^3/s
r	Coefficient de corrélation linéaire	—
R	Rayon	m
R	Ratio de conductivités	—
R^n	Constante universelle des gaz parfaits	$J/mol/K$
s	Taux de croissance	s^{-1}
s, t	Exposants critiques	—
S	Surface	m^2 (3D) m (2D)
$S_{latence}$	Accélération en latence	—
\mathbf{S}	Source volumique de quantité de mouvement	N/m^3
t	Temps	s
T	Température	K
T	Période temporelle	s
T_c, T_h	Température froide, chaude	K
T_{ext}	Température du domaine extérieur	K
T_f	Température de sintérisation	K
T_M	Température de mélange	K
T^+	Température à la frontière du fluide	K
$\mathbf{u}(u, v, w)$	Vitesse du fluide	m/s
U	Vitesse imposée	m/s
U	Tension électrique	V
v	Valeur de voxel	—
v_t	Valeur de voxel seuil	—
V	Potentiel scalaire électrique	V

W_b	Puissance mécanique du bullage	W
\mathbf{x}	Vecteur position	m
(x, y, z) ou (x_1, x_2, x_3)	Coordonnées cartésiennes	m

Tableau 2 – Nomenclature : grandeurs à symboles grecs

Symbole	Nom	Unité (SI)
α	Exposant d'entravement	–
α	Coefficient de sous-relaxation	–
β	Coefficient de dilatation thermique	K^{-1}
β_p	Coefficient de masse volumique particulaire	–
β_r	Coefficient d'atténuation du rayonnement	m^{-1}
$\dot{\gamma}$	Taux de cisaillement	s^{-1}
γ	Exposant de loi d'échelle	–
γ	Tension superficielle	N/m
γ	Courbure géométrique	m^{-1}
Γ	Coefficient de diffusion	m^2/s
δ, δ_t	Épaisseur de couche limite dynamique, thermique	m
δ	Épaisseur de peau électromagnétique	m
δ	Angle de perte	rad
δ	Distribution de Dirac	–
Δ	Largeur de classe de rayons adimensionnée	–
ε	Émissivité	–
ε_0	Permittivité du vide	F/m
ζ	Coefficient de pression particulaire	Pa
η	Viscosité dynamique	Pa·s
θ	Angle polaire	rad
κ	Diffusivité des particules	m^2/s
λ	Longueur d'onde	m
λ	Conductivité thermique effective	W/m/K
λ_t	Conductivité thermique vraie	W/m/K
λ_r	Conductivité thermique de Rosseland	W/m/K
μ_0	Perméabilité magnétique du vide	T·m/A
μ, ν	Paramètres de loi log-normale	–
ν	Viscosité cinématique	m^2/s
ξ	Longueur d'autocorrélation	m
ξ	Source thermique	K/s
ξ	Distance de sédimentation du front	m
ρ	Masse volumique	kg/m^3
ρ	Densité de charge électrique	C/m^3
σ	Constante de Stefan-Boltzmann	$W/m^2/K^4$
σ	Conductivité électrique	S/m
σ	Écart type relatif	–
σ_w	Constante de Wien	K·m
τ	Vitesse de sédimentation de Stokes	m/s
τ	Constante de temps	s

τ	Tenseur des contraintes	N/m ²
ϕ	Fonction indicatrice de phase	—
Φ	Flux thermique global	W (3D) W/m (2D)
Φ^{2D}, Φ^{3D}	Histogramme de distribution apparente, réelle	—
Φ_{\pm}	Fonctions d'échelle de conductivité effective	—
χ	Facteur d'accélération de la sédimentation	—
ψ	Fonction de courant	m ² /s
Ψ	Coefficient de saut	—
Ψ	Rapport d'aspect	—
ω	Pulsation	rad/s
ω	Vitesse de rotation	rad/s

Tableau 3 – Nomenclature : nombres adimensionnés

Symbole	Nom
A	Atwood
Bi	Biot
Br	Brinkman
D	Température de Vogel adimensionnée
Gr	Grashof
Gr_p	Grashof massique
Ha	Hartmann
In	Paramètre de chauffage par effet Joule
Mg	Marangoni
N	Stuart
\mathcal{N}	Vitesse de sédimentation adimensionnée
Nu	Nusselt
N_p	Newton
N^+	Stark
Pe	Péclet
Pe_p	Péclet particulière
Pn	Pearson
Pr	Prandtl
Re	Reynolds
R_m	Reynolds magnétique
R_ω	Paramètre d'écran
Ri	Richardson
Ri_p	Richardson massique
Sc	Schmidt
St	Stokes

Tableau 4 – Notations de calcul tensoriel - s , \mathbf{a} et \mathbf{T} désignent respectivement un scalaire, un vecteur et un tenseur d'ordre 2

Symbole	Opérateur	Notation indicielle en coordonnées cartésiennes
∇s	Gradient de s	$\frac{\partial s}{\partial x_j}$
$\nabla \mathbf{a}$	Gradient de \mathbf{a}	$\frac{\partial a_i}{\partial x_j}$
$\nabla \cdot \mathbf{a}$	Divergence de \mathbf{a}	$\frac{\partial a_j}{\partial x_j}$
$\nabla \cdot \mathbf{T}$	Divergence de \mathbf{T}	$\frac{\partial T_{ij}}{\partial x_j}$
$\nabla \wedge \mathbf{a}$	Rotationnel de \mathbf{a}	—
$\nabla^2 s$	Laplacien de s	$\frac{\partial^2 s}{\partial x_j \partial x_j}$
$\nabla^2 \mathbf{a}$	Laplacien de \mathbf{a}	$\frac{\partial^2 a_i}{\partial x_j \partial x_j}$
$\nabla^4 s$	Bilaplacien de s	$\frac{\partial^4 s}{\partial x_i \partial x_i \partial x_j \partial x_j}$

Chapitre 1

Introduction

1.1	Vitrification des déchets radioactifs	2
1.1.1	Principe de confinement	2
1.1.2	Procédés d'élaboration	2
1.2	Description du creuset froid inductif	3
1.2.1	Conception et fonctionnement	3
1.2.2	Le matériau « verre nucléaire » en creuset froid	4
1.3	Modélisation et simulation numérique du creuset froid : motivations et état de l'art	7
1.4	Objectifs et démarche	9
1.4.1	Avancées attendues	9
1.4.2	Méthodologie	10

1.1 Vitrification des déchets radioactifs

1.1.1 Principe de confinement

Après son passage en réacteur nucléaire, le combustible fait l'objet d'un recyclage permettant l'extraction et la séparation de deux éléments d'un fort intérêt industriel, l'uranium et le plutonium, n'ayant pas subi de fission nucléaire. Le cycle du combustible nucléaire est sujet à une continuelle réflexion dans le but d'optimiser la production d'électricité tout en minimisant la quantité de déchets non valorisables. Une part de ces déchets (environ 4%) reste cependant non valorisable à ce jour à l'aide des technologies connues, qui sont soit inadaptées soit trop coûteuses. Ces déchets issus du combustible usé, dit ultimes, viennent s'ajouter aux déchets contaminés produits par l'industrie nucléaire. Mais à la différence de ces derniers, ils contiennent à la fois des produits de fission de haute activité et des actinides mineurs possédant un temps de demi-vie long. Dès le milieu du XXème siècle, le confinement à long terme est évoqué comme étant une solution intéressante pour la gestion du caractère irradiant et potentiellement contaminant de ces déchets. Le choix porte très vite sur un conditionnement sous forme solide, à l'intérieur d'une matrice stabilisante, plutôt que sous forme liquide. Il est alors montré qu'une incorporation de ces déchets à l'échelle atomique permet une rétention suffisante et durable. Le conditionnement s'est révélé satisfaisant dans des matrices vitreuses, dont l'absence d'ordre à moyenne distance permet l'incorporation à l'échelle atomique de toute une diversité d'éléments radioactifs.

1.1.2 Procédés d'élaboration

Dès lors que la vitrification a été choisie pour le conditionnement à long terme des déchets ultimes, l'enjeu a consisté à développer des procédés performants à échelle industrielle, en termes d'étapes de prétraitement, de formulation des verres, d'élaboration et de stockage. Ces procédés constituent l'étape ultime du retraitement du combustible, gérant la part des déchets n'ayant pas pu être recyclés et revalorisés. Parmi eux, le procédé d'élaboration du verre constitue une étape importante, où les solutions chimiques contenant les radioisotopes issues du traitement du combustible usé sont mélangées à une fritte de verre inactive produite en amont. Le mélange est alors porté à une température de plus de 1100 °C et brassé dans un four, permettant les diverses réactions chimiques nécessaires ainsi que son homogénéisation. Le verre élaboré est ensuite coulé dans un conteneur en acier inoxydable adapté à l'entreposage et au stockage à long terme grâce à l'ouverture programmée d'un orifice de coulée situé en fond de four. Les procédés décrits sont dits à « coulée discontinue », chaque coulée de verre en conteneur ayant seulement lieu après une phase d'alimentation-élaboration.

Plusieurs procédés d'élaboration des verres nucléaires ont été développés ou sont en cours de conception. Tous sont différents à bien des égards, leurs différences de conception provenant en partie de la composition chimique des déchets à vitrifier, plus ou moins corrosifs ou nécessitant une température d'élaboration plus ou moins élevée. Nous n'aborderons pas ici de manière exhaustive l'ensemble des procédés développés afin de nous concentrer sur l'expérience française, dont Advocat et al. [1] font une présentation exhaustive. La première conception d'une chaîne de vitrification française en deux étapes (évaporation et calcination de la solution de déchets puis vitrification en four par l'ajout de fritte de verre), mise au point et utilisée au centre de Marcoule, s'est déclinée sous

la forme d'un procédé dit en « pot chaud ». Dans ce design, le mélange de fritte et de déchets calcinés est chauffé indirectement par le chauffage du creuset métallique par induction électromagnétique. Ce procédé est actuellement en fonctionnement en France depuis sa conception (production de la Hague démarrée en 1989) et a permis la production de nombreux colis de verre, actuellement stockés sur le site de l'usine de retraitement de la Hague et sur le centre de Marcoule. L'augmentation du temps de séjour des crayons de combustible en réacteur au cours des quarante dernières années ainsi que le traitement de combustible provenant de réacteurs expérimentaux ou bien de l'étranger a entraîné une évolution de la composition des déchets nucléaires. Gérer et s'adapter à ces variations de composition peut nécessiter en particulier le développement et l'utilisation de nouvelles formulations de verre et d'un nouveau four d'élaboration, appelé « creuset froid ». Dans ce nouveau design, les matériaux du creuset sont moins soumis à la corrosion qu'en pot chaud, permettant ainsi d'atteindre des températures de chauffe plus importantes, nécessaires à la bonne élaboration du verre final et à l'augmentation des taux d'incorporation. Si la température de chauffe en pot chaud est limitée à 1150 °C environ, en raison de la corrosion des matériaux par le verre en fusion au contact direct des parois, le creuset froid est refroidi par une circulation interne d'eau sous pression, le chauffage du verre étant assuré par l'induction électromagnétique directe de courants de Foucault dans la charge verrière. Une couche de verre relativement froide sépare alors le mélange en fusion du creuset, éliminant quasi-totalement tout phénomène de corrosion de ce dernier et permettant d'atteindre des températures de chauffe de l'ordre de 1300 °C. La durée de vie de ce four d'élaboration est donc potentiellement bien plus grande que celle du procédé en pot chaud, ce qui permet de limiter la production de nouveaux déchets contaminés liés au processus de retraitement (« déchets secondaires technologiques ») ainsi que la fréquence des opérations de maintenance du procédé.

1.2 Description du creuset froid inductif

1.2.1 Conception et fonctionnement

Le procédé d'élaboration pour la vitrification des déchets ultimes qui nous intéresse et tel que conçu au CEA met en jeu un four de fusion cylindrique de type creuset froid inductif, d'un diamètre de 650 mm et dont la structure principale est faite d'acier inoxydable refroidi par une circulation interne d'eau pressurisée (cf. figures 1.1 et 1.2). Le creuset est placé au sein d'un inducteur également refroidi par une circulation interne d'eau et alimenté par un circuit de puissance oscillant piloté par l'opérateur. Afin de permettre l'induction directe de courants de Foucault au sein de la charge de verre et de déchets à fondre, la paroi latérale du creuset, appelée « virole » est sectorisée. Cette paroi est en effet découpée en plusieurs secteurs verticaux accolés les uns aux autres de manière à former le creuset mais tous séparés par une fine couche de matériau diélectrique empêchant la formation de courants induits circulant sur l'ensemble de la circonférence du creuset. En l'absence de sectorisation, le creuset jouerait le rôle de blindage électromagnétique et empêcherait toute induction dans la charge. Grâce à la sectorisation, mise en place également sur le fond du creuset appelé « sole », la circulation des courants induits dans l'acier est limitée à chaque secteur. Ainsi, dans une telle configuration, l'amplitude du champ magnétique à l'intérieur du creuset est voisine de celle du champ que créerait l'inducteur en son centre en l'absence de creuset. L'induction directe permet alors de chauffer, de fondre et de

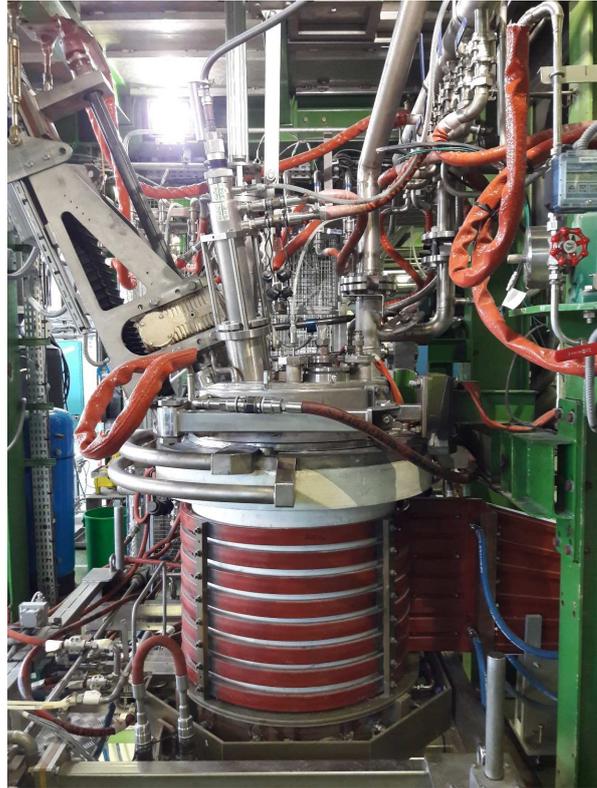
maintenir à température élevée la charge placée dans le creuset. Comme mentionné plus tôt, cette configuration particulière présente l'avantage décisif de maintenir une couche de verre relativement froide entre la charge et les parois refroidies du creuset, qui constitue une isolation à la fois chimique, électrique et thermique, limitant ainsi considérablement l'altération des matériaux composant le creuset. Elle présente, en retour, l'avantage de limiter la pollution de la charge par les produits de corrosion des matériaux du creuset. Enfin, ce procédé montre une plus grande réactivité que l'élaboration en pot chaud car la commande de l'alimentation de l'inducteur se répercute immédiatement sur la puissance transmise à la charge.

Cette conception principale est améliorée par l'ajout de plusieurs éléments internes actifs ou passifs. Parmi les internes passifs, on trouve deux cannes refroidies à l'intérieur desquelles sont placés des capteurs thermocouples. Les embouts de ces cannes, immergés dans le verre en fusion, ne sont pas refroidis et sont donc constitués de matériaux nobles résistants aux altérations mentionnées plus haut. La soudure chaude des thermocouples est placée dans ces embouts atteignant rapidement la température du bain de verre environnant et permettant sa mesure. Les internes actifs sont les éléments refroidis permettant une bonne homogénéisation thermique [2] et chimique de la fonte : l'agitateur mécanique et les injecteurs de gaz (« bulleurs »). L'agitateur mécanique est un agitateur rotatif à deux pales refroidi par une circulation interne d'eau. Les trois injecteurs de gaz (généralement de l'air) sont fixés à la sole du creuset et également refroidis à l'eau. Il est important de noter qu'une telle géométrie ne possède en particulier aucune invariance par rotation.

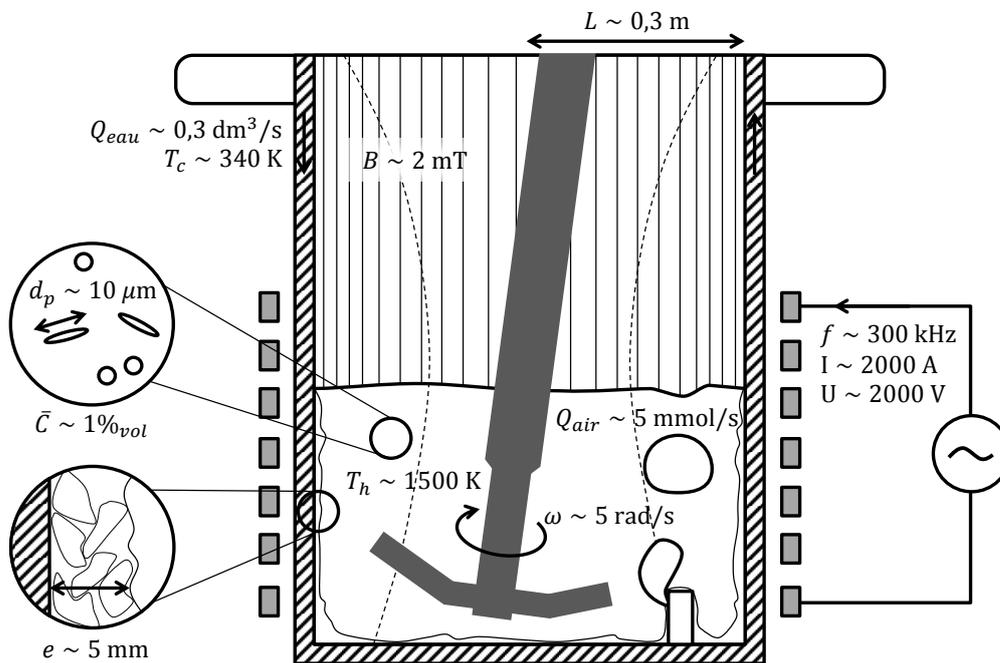
Dans les procédés mettant en jeu des champs magnétiques oscillants, il est délicat de tenter d'imposer à l'ensemble des éléments un potentiel électrique de référence ou « masse » (potentiel de la terre par exemple) car une force électromotrice se développe aux bornes de toute portion de matériau conducteur. Les éléments du creuset froid sont donc pour la plupart laissés en potentiel flottant. Les courants passant à travers l'inducteur ainsi que les courants induits dans l'ensemble des structures métalliques dissipent une certaine quantité d'énergie thermique par effet Joule, s'élevant typiquement à un tiers de la puissance totale fournie par l'alimentation électrique.

1.2.2 Le matériau « verre nucléaire » en creuset froid

Les verres produits en creuset froid ont connu plusieurs formulations selon le type de déchets nucléaires traités. Les travaux présentés s'appliquent en grande partie à l'ensemble de ces verres avec une étude plus approfondie des verres de type UOx, élaborés pour le conditionnement des déchets issus du passage en Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) à usage civil des combustibles à base d'oxyde d'uranium. À composition de flux de déchets nucléaires connue (issus des étapes amonts de traitement), les étapes de formulation de verre permettent de proposer une composition chimique susceptible de présenter les caractéristiques nécessaires au bon fonctionnement du procédé de vitrification en creuset froid parmi lesquels des conductivité électrique et fluidité suffisantes à l'état fondu ou encore l'homogénéité (phase amorphe unique). Malgré cette première phase d'optimisation, certaines fontes verrières de l'industrie nucléaire (en particulier les verres borosilicates de type UOx) présentent une phase constituée de divers métaux, essentiellement platinoïdes, non dissoute dans la matrice de verre [3], à l'origine d'un changement de comportement de la



(a) Photographie d'un creuset froid instrumenté en fonctionnement au CEA



(b) Schéma représentatif du creuset froid et de son inducteur mentionnant les principaux paramètres nominaux de procédé et dimensions caractéristiques

Figure 1.1 – Creuset froid utilisé pour l'élaboration de verre



Figure 1.2 – Photographie de l'intérieur du creuset froid lors de la fusion de verre - l'agitateur mécanique se trouve ici hors du bain, couvert de verre solidifié

fonte en convection essentiellement dû à la modification de ses propriétés électriques [4–6] et de sa rhéologie [7, 8]. La présence de cette phase est associée à la faible solubilité de ces éléments dans les verres. Cette phase est dispersée, présente sous la forme de particules à l'état solide ou parfois liquide d'une taille de l'ordre de $10\ \mu\text{m}$. Nous qualifierons ces particules de « platinoïdes » bien qu'il ait été montré qu'elles contiennent parfois des métalloïdes supplémentaires formant des alliages avec les platinoïdes à proprement parler, notamment de palladium-tellure [9–11]. Le procédé d'élaboration doit alors montrer une certaine robustesse vis-à-vis de cette inhomogénéité, qui passe par la compréhension fine des phénomènes causés par la présence de cette phase non dissoute.

Le tableau 1.1 rassemble quelques propriétés physico-chimiques typiques des verres utilisés à la température nominale d'élaboration. Ces valeurs, combinées aux principaux paramètres nominaux de procédé et dimensions caractéristiques présentés sur la figure 1.1 permettent une première évaluation des nombres adimensionnés caractéristiques du problème multiphysique (dont des définitions précises seront données plus tard dans ces travaux), rassemblées dans le tableau 1.2. Ces valeurs indiquent en particulier que :

- L'induction électromagnétique se trouve dans un régime intermédiaire, entre régime de grande peau ($R_w < 1$) et de fine peau ($R_w \gg 1$);
- L'écoulement de verre est laminaire;
- Les échanges thermiques sont majoritairement convectifs;
- Les particules de platinoïdes de taille nominale et non agrégées se comportent comme des traceurs.

Tableau 1.1 – Quelques propriétés physico-chimiques typiques des verres utilisés à la température nominale d’élaboration

Symbole	Propriété	Valeur
σ	Conductivité électrique	40 S/m
ρ	Masse volumique	$2,5 \cdot 10^3$ kg/m ³
η	Viscosité dynamique	4 Pa·s
λ	Conductivité thermique	5 W/m/K
c_p	Capacité thermique massique	$1,6 \cdot 10^3$ J/kg/K
ρ_p	Masse volumique des particules de platinoïdes	$8,3 \cdot 10^3$ kg/m ³

Tableau 1.2 – Quelques nombres adimensionnés typiques de l’élaboration de verre en creuset froid

Nombre	Valeur
Paramètre d’écran R_ω	8,5
Reynolds Re	200
Péclet Pe	$2 \cdot 10^5$
Stokes St	$4 \cdot 10^{-8}$

1.3 Modélisation et simulation numérique du creuset froid : motivations et état de l’art

Dans nos travaux, le terme « modélisation » est entendu au sens de « modélisation mathématique », c’est-à-dire l’écriture de systèmes d’équations représentant, avec un certain degré d’approximation, les phénomènes réels. Le terme « simulation » désignera quant à lui systématiquement la « simulation numérique », c’est-à-dire l’adaptation aux moyens de calcul numériques de la modélisation proposée notamment grâce au développement de schémas numériques d’intégration.

De nombreuses équipes de toutes nationalités ont développé par le passé et développent actuellement des procédés industriels (qui ne concernent pas seulement l’industrie nucléaire) basés sur la technologie du creuset froid. Le principal avantage du creuset froid poussant ces équipes à l’utiliser est la minimisation de la pollution de la charge lors de son élaboration, permettant la production de matériaux d’un haut niveau de pureté. On distingue généralement deux grandes familles de creusets froids, les premiers dédiés à la production de métaux et semi-conducteurs à haute valeur ajoutée (comme le silicium photovoltaïque), les autres destinés à la production d’oxydes dont les verres. Bien que de conceptions semblables, les phénomènes observés diffèrent grandement entre ces deux familles. En particulier, les métaux et semi-conducteurs, présentant des conductivités électriques importantes et des viscosités relativement faibles, entraînent l’apparition de forts couplages magnétohydrodynamiques et d’écoulements turbulents, non observés dans le cas de la fusion de verres. C’est à cette dernière application que ces travaux sont dédiés. Parmi les pays utilisateurs de la fusion d’oxydes en creuset froid, on trouve les États-Unis, la Russie, la France, l’Allemagne mais aussi la Corée du Sud ou encore l’Inde et plus récemment la Chine. Ces pays possèdent pour la plupart un programme de développement national de la technologie de creuset froid dédié à la problématique régaliennne de vitrifica-

tion des déchets radioactifs. Ce programme comporte systématiquement une composante de modélisation et de simulation numérique du creuset froid inductif. En effet, bien que massivement instrumenté, le creuset froid et sa charge constituent des éléments difficiles à observer en cours de fonctionnement en raison des conditions extrêmes de température, de champ magnétique ou encore de sollicitation chimique. La démarche de modélisation mathématique des procédés et, si besoin, leur résolution par simulation numérique, est une démarche en fort développement dans le domaine de l'ingénierie et notamment de l'ingénierie des systèmes industriels (R&D de type « Model and Simulation-based Systems Engineering »), nécessitant la prise en compte de nombreux phénomènes physiques couplés. Cette démarche s'inscrit d'une part dans la volonté de dimensionner les systèmes lors des phases de conception et de valider le comportement de produits en développement, notamment dans le cas où l'observation et la mesure de ce comportement sont complexes. La compréhension des comportements constitue alors la première étape vers l'optimisation du produit. D'autre part, et dans un second temps, l'utilisation de modèles calibrés offre la possibilité d'anticiper et de prédire le comportement des produits développés, dans une large gamme de points de fonctionnement. Notre démarche s'inscrit donc pleinement dans les cinq grandes fonctions de la modélisation selon F. Varenne et al. [12] : observation et expérimentation, présentation intelligible, théorisation, discussion et décision.

Au regard de la description du procédé, trois physiques jouent un rôle crucial dans la technologie du creuset froid appliqué à la fusion de verre :

- L'électromagnétisme ;
- La mécanique des fluides ;
- La thermique.

La complexité de la modélisation d'un tel système réside principalement dans le couplage fort qui existe entre ces différentes physiques. Ce couplage peut se décomposer formellement en deux sortes. Le premier type de couplage est l'apparition dans la modélisation d'une physique d'un terme associé à une autre physique (champ de vitesse du fluide, puissance dissipée par effet Joule...). Un second type de couplage apparaît lorsque les propriétés physico-chimiques entrant en jeu dans la modélisation d'une physique sont dépendantes de grandeurs relevant d'une autre physique (viscosité du fluide dépendante de la température, conductivité électrique dépendante de la température...).

Les thèses de L. Jacoutot [13] et E. Sauvage [14] ont proposé une revue de littérature exhaustive sur l'historique du développement des modèles et simulations numériques du creuset froid dédié à la fusion d'oxydes du début des années 2000. L'augmentation exponentielle des capacités de calcul ces dernières années a amené les équipes de recherche à proposer d'une part des modélisations de plus en plus fines des trois physiques et d'autre part des résolutions sur des géométries tridimensionnelles. Une autre tendance est toutefois observée, celle de simplifier les approches de modélisation afin de ne pas alourdir inutilement les simulations numériques. Cette démarche est motivée par l'intérêt croissant des industriels de bénéficier de simulations numériques prédictives mais relativement faciles à mettre en œuvre et robustes lors d'un changement substantiel des paramètres (physico-chimiques ou géométriques). Nous proposons ici un suivi des publications les plus récentes traitant des stratégies de modélisation de l'élaboration d'oxydes en creuset froid. Les revues bibliographiques sur des sujets plus spécifiques seront abordées dans les sections dédiées.

En 2012, Gopalakrishnan et Thess [15] ont proposé une approche de modélisation multiphysique du creuset froid basée sur une solution analytique du problème d'induction électromagnétique dans un cylindre, représentant la charge, soumis à un champ magnétique harmonique uniforme. Le terme de puissance Joule dissipée localement alors obtenu est modulé a posteriori par des fonctions de pondération permettant la prise en compte des inhomogénéités spatiales de champ magnétique et de conductivité électrique. Les équations de la thermohydraulique sont quant à elle résolues par simulation numérique, la puissance Joule précalculée agissant simplement comme un terme source dans l'équation de transport de l'énergie thermique. L'étude propose une comparaison avec une simulation numérique couplée basée sur le logiciel COMSOL MULTIPHYSICS®, montrant un très bon accord des champs de température obtenus. Dans ce type de stratégie, les champs électromagnétiques et les courants induits dans la charge sont donc prescrits et totalement indépendants à la fois de la présence d'internes métalliques baignant dans la charge de verre (comme l'agitateur mécanique) et des autres physiques.

En 2015, Nacke et al. [16] propose également de limiter les coûts de calcul associés à la résolution du problème électromagnétique en important dans la simulation numérique thermohydraulique une carte de champ électromagnétique précalculée à l'aide d'une résolution numérique des équations de Maxwell sur l'ensemble du système inducteur-creuset. Ils utilisent pour cela la suite de logiciels d'ANSYS®. La carte de champ électromagnétique permet de dériver la puissance Joule dissipée localement dans la charge ainsi que les forces de Lorentz s'appliquant sur le fluide. Ils obtiennent un bon accord avec les résultats de l'étude expérimentale de leur procédé, notamment pour les flux thermiques de la charge d'alumine vers le creuset. Dans cette étude, le couplage entre électromagnétisme et les autres physiques est également unidirectionnel.

En 2017, Chen et al. [17] propose un modèle simplifié 2D résolvant de manière simultanée et couplée l'induction électromagnétique et la thermique lors de la phase transitoire de démarrage d'un creuset froid, afin d'optimiser la technique de démarrage par anneau susceptible. Les auteurs insistent sur le fait qu'un couplage fort entre ces deux physiques est nécessaire lors de la résolution numérique de phases transitoires où la température du verre change drastiquement au cours du temps, en raison des fortes variations de conductivité électrique associées et donc de puissance Joule injectée. Peu de détails sont toutefois donnés concernant les techniques de couplage utilisées, et ces travaux montrent qu'il est encore impossible avec les capacités de calcul actuelles de résoudre un problème transitoire de longue durée (quelques heures) sur une géométrie tridimensionnelle.

1.4 Objectifs et démarche

1.4.1 Avancées attendues

La présente étude a pour objectif de proposer un modèle multiphysique prenant en compte les divers couplages considérés comme influençant au premier ordre l'ensemble du problème. Notre modélisation est de manière générale dédiée au comportement de la fonte et non à celui du procédé de fusion (champ électromagnétique en dehors de la charge, thermique des composants du creuset...) ni à l'évolution chimique du verre. L'étude devra démontrer l'exhaustivité de l'approche, en termes à la fois de phénomènes

considérés et d'hypothèses réalisées, dont les domaines de validité devront être précisés. Le but est alors d'augmenter la prédictibilité des simulations numériques de l'élaboration de verre en creuset froid et de proposer des explications aux phénomènes observés lors de la mise en œuvre du procédé. À ce titre, voici les axes de travail et les avancées attendues, indispensables à l'utilisation future de la simulation numérique des creusets froids de vitrification. Certains sont numériques, d'autres sont centrés sur la prise en compte de phénomènes physiques jusqu'à présent négligés ou ignorés :

- Comprendre et améliorer la modélisation du transport d'énergie : ajouter un modèle de transport radiatif adapté, évaluer et modéliser l'impact de la morphologie du contact entre verre et paroi du creuset, proposer une loi d'échelle du flux thermique adaptée au cas d'un fluide à viscosité fortement dépendante de la température ;
- Comprendre et modéliser l'impact des particules de platinoïdes sur l'élaboration : ajouter un modèle de transport de particules, évaluer l'impact des particules sur les propriétés physico-chimiques de la fonte verrière et son évolution magnéto-thermo-hydraulique ;
- Développer un code de simulation numérique multiphysique permettant la résolution simultanée et couplée de l'ensemble des physiques à l'échelle industrielle : les codes de calcul devront être précis, stables et optimisés en temps.

1.4.2 Méthodologie

Séquence des points abordés

La première partie de cette étude est dédiée à la dérivation de l'ensemble des modèles et équations permettant la prise en compte des phénomènes d'intérêt se produisant lors de la fusion de verre en creuset froid. Le chapitre suivant détaille les méthodes de simulation numériques conçues et utilisées pour la résolution du problème couplé. Les trois chapitres suivants permettent d'aborder des points spécifiques cruciaux qui mettent en avant le comportement particulier de la fonte. En soi, ces chapitres n'apportent pas de nouveaux éléments de modélisation à proprement parler mais ils révèlent et quantifient des phénomènes multiphysiques et multi-échelles contenus a priori dans les formulations explicitées dans le premier chapitre et observés sur creuset froid. Enfin, nous dédions une partie à la mise en œuvre des modèles et codes de simulation numérique pour le cas du creuset froid et à la comparaison des résultats avec des mesures réalisées sur les prototypes de creuset froid utilisés au CEA.

Techniques d'analyse

Nos travaux s'appuient sur plusieurs outils mathématiques qui, pour des raisons de clarté du discours, ne seront pas présentés dans le détail. Nous utiliserons en particulier l'analyse spectrale appliquée au traitement du signal, l'analyse de stabilité linéaire ou encore l'analyse de couche limite.

Nous attacherons d'autre part une grande importance à définir des échelles de grandeur (temps, longueur...) de référence afin de proposer une écriture adimensionnée des problèmes d'évolution rencontrés dans la modélisation. Cette approche présente de nombreux avantages. L'adimensionnement permet en premier lieu de simplifier le problème en ramenant le nombre de paramètres déterminants à son strict minimum qui, d'après

le théorème de Vaschy-Buckingham, correspond au nombre de paramètres initiaux diminué du nombre de dimensions physiques indépendantes (parmi les 7 fondamentales). Un deuxième avantage est associé à la compréhension des phénomènes physiques gouvernant le système. Si un paramètre dimensionné est révélateur d'une propriété physico-chimique, son association au sein d'un nombre adimensionné avec d'autres paramètres est révélatrice de l'intensité d'un phénomène physique causé par cette propriété physico-chimique et apporte donc bien plus d'informations. D'autres avantages sont d'ordre numérique. Entre autres, l'adimensionnement permet en effet de déterminer les paramètres des schémas de discrétisation (taille de la maille, du pas de temps...) indépendamment de la taille physique du système et de la durée physique de son observation. Il permet également, indépendamment de l'intensité des phénomènes, d'observer les termes dominants du schéma en comparant leur valeur à 1, facilitant ainsi les phases de développement et de débogage. Enfin, un bon choix d'échelles caractéristiques permet de ramener les évaluations numériques des champs simulés (vitesse, température, potentiels électromagnétiques...) à des valeurs proches de l'unité et ainsi d'éviter des problèmes liés à la précision de la représentation numérique des flottants (« erreur machine »), même si la valeur numérique physique du champ est « faible » lorsque exprimée dans les unités du Système International. Un désavantage de cette méthode réside toutefois dans l'impossibilité de contrôler la cohérence des équations encodées au moins d'un point de vue dimensionnel, mais ce travail doit être réalisé en amont, durant la phase de modélisation.

Chapitre 2

Modélisation et formulation

« The difficulty in developing an adequate model does not arise from any ignorance of the fundamental laws, rather the problem arises in complications in their application. »

– R. A. Crane et R. I. Vachon [18]

2.1	Électromagnétisme	15
2.1.1	Équations de Maxwell	15
2.1.2	Méthodes d'imposition d'un champ électromagnétique externe	18
2.1.3	Condition de jauge de Coulomb	20
2.1.4	Conditions aux limites	20
2.1.5	Adimensionnement dans le cas harmonique	21
2.2	Thermohydraulique	22
2.2.1	Équations de Navier-Stokes et de l'énergie	23
2.2.2	Approximation de Rosseland	24
2.2.3	Approximation de Boussinesq	26
2.2.4	Écriture des conditions aux bords	28
2.2.5	Adimensionnement	30
2.2.6	Dépendance à la température des propriétés du verre nucléaire	32
2.2.7	Modélisation de la résistance thermique aux parois	34
2.3	Transport de particules	37
2.3.1	Approche Eulérienne	38
2.3.2	Détermination d'une équation de transport	38
2.3.3	Détermination de la diffusivité	42
2.3.4	Dépendance des paramètres de transport à la température	45
2.3.5	Mode de sédimentation « en agrégats »	45
2.3.6	Adimensionnement	47
2.4	Retour sur les couplages	47
2.4.1	Couplages pris en compte	47
2.4.2	Phénomènes négligés	48
2.5	Conclusion	50

Nous abordons dans cette section les hypothèses et choix de modélisation réalisés pour l'ensemble des physiques en jeu. Afin d'atteindre l'objectif de disposer d'un outil de simulation numérique multiphysique adapté aux caractéristiques techniques de la fusion de verre en creuset froid (géométrie dépendante du temps en raison de la présence d'un agitateur mécanique, nombreux couplages...) et optimisé en temps, nous faisons en particulier le choix de limiter la modélisation à l'espace occupé par la fonte de verre. Si cet aspect est classique dans le cadre de la modélisation thermohydraulique, il reste beaucoup moins répandu dans le cadre de la simulation électromagnétique de la fusion de matériaux car, hormis les fours à électrodes, les dispositifs inducteurs de champ électromagnétique se trouvent en général à l'extérieur du creuset et sont sans contact physique avec la fonte. Nous montrerons dans la section dédiée à la modélisation électromagnétique qu'une formulation en potentiels accompagnée de conditions aux limites pertinentes permettent une telle restriction spatiale.

De ces choix découlent des formulations mathématiques adaptées à la description du système multiphysique, principalement sous la forme d'équations aux dérivées partielles accompagnées de leurs conditions aux limites du domaine spatial considéré. Nous optons pour des formulations locales (et non intégrales) pour lesquelles la recherche de solutions est facilitée par l'existence de nombreuses méthodes de résolution d'équations différentielles analytiques ou numériques. Le système d'équations et les conditions aux limites sont supposés formuler un problème bien posé au sens de Hadamard, bien que, entre autre, l'existence systématique d'une solution forte des équations de Navier-Stokes reste à prouver. Des solutions peuvent être déterminées sous forme analytique dans quelques cas, qui serviront d'ailleurs de benchmarks. Toutefois, nous ne pouvons concevoir une solution analytique pour la modélisation couplée du creuset froid, en particulier en raison de sa géométrie spatiale complexe. Nous aurons donc recours à des méthodes de simulation numérique, présentées dans le chapitre suivant.

Certaines hypothèses simplificatrices seront faites et justifiées, permettant la dérivation des équations et des conditions aux limites à résoudre. Dans l'hypothèse des milieux continus, réalisée dans le cadre de cette étude, les lois fondamentales sont connues. L'éventuel désaccord entre les résultats de la modélisation et de la simulation et ceux de l'expérimentation nécessiterait donc la remise en cause, soit des hypothèses de modélisation ayant permis la simplification du problème, soit de la véracité des mesures physiques réalisées.

2.1 Électromagnétisme

Lors de la conception d'un creuset froid inductif, tout est mis en œuvre pour que le champ magnétique produit par l'inducteur pénètre en profondeur dans la charge à chauffer. D'une part, la virole du creuset est sectorisée pour annihiler le phénomène de blindage électromagnétique dû au développement de courants modérateurs dans les structures métalliques. D'autre part, la fréquence des courants d'alimentation de l'inducteur est choisie de telle sorte que l'épaisseur de peau électromagnétique dans la charge de verre chaud soit suffisamment grande. Le but est de s'approcher d'un champ magnétique uniforme dans la charge. Cependant, à champ magnétique quasi-uniforme ne correspond pas une densité de puissance de chauffage par induction uniforme mais globalement proportionnelle au carré de la distance à l'axe du creuset (en particulier nulle sur l'axe). À cette première inhomogénéité vient s'ajouter d'autres inhomogénéités dues :

- à la présence d'internes immergés dans la charge (agitateur, cannes de mesure de température...) détournant les courants induits ;
- aux variations spatiales de conductivité électrique du verre, plus faible au contact du creuset par exemple (en raison de la relative faible température du verre).

Afin de capturer dans la modélisation la non-uniformité de la densité de puissance Joule induite et les impacts thermiques qui s'en suivent, il est donc nécessaire de modéliser l'évolution du champ électromagnétique dans la charge de verre. Nous nous attacherons également à expliciter les équations à résoudre dans le cas stationnaire car nous montrons dans ces travaux que l'utilisation à petite échelle de la formulation électrostatique découlant de cette modélisation électromagnétique permet de proposer un modèle de conductivité électrique du verre dépendante de la température et de la concentration en particules de platinoïdes.

2.1.1 Équations de Maxwell

Les équations de Maxwell régissent l'évolution du champ électromagnétique (\mathbf{E} , \mathbf{B}). Nous considérerons un système matériel de taille caractéristique L composé de matériaux conducteurs linéaires isotropes localement non-polarisables et non-magnétiques¹. Cette étude s'inscrit dans l'Approximation des Régimes Quasi Stationnaires (ARQS) magnétique. Cette approximation est valable dans le cas des régimes stationnaires et, dans le cas des régimes harmoniques, pour des milieux suffisamment conducteurs (donc hors verre trop froid, par exemple) et pour des temps de propagation d'onde électromagnétique à travers le système faibles devant la période temporelle de l'excitation :

$$\frac{L\omega}{c} \ll 1$$

où ω et c désignent respectivement la pulsation du champ électromagnétique et la célérité de la lumière. Dans les développements qui suivent, les termes négligés dans l'ARQS seront placés entre crochets. Sans charges électriques ni courants imposés (sources), les équations de Maxwell s'écrivent alors :

1. C'est le cas des éléments rencontrés dans les verres nucléaires. En particulier, le dioxyde de ruthénium et le palladium sont deux espèces très faiblement paramagnétiques et le tellure est très faiblement diamagnétique (leur susceptibilité magnétique à 293 K valant respectivement $1,1 \cdot 10^{-4}$, $7,7 \cdot 10^{-4}$ et $-2,3 \cdot 10^{-5}$).

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = \frac{\rho}{\varepsilon_0} \quad (2.1)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (2.2)$$

$$\nabla \wedge \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (2.3)$$

$$\nabla \wedge \mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{j} + \left[\mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \right] \quad (2.4)$$

auxquelles il est nécessaire d'ajouter la loi d'Ohm locale (relation constitutive de fermeture) :

$$\mathbf{j} = \sigma (\mathbf{E} + \mathbf{u} \wedge \mathbf{B})$$

où \mathbf{j} désigne la densité de courant, \mathbf{u} la vitesse locale du matériau (de l'ordre de U), ρ la densité volumique de charges électriques libres et σ la conductivité électrique du matériau (réelle). Dans cette étude, seuls sont rencontrés les cas de matériaux immobiles ou bien mobiles en régime harmonique de pulsation ω élevée ($U \ll \omega L$), ce qui permet de simplifier la loi d'Ohm locale en :

$$\mathbf{j} = \sigma \mathbf{E} \quad (2.5)$$

stipulant que tout champ électrique entraîne un mouvement des charges libres (sans retard). Par application de l'opérateur divergence à l'équation de Maxwell-Ampère 2.4, et en utilisant l'équation de Maxwell-Gauss 2.1, on obtient l'équation de conservation de la charge :

$$\left[\frac{\partial \rho}{\partial t} \right] + \nabla \cdot \mathbf{j} = 0 \quad (2.6)$$

La conductivité électrique des matériaux pouvant varier fortement dans l'espace, nous utiliserons une formulation en potentiels $\mathbf{A} - V$ (respectivement potentiel vecteur du champ magnétique et potentiel scalaire électrique). D'autres potentiels peuvent être utilisés, notamment $\mathbf{T} - \Omega$ (respectivement potentiel vecteur du champ électrique et potentiel scalaire magnétique) mais cette dernière est préférable dans les cas de fortes variations de perméabilité magnétique, ce qui est exclu dans notre étude. Le champ électromagnétique s'écrit en fonction des potentiels choisis selon :

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= -\nabla V - \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \\ \mathbf{B} &= \nabla \wedge \mathbf{A} \end{aligned}$$

satisfaisant ainsi immédiatement l'équation de Maxwell-Thomson 2.2 et Maxwell-Faraday 2.3. L'équation de conservation de la charge 2.6, en utilisant la loi d'Ohm 2.5 et la relation entre champ électrique et potentiels, donne quant à elle :

$$\nabla \cdot \left(\sigma \left(\nabla V + \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \right) \right) = 0 \quad (2.7)$$

L'équation de Maxwell-Ampère 2.4 donne enfin, en utilisant la loi d'Ohm et les relations entre champs et potentiels :

$$\nabla(\nabla \cdot \mathbf{A}) - \nabla^2 \mathbf{A} + \mu_0 \sigma \left(\nabla V + \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \right) = 0 \quad (2.8)$$

Le système 2.7-2.8 permet de résoudre le problème électromagnétique.

L'équation de Maxwell-Gauss 2.1 est utilisée pour déterminer, si besoin, la densité volumique de charge locale ρ . On notera qu'en raison d'une conductivité électrique variable dans l'espace, cette densité volumique de charges peut être non nulle et est donnée par :

$$\rho = -\varepsilon_0 \left(\nabla^2 V + \frac{\partial \nabla \cdot \mathbf{A}}{\partial t} \right)$$

où bien, en utilisant 2.6 et 2.1 :

$$\rho = -\varepsilon_0 \frac{\nabla \sigma}{\sigma} \cdot \mathbf{E} \quad (2.9)$$

Les charges électriques se concentrent donc près des forts gradients de conductivité (lorsque ceux-ci sont dans la direction du champ électrique) et notamment à l'interface entre matériaux composant un milieu hétérogène (polarisation de Maxwell-Wagner). De manière générale, les variations spatiales de conductivité électrique (dans notre cas dues à une dépendance de la conductivité à la température et à la présence de particules conductrices électroniques en suspension) entraînent une redistribution des courants avec une concentration de ces derniers près des zones de forte conductivité.

Deux cas sont à considérer pour la résolution du problème électromagnétique : le cas stationnaire et le cas harmonique. Comme nous le verrons par la suite, le cas stationnaire permettra de proposer un modèle de conductivité effective du matériau. Dans ce cas, le système 2.7-2.8 est découplé et la résolution du potentiel électrique suffit. Le problème s'écrit alors simplement :

$$\nabla \cdot (\sigma \nabla V) = 0 \quad (2.10)$$

Dans le cas harmonique, les équations de Maxwell étant linéaires (dans le cas des milieux non ferroélectriques et non ferromagnétiques), toute excitation harmonique de pulsation ω crée un champ électromagnétique de pulsation unique et identique ω . Le système peut donc être résolu plus efficacement en régime harmonique. Dans le cas de variations temporelles harmoniques de pulsation ω , le système 2.7-2.8 devient par application de la transformation de Fourier temporelle, pour les amplitudes complexes (en notant \underline{X} l'amplitude complexe de X) :

$$\begin{aligned} \nabla \cdot (\sigma (\nabla \underline{V} + i\omega \underline{\mathbf{A}})) &= 0 \\ \nabla(\nabla \cdot \underline{\mathbf{A}}) - \nabla^2 \underline{\mathbf{A}} + \mu_0 \sigma (\nabla \underline{V} + i\omega \underline{\mathbf{A}}) &= 0 \end{aligned}$$

La solution physiquement réellement observée dans le système correspondant à une amplitude complexe solution \underline{X} est alors donnée par (\mathbf{x} désigne le vecteur position) :

$$X(\mathbf{x}, t) = \text{Re}(\underline{X}(\mathbf{x}) \exp(i\omega t)) = \text{Re}(\underline{X}(\mathbf{x})) \cos(\omega t) + \text{Im}(\underline{X}(\mathbf{x})) \cos\left(\omega t + \frac{\pi}{2}\right)$$

En particulier, en définissant la période temporelle du champ électromagnétique $T = \frac{2\pi}{\omega}$:

$$X(\mathbf{x}, t) = \begin{cases} \operatorname{Re}(\underline{X}(\mathbf{x})) & \text{si } t = nT, n \in \mathbb{N} \\ \operatorname{Im}(\underline{X}(\mathbf{x})) & \text{si } t = \left(n - \frac{1}{4}\right)T, n \in \mathbb{N}^* \end{cases}$$

Le matériau étant localement non-polarisable et non-magnétique, l'énergie transmise par le champ électromagnétique au matériau est uniquement issue des courants libres par effet Joule (pas de chauffage diélectrique par exemple). La densité volumique (moyennée temporellement dans le cas harmonique) de puissance Joule dissipée dans le milieu sous forme thermique est alors donnée par² :

$$p_J = \begin{cases} \frac{\|\mathbf{j}\|^2}{2\sigma} & \text{dans le cas stationnaire} \\ \frac{\|\mathbf{j}\|_{\sigma}^2}{2\sigma} & \text{dans le cas harmonique} \end{cases}$$

et la puissance totale dissipée dans le volume de matériau considérée est :

$$P_J = \int_{\Omega} p_J dv$$

En réalité, la puissance Joule instantanée dissipée dans le matériau est proportionnelle au carré de la norme du champ électrique. Ainsi dans le cas harmonique il s'agit d'une fonction du temps de pulsation 2ω . L'utilisation de la densité volumique moyenne (et non instantanée) dans l'équation de la thermique dans le cas harmonique constitue toutefois une très bonne approximation pour les « hautes fréquences » (période temporelle des champs courte devant les temps caractéristiques d'advection et de diffusion des autres physiques).

2.1.2 Méthodes d'imposition d'un champ électromagnétique externe

Nous considérerons principalement deux types de champ électromagnétique externe imposé. Le premier est le champ électrique constant, utilisé pour le calcul de conductivité effective du verre nucléaire. Dans la pratique électrotechnique, un tel champ électrique est produit par l'alimentation de deux électrodes par un générateur de tension continue. L'intensité du champ électrique est alors le rapport entre la tension imposée et la distance entre les électrodes. Le deuxième type de champ considéré sera le champ magnétique harmonique, utilisé pour le calcul des cartes de puissance Joule dissipée. L'induction nécessite en effet l'excitation du système par une source d'énergie électromagnétique appelé inducteur. L'inducteur est un dipôle qui, lorsqu'il est parcouru par un courant électrique alternatif débité par le générateur auquel il est connecté, produit un champ magnétique harmonique concentré entre ses spires et susceptible d'induire des courants de Foucault dans la charge à chauffer.

Dans la pratique de simulation numérique des problèmes électromagnétiques relatifs au creuset froid, il est commun de modéliser l'ensemble du dispositif électrotechnique (électrodes ou inducteur) et de résoudre la physique de l'électromagnétisme dans l'ensemble des domaines physiques en présence, à savoir, le milieu ambiant (air, vide...),

2. Dans toute l'étude, $\|\cdot\|$ désigne la norme euclidienne canonique pour les espaces vectoriels réels et la norme hermitienne canonique pour les espaces vectoriels complexes.

les structures métalliques (inducteur, creuset...) ainsi que la charge (verre, métal...) [19]. Le domaine simulé présente une certaine extension spatiale, permettant l'application de conditions aux limites sur les champs ou potentiels électromagnétiques « loin » du dispositif. Le champ électromagnétique externe est alors imposé par l'application d'une tension aux bornes ou d'un courant à travers le dipôle simulé. Cette méthode de simulation globale présente l'avantage de fournir des résultats de dimensionnement électrotechnique comme l'impédance complexe globale du système et de proposer une représentation fine de la répartition spatiale des champs électromagnétiques externes imposés pouvant être fortement non uniformes. En revanche, elle soulève plusieurs difficultés comme la gestion numérique des différents domaines physiques et de leurs frontières (interfaces entre matériaux conducteurs et non conducteurs), nécessitant des maillages de l'espace conséquents.

Largement implantée dans les logiciels de calculs électromagnétiques dédiés, une seconde méthode consiste à simplifier le dispositif électrotechnique en sources de champ modèles [20]. Ainsi, des électrodes sont remplacées par des nappes de charges électriques surfaciques imposées, et les inducteurs sont remplacés par des nappes de courants surfaciques imposés. Dans le deuxième cas, le champ magnétique créé par l'inducteur est calculé dans l'ensemble du domaine grâce à la loi de Biot et Savart reliant champ magnétique et densité surfacique de courants. Cette méthode présente l'avantage de s'abstenir de la modélisation du domaine métallique constitué par le dipôle et donc également d'alléger le maillage. Elle présente par contre le désavantage de ne plus fournir de résultats concernant l'impédance du système global et de ne pas rendre compte parfaitement des éventuelles inhomogénéités de champ imposé liées à la forme particulière du dipôle. Subsiste également la présence de plusieurs domaines physiques et de leurs frontières.

Nous proposons dans cette étude une autre méthode, basée sur l'utilisation des conditions aux limites sur les potentiels scalaire et vectoriel au bord du domaine occupé par la charge (dans notre cas de verre). Cette méthode virtualise à l'extrême la présence du dipôle électrotechnique et des éventuels autres structures métalliques (creuset, internes...) et ne nécessite pas non plus de modélisation du milieu ambiant. La modélisation se limite donc au domaine occupé par la charge que l'on souhaite soumettre à un champ électromagnétique externe, ce qui supprime toute frontière entre matériaux et allège considérablement le maillage. Cette méthode permet d'imposer un champ électromagnétique quelconque dans la charge mais présente le désavantage de ne pas fournir de résultats concernant le comportement du champ électromagnétique à l'extérieur de la charge ni de résultats électrotechniques dimensionnants. En particulier, il devient impossible d'évaluer le rendement électromagnétique de l'ensemble charge/creuset (rapport de la puissance injectée dans la charge et de la puissance totale délivrée par le générateur). Les relations entre champs et potentiels montrent qu'un champ électrique constant est associé à un gradient de potentiel scalaire ∇V tandis qu'un champ magnétique harmonique est associé au rotationnel de l'amplitude complexe du potentiel vecteur $\nabla \wedge \underline{\mathbf{A}}$. Un choix judicieux des conditions aux limites sur les potentiels permet ainsi d'imposer de tels champs et une attention toute particulière doit donc être portée à ces conditions aux bords du domaine modélisé. Nous montrerons également qu'il est possible d'imposer la nullité des courants électriques sortant de la charge. Ces idées sont également développées dans les travaux récents de Beckstein et al [21].

2.1.3 Condition de jauge de Coulomb

Dans les simulations numériques en régime harmonique, il sera fait usage de la condition de jauge de Coulomb $\nabla \cdot \underline{\mathbf{A}} = 0$ afin d'améliorer la stabilité du schéma numérique (dû au fait que les composantes de $\underline{\mathbf{A}}$ ne sont plus directement corrélées dans l'équation de Maxwell-Ampère). Selon la propriété d'invariance de jauge, la même solution physique, en ce qui concerne le champ électromagnétique et la puissance Joule dissipée dans le matériau, est alors obtenue. Nous utiliserons la technique dite de jaugeage explicite [22]. Dans ce cas, le système à résoudre est simplifié en considérant :

$$\begin{aligned}\nabla \cdot (\sigma (\nabla V + i\omega \underline{\mathbf{A}})) &= 0 \\ \nabla^2 \underline{\mathbf{A}} - \mu_0 \sigma (\nabla V + i\omega \underline{\mathbf{A}}) &= 0\end{aligned}$$

qui est équivalent au système initial 2.7-2.8 lorsque tous deux augmentés par la condition de jauge. Lorsque des conditions aux limites sont imposées sur les potentiels (avec une condition de Dirichlet en au moins un point de la frontière), le potentiel vecteur solution est unique. La condition de jauge n'est alors strictement respectée par la solution de ce système simplifié que si des conditions aux bords cohérentes pour le potentiel vecteur sont prescrites. En effet, si les potentiels sont solutions du système avec jaugeage explicite, alors :

$$\nabla^2 (\nabla \cdot \underline{\mathbf{A}}) = 0$$

qui entraîne $\nabla \cdot \underline{\mathbf{A}} = 0$ avec un bon choix des conditions aux bords [22, 23]. Le respect de la condition de jauge est vérifié a posteriori en s'assurant que³ :

$$\frac{\|\nabla \cdot \underline{\mathbf{A}}\|_{L^2}}{\|\nabla \wedge \underline{\mathbf{A}}\|_{L^2}} \ll 1$$

2.1.4 Conditions aux limites

Comme décrit plus tôt, la formulation choisie permet de manière générale une implémentation simple des conditions aux limites de champ électromagnétique externe constant ou harmonique.

Champ électrique constant

Nous considérons pour l'exemple un domaine cubique d'arête L (cf. figure 2.1(a)). Dans le cas stationnaire, afin de modéliser un champ électrique constant, nous imposerons une différence de potentiel scalaire électrique $\Delta V = V_{max} - V_{min}$ en imposant une condition de Dirichlet sur deux faces parallèles du domaine (situées en $z = 0$ et $z = L$) et une condition de Neumann homogène (pas de courant normal) aux autres frontières. Cette situation correspond alors à l'imposition d'un champ électrique uniforme $\underline{\mathbf{E}} = -\frac{\Delta V}{L} \mathbf{e}_z$.

3. Dans toute l'étude, $\|\cdot\|_{L^2}$ désigne la norme L^2 sur les espaces de fonctions vectorielles ou scalaires, réelles ou complexes, définies sur l'espace physique modélisé Ω .

Champ magnétique harmonique

Nous considérons pour l'exemple le cas d'un domaine cubique (respectivement cylindrique) d'arête (respectivement de rayon) L . Dans le cas harmonique, afin de modéliser un champ magnétique, nous imposerons :

- Dans le cas d'un domaine cubique (cf. figure 2.1(b)), une différence de potentiel vecteur magnétique $\Delta A = A_{max} - A_{min}$ en imposant une condition de Dirichlet $\underline{\mathbf{A}} = (0, A_{min/max}, 0)$ sur deux faces parallèles du domaine (situées en $x = 0$ et $x = L$) et une condition de Neumann homogène aux autres frontières ;
- Dans le cas d'un domaine cylindrique⁴ (cf. figure 2.1(c)), un potentiel vecteur orthoradial $\underline{\mathbf{A}} = A_\theta \mathbf{e}_\theta$ est imposé sur la face latérale du domaine et une condition de Neumann homogène aux autres frontières. Pour la cohérence des notations, nous poserons dans ce cas $A_{max} = 2A_\theta$ et $A_{min} = 0$.

Une condition de Neumann homogène est appliquée à toutes les frontières pour le potentiel scalaire sauf pour une face (appelée « masse ») où la condition de Dirichlet $\underline{V} = 0$ est imposée pour empêcher l'existence de plusieurs solutions (le potentiel scalaire étant défini à une constante spatiale près). Afin d'imposer un courant normal nul, il est nécessaire de remplacer la condition de Neumann homogène pour le potentiel scalaire par une condition de Neumann inhomogène [21, 24] :

$$\underline{\mathbf{j}} \cdot \underline{\mathbf{n}} = 0 \Leftrightarrow \frac{\partial V}{\partial n} = -i\omega \underline{\mathbf{A}} \cdot \underline{\mathbf{n}}$$

Ce sera notamment le cas aux interfaces entre verre et parois refroidies, où la présence d'une couche composée d'un mélange de fritte de verre infondue et d'air constitue un bon isolant électrique. Cette situation correspond à l'imposition d'un champ magnétique variable uniforme (écrit dans l'espace temporel) $\underline{\mathbf{B}} = \frac{\Delta A}{L} \cos(\omega t) \mathbf{e}_z$.

2.1.5 Adimensionnement dans le cas harmonique

Le système est adimensionné en choisissant la taille caractéristique du domaine L comme échelle de longueur et ω^{-1} comme échelle de temps. Les composantes du potentiel vecteur sont adimensionnées par la transformation $A \mapsto \frac{A - A_{y,min}}{\Delta A_y}$ et le potentiel scalaire par la transformation $V \mapsto \frac{V}{\Delta A_y \omega L}$. En définissant la fonction adimensionnée de conductivité électrique $f_\sigma = \frac{\sigma}{\sigma_0}$ (avec σ_0 une conductivité électrique de référence), on obtient le système final :

$$\nabla \cdot (f_\sigma (\nabla \underline{V} + i \underline{\mathbf{A}})) = 0 \quad (2.11)$$

$$\nabla^2 \underline{\mathbf{A}} - R_\omega f_\sigma (\nabla \underline{V} + i \underline{\mathbf{A}}) = 0 \quad (2.12)$$

où R_ω est le paramètre d'écran :

4. On rappelle qu'un champ magnétique uniforme vertical peut être produit au sein d'une nappe de courants cylindrique de hauteur infinie dont un potentiel vecteur orthoradial s'écrirait (r désignant la distance à l'axe de la nappe) :

$$\underline{\mathbf{A}}(r) \propto r \mathbf{e}_\theta$$

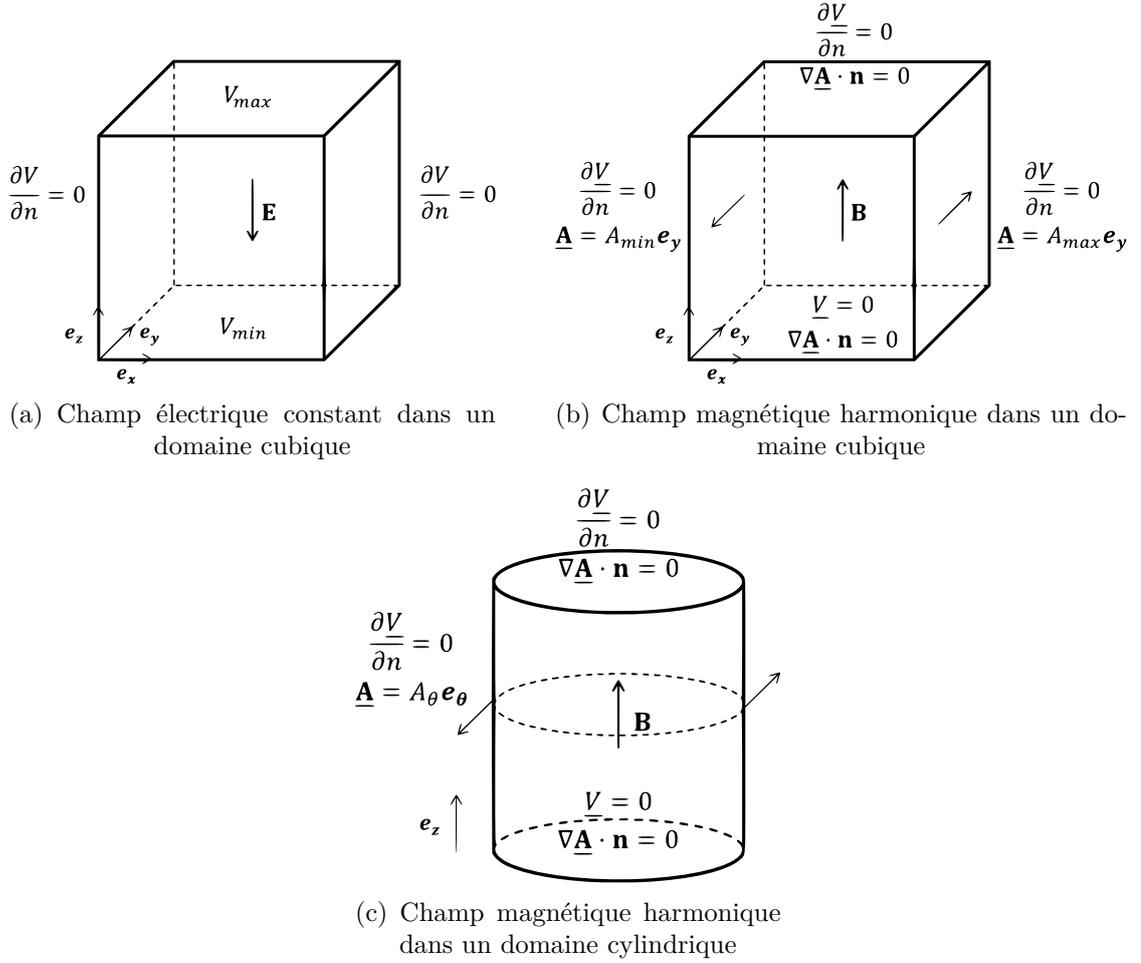


Figure 2.1 – Imposition de champ électromagnétique grâce aux conditions aux limites sur les potentiels

$$R_\omega = \mu_0 \sigma_0 \omega L^2 = 2 \left(\frac{L}{\delta_0} \right)^2$$

avec l'épaisseur de peau électromagnétique $\delta_0 = \sqrt{\frac{2}{\mu_0 \sigma_0 \omega}}$. L'adimensionnement des conditions aux limites présentées est direct et ne fait intervenir aucun paramètre adimensionné supplémentaire. Ainsi, le paramètre d'écran est, dans notre approche et sous les hypothèses retenues, le seul paramètre déterminant. Le cas de faible paramètre d'écran est appelé régime de grande peau et est associé à une pénétration importante du champ électromagnétique externe imposé dans la charge. Le cas de fort paramètre d'écran décrit quant à lui le régime de fine peau, associé à la limitation du champ électromagnétique à la région périphérique de la charge, d'une épaisseur de l'ordre de δ_0 .

2.2 Thermohydraulique

Lorsque le verre présent dans le creuset chauffe sous l'action du champ électromagnétique, des transferts thermiques au sein de la charge et à ses frontières assurent la redistribution de l'énergie thermique. La température atteinte au sein du verre est alors la conséquence d'un équilibre entre puissance injectée par effet Joule et puissance échangée

avec l'extérieur (creuset refroidi, internes et atmosphère au contact de la surface libre), gouverné par l'équation de transport de l'énergie thermique. Lorsque le verre est suffisamment chaud et fluide pour entrer, de manière forcée ou naturelle, en convection, son mouvement intervient de manière prépondérante dans le transport de l'énergie et modifie drastiquement le champ de température et la puissance échangée avec l'extérieur. Ce mouvement est régi par les équations de Navier-Stokes, décrivant la conservation de la masse et de la quantité de mouvement.

2.2.1 Équations de Navier-Stokes et de l'énergie

Dans cette étude, on considère de manière générale un système fluide fermé Ω de taille caractéristique L , soumis à la pesanteur, auquel on impose localement une température chaude T_h et au contact d'une surface indéformable S_c à la température froide imposée T_c . Nous étudions le cas d'un fluide en convection forcée, de vitesse imposée caractéristique U et les hypothèses suivantes seront faites :

- fluide Newtonien en phase condensée ;
- écoulement laminaire et incompressible ;
- rayonnement interne peu pénétrant ;
- chaleur générée par dissipation visqueuse négligeable.

Sous ces hypothèses, le tenseur des contraintes prend, en particulier, la forme⁵ :

$$\boldsymbol{\tau} = -p'\mathbb{1} + 2\eta\mathbf{d}$$

où p' désigne la pression statique, η la viscosité dynamique et \mathbf{d} le tenseur des taux de déformation. Nous utiliserons le modèle de bullage développé dans le cadre du creuset froid par E. Sauvage [14], qui se réduit à l'introduction d'une source volumique de quantité de mouvement \mathbf{S} , modélisant l'entraînement du fluide par les bulles ascendantes le traversant et supposée indépendante du temps. Ce terme étant seulement introduit dans la simulation thermohydraulique du creuset froid, il ne sera pas écrit dans les développements analytiques afin d'alléger les écritures. Nous nous intéressons au cas où un courant est induit dans le volume grâce à un champ magnétique harmonique imposé. Cette induction entraîne la dissipation d'énergie sous forme thermique dans le matériau, qui agit comme une source volumique p_J dans le transport de l'énergie thermique. Enfin, aucune enthalpie de changement d'état n'est à prendre compte dans l'équation de l'énergie lors d'une transition vitreuse.

Dans toute cette étude, les équations liées à la dynamique sont écrites et résolues dans un référentiel considéré galiléen et aucun terme inertiel n'y apparaît donc. Conformément aux hypothèses précédemment établies, les équations de Navier-Stokes et l'équation de transport de la température s'écrivent sous la forme⁶ [25] :

5. La seconde viscosité ne joue aucun rôle dans les écoulements incompressibles.

6. La forme du terme de viscosité est due à la viscosité variable :

$$\begin{aligned} \nabla \cdot (2\eta\mathbf{d}) &= \nabla \cdot (\eta(\nabla\mathbf{u} + {}^t\nabla\mathbf{u})) \\ &= \nabla \cdot (\eta\nabla\mathbf{u}) + \nabla \cdot (\eta {}^t\nabla\mathbf{u}) \\ &= \nabla \cdot (\eta\nabla\mathbf{u}) + {}^t\nabla\mathbf{u} \cdot \nabla\eta \quad \text{car } \nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \end{aligned}$$

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (2.13)$$

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \nabla \mathbf{u} \cdot \mathbf{u} \right) = -\nabla p' + \nabla \cdot (\eta \nabla \mathbf{u}) + {}^t \nabla \mathbf{u} \cdot \nabla \eta + \rho \mathbf{g} + [\mathbf{S}] \quad (2.14)$$

$$\rho c_p \left(\frac{\partial T}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla T \right) = \nabla \cdot (\lambda_t \nabla T) - \nabla \cdot \mathbf{q}_r + p_J \quad (2.15)$$

2.2.2 Approximation de Rosseland

L'équation de transport de l'énergie thermique fait apparaître explicitement les trois modes fondamentaux de transfert d'énergie, par conduction ($\nabla \cdot (\lambda_t \nabla T)$), convection ($-\rho c_p \mathbf{u} \cdot \nabla T$) et rayonnement ($-\nabla \cdot \mathbf{q}_r$). De manière générale, le transport d'énergie thermique par rayonnement au sein d'un matériau est le fruit de l'interaction entre le rayonnement électromagnétique émis par le matériau et ce même matériau et est régi par l'équation de transfert radiatif. La résolution de cette équation permet en particulier d'obtenir une expression pour le flux radiatif \mathbf{q}_r . Dans le cas de rayonnement interne peu pénétrant (milieu optiquement épais de coefficient d'atténuation β_r), l'approximation de Rosseland permet d'avoir une évaluation simple du flux radiatif interne, issue de la résolution de l'équation de transfert radiatif dans la limite $\beta_r L \gg 1$:

$$\mathbf{q}_r \approx -\lambda_r \nabla T$$

où la conductivité de Rosseland (dans le cas de diffusion du rayonnement isotrope) est [26] :

$$\lambda_r = \frac{16n^2\sigma T^3}{3\beta_r}$$

n et σ désignant respectivement l'indice de réfraction du milieu et la constante de Stefan-Boltzmann. La conductivité thermique effective (mesurée en laboratoire) est alors définie par :

$$\lambda = \lambda_t + \lambda_r$$

et le flux thermique total par $\mathbf{q} = -\lambda \nabla T$, ce qui donne, en remplacement de 2.15 :

$$\rho c_p \left(\frac{\partial T}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla T \right) = \nabla \cdot (\lambda \nabla T) + p_J \quad (2.16)$$

Il faut garder à l'esprit que cette approximation n'est pas valable au voisinage des parois [27] car le rayonnement n'est plus isotrope. Une correction a été proposée par Goldstein et Howell dans le cas de corps noirs [28, 29] puis Larsen dans l'hypothèse de corps gris diffusant, qui ont introduit un saut de température (extension du saut de Deissler) entre la température du fluide en proche paroi T et la température du fluide à considérer pour les conditions aux limites avec l'extérieur du domaine fluide T^+ . Leur analyse a été réalisée dans le cas de transferts thermiques par conduction-rayonnement, en négligeant la diffusion du rayonnement (pure absorption), menant ainsi à :

$$T^4 = T^{+4} - \frac{\Psi(N^+)\lambda_r}{\sigma} \frac{\partial T}{\partial n} \text{ sur } \partial\Omega \quad (2.17)$$

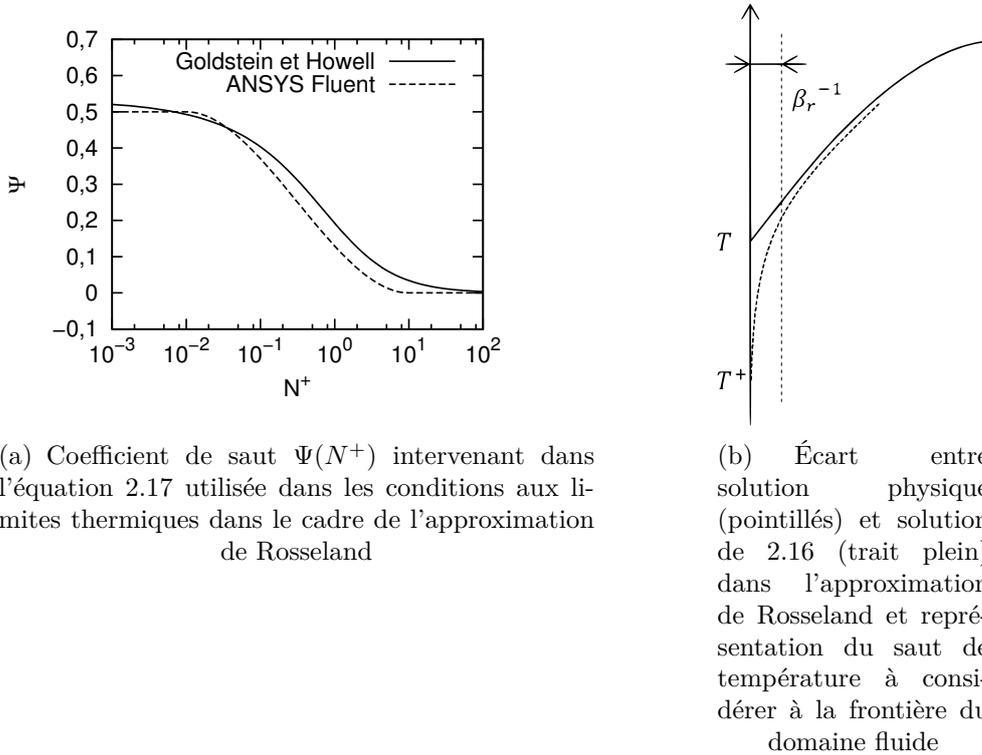
où le coefficient de saut $\Psi(N^+)$ est une fonction décroissante du paramètre de couplage conduction-rayonnement (nombre de Stark, noté N^+) à la limite du domaine fluide :

$$N^+ = \frac{\lambda_t \beta_r}{4n^2 \sigma T^+{}^3}$$

Nous utiliserons l'expression analytique du saut déterminée par Goldstein et Howell [28] valable dans le cas de corps noirs et négligerons ainsi la correction numérique de Larsen due à l'hypothèse de corps gris diffusant :

$$\Psi(N^+) = \frac{3}{4\pi} \int_0^1 \arctan \left(\frac{\pi x^3}{\frac{N^+}{2} - 2x^2 - x^3 \ln \left(\frac{1-x}{1+x} \right)} \right) [\pi] dx$$

où le modulo de l'intégrande est choisi comme la plus petite valeur positive. La figure 2.2(a) représente le coefficient de saut ainsi que son approximation numérique utilisée dans le logiciel ANSYS FLUENT®. La condition de saut permet de prolonger la résolution de l'équation 2.16 jusqu'à la frontière du domaine fluide et ainsi une bonne évaluation des flux thermiques à travers les limites du domaine. On notera que la solution alors obtenue s'éloigne de la solution physique près de la frontière (dans une région d'épaisseur $1/\beta_r$) comme schématisé sur la figure 2.2(b). Dans les faits, il ne peut en effet pas exister de saut de température en présence de phénomènes de conduction, et un fort gradient de température apparaît près des parois du domaine.



(a) Coefficient de saut $\Psi(N^+)$ intervenant dans l'équation 2.17 utilisée dans les conditions aux limites thermiques dans le cadre de l'approximation de Rosseland

(b) Écart entre solution physique (pointillés) et solution de 2.16 (trait plein) dans l'approximation de Rosseland et représentation du saut de température à considérer à la frontière du domaine fluide

Figure 2.2 – Gestion de l'approximation de Rosseland en bord de domaine

L'évaluation du saut nécessite de connaître en particulier la conductivité de Rosseland λ_r , ce qui revient à connaître l'indice de réfraction du fluide ainsi que son coefficient d'atténuation du rayonnement β_r dans la gamme des rayonnements à considérer. Dans le cas du creuset froid, il s'agit de la gamme des infrarouges de longueur d'onde de l'ordre

du micromètre. En effet, selon la loi du déplacement de Wien, la longueur d'onde associée au pic d'émission de flux lumineux d'un corps noir est :

$$\lambda_{max} = \frac{\sigma_w}{T}$$

où $\sigma_w = 2,898.10^{-3} \text{ K}\cdot\text{m}$ est la constante de Wien et T la température du corps en Kelvins. Pour la gamme de températures des procédés de vitrification, où $T \approx 1500 \text{ K}$, $\lambda_{max} \approx 2 \mu\text{m}$.

L'indice de réfraction peut être évalué à partir de la composition chimique du verre [26]. Pour un verre de type UOx, nous obtenons $n = 1,55$. Des mesures d'atténuation du rayonnement infrarouge (proche) ont été réalisées sur un simulant⁷ de verre de type UOx⁸ afin de déterminer une valeur du coefficient d'atténuation. Comme observé sur la figure 2.3, considérer une valeur moyenne $\beta_r \approx 2,4.10^3 \text{ m}^{-1}$ uniforme sur le spectre constitue une approximation acceptable dans l'infrarouge. Cette valeur conforte l'utilisation de l'approximation de Rosseland dans notre cas de fonte verrière en creuset froid puisque $\beta_r L \sim 10^3 \gg 1$.

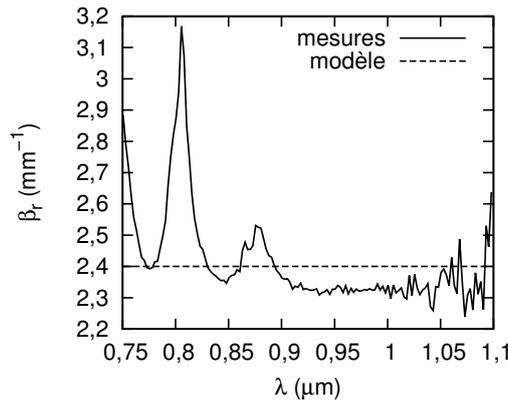


Figure 2.3 – Coefficient d'atténuation d'un verre de type UOx en fonction de la longueur d'onde du rayonnement dans le proche infrarouge - modèle de coefficient constant utilisé dans l'approximation de Rosseland

2.2.3 Approximation de Boussinesq

En présence d'inhomogénéités du champ de température, on constate dans la plupart des milieux matériels une plus ou moins grande variation locale de masse volumique. La présence d'une espèce en concentration inhomogène dans un fluide (dans notre cas sous formes de particules) occasionne également des variations locales de masse volumique du mélange (si cette espèce possède une densité différente de celle du fluide). Ces variations locales de densité entraînent des mouvements de convection pouvant être importants. Bien que l'on ait considéré un fluide incompressible pour l'établissement des équations de Navier-Stokes, il est possible de prendre en compte ces effets de dilatation thermique et de

7. L'ensemble des mesures réalisées ou reportées dans nos travaux sont relatives à des simulants de verres nucléaires, c'est-à-dire des verres de composition et comportement chimiques très proches du verre radioactif mais faisant intervenir des isotopes stables des différents éléments.

8. Travaux de E. RÉGNIER (compte-rendu d'essai CEA/DEN/MAR/DTCD/SECM/LDMC/59).

rétroaction des particules sur le fluide grâce à une approximation de Boussinesq [30,31], en retenant un développement de Taylor de la masse volumique autour de $T = T_c$ et $C = 0$ (où C dénote la fraction volumique locale en particules) à l'ordre 1 dans le terme de pesanteur de l'équation de la quantité de mouvement et à l'ordre 0 partout ailleurs⁹ [25] :

$$\rho = \rho_f(T)(1 - C) + \rho_p C = \rho_f(T)(1 + \beta_p C) \approx \rho_0(1 - \beta(T - T_c) + \beta_p C) \quad (2.18)$$

avec :

$$\begin{aligned} \rho_0 &= \rho(T = T_c, C = 0) \\ \beta &= -\frac{1}{\rho_0} \frac{\partial \rho}{\partial T}(T = T_c, C = 0) \\ \beta_p &= \frac{\rho_p}{\rho_f(T)} - 1 \approx \frac{\rho_p}{\rho_0} - 1 = \frac{1}{\rho_0} \frac{\partial \rho}{\partial C}(T = T_c, C = 0) \end{aligned}$$

où ρ_f , ρ_p , β et β_p désignent respectivement la masse volumique du fluide suspendant, la masse volumique des particules, le coefficient de dilatation thermique et le coefficient de masse volumique particulaire. En posant $\mathbf{g} = g\hat{\mathbf{g}}$, $p = \frac{p'}{\rho_0} - \mathbf{g} \cdot \mathbf{x}$ (\mathbf{x} désigne le vecteur position et $\hat{\mathbf{g}}$ le vecteur unitaire d'orientation de la pesanteur) et $\nu = \frac{\eta}{\rho_0}$, on a directement, en remplacement de 2.14 :

$$\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \nabla \mathbf{u} \cdot \mathbf{u} = -\nabla p + \nabla \cdot (\nu \nabla \mathbf{u}) + {}^t \nabla \mathbf{u} \cdot \nabla \nu - \beta(T - T_c)g\hat{\mathbf{g}} + \beta_p C g\hat{\mathbf{g}} \quad (2.19)$$

Cette approximation est valable dans le cas de faible dilatation thermique $\beta \Delta T \ll 1$ et de suspensions suffisamment diluées $\beta_p \bar{C} \ll 1$ (où \bar{C} désigne la fraction volumique moyenne en particules). Elle devient inutilisable dans les zones d'accumulation de particules (par sédimentation par exemple), où la forte charge de particules peut entraîner de fortes variations de masse volumique.

Des mesures de masse volumique d'un verre de type UOx, de fraction volumique en particules donnée C , réalisées à des températures différentes, permettent de proposer une valeur de référence de la masse volumique ρ_0 (à la température de référence $T_c = 340$ K et sans platinoïdes) et une valeur du coefficient de dilatation thermique β grâce à la relation :

$$\rho_f = \frac{\rho - \rho_p C}{1 - C} \approx \rho_0(1 - \beta(T - T_c))$$

Les mesures de la masse volumique effective ρ ont été réalisées sur un verre de type UOx chargé en particules de platinoïdes à la concentration $C = 0,7\%$ et de masse volumique moyenne $\rho_p \approx 8,3 \cdot 10^3$ kg/m³. Les résultats concernant la masse volumique du verre sans particules extrapolée grâce à la relation précédente sont présentés sur la figure 2.4. Les valeurs $\rho_0 = 2,7 \cdot 10^3$ kg/m³ et $\beta = 8,2 \cdot 10^{-5}$ K⁻¹ sont obtenues. Ces mesures permettent également d'obtenir $\beta_p = 2,1$.

9. La densité des particules est supposée indépendante de la température.

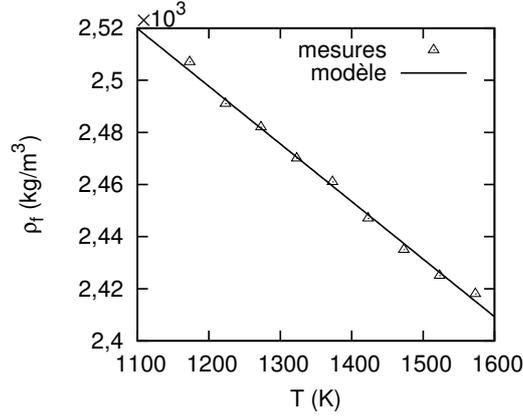


Figure 2.4 – Masse volumique d'un verre de type UOx sans particules de platinoïdes - modèle affine utilisé dans l'approximation de Boussinesq

2.2.4 Écriture des conditions aux bords

Conditions aux limites mécaniques

Les conditions aux bords mécaniques sont des conditions portant sur la vitesse du fluide et sa pression statique (non décrite ici) en frontière de domaine. Les frontières (y compris les surfaces physiquement libres) sont toutes considérées indéformables bien que l'agitation mécanique entraîne en générale de légères déformations de la surface libre. Pour la vitesse et sauf mention contraire, une condition de non glissement est appliquée sur toutes les parois soit une condition de Dirichlet :

$$\mathbf{u} = \mathbf{u}_w$$

où \mathbf{u}_w est la vitesse de la paroi. Dans certains cas, restreints à des surfaces considérées planes, on utilisera plutôt une condition d'imperméabilité à laquelle il faut ajouter une condition d'équilibre des contraintes tangentes à la frontière¹⁰ (la composante tangentielle d'un vecteur \mathbf{x} est notée \mathbf{x}_t ¹¹) :

$$\mathbf{u} \cdot \mathbf{n} = \mathbf{u}_w \cdot \mathbf{n}, \quad 2\eta(\mathbf{d} \cdot \mathbf{n})_t = \eta(\nabla \mathbf{u} \cdot \mathbf{n})_t = \tau$$

où τ désigne la contrainte tangentielle appliquée par l'extérieur sur le fluide et \mathbf{n} la normale sortante du domaine. Nous considérons alors deux contraintes possibles :

- Dans le cas de surfaces libres, où le fluide est en général en contact avec un fluide bien moins visqueux (l'air par exemple), la contrainte tangentielle se réduit à la contrainte de Marangoni liée à une tension superficielle de l'interface γ thermodépendante :

10. On utilise :

$$({}^t \nabla \mathbf{u} \cdot \mathbf{n})_t = \nabla(\mathbf{u} \cdot \mathbf{n})_t = 0$$

où la première égalité découle de l'hypothèse de frontière plane et la seconde est due à l'imperméabilité sur une frontière plane indéformable.

11. En notant \mathbf{n} la normale sortante du domaine, la composante tangentielle s'obtient par la projection orthogonale :

$$\mathbf{x}_t = \mathbf{x} - (\mathbf{x} \cdot \mathbf{n})\mathbf{n}$$

$$\tau = (\nabla\gamma)_t = \frac{d\gamma}{dT} (\nabla T)_t$$

Pour les verres borosilicates utilisés et dans la gamme de températures considérée, la tension superficielle de l'interface entre le verre et l'air diminue avec la température avec $-\frac{d\gamma}{dT} \sim 10^{-5} - 10^{-4} \text{ N/m/K}$ [26];

- Dans le cas d'une condition de glissement sur une frontière, on considère que la frontière n'applique aucune force sur le fluide soit :

$$\tau = 0$$

Conditions aux limites thermiques

Nous dérivons dans cette section les conditions aux limites à appliquer pour la résolution du champ de température. Ces conditions s'obtiennent en équilibrant le flux thermique total provenant du fluide avec les échanges conducto-convectif et par rayonnement entre le fluide et le domaine extérieur. La frontière du fluide et le domaine extérieur sont considérés comme des corps gris diffusant d'émissivités respectives (égales à l'absorptivité, selon la loi du rayonnement de Kirchhoff) ε_1 et ε_2 . L'expression générale de cet équilibre à la frontière est donnée par :

$$\mathbf{q} \cdot \mathbf{n} = -\lambda \frac{\partial T}{\partial n} = h_{ext}(T^+ - T_{ext}) + \varepsilon_{ext}\sigma(T^{+4} - T_{ext}^4) \quad (2.20)$$

où \mathbf{n} est la normale sortante du domaine fluide, h_{ext} le coefficient d'échange conducto-convectif et T_{ext} la température du domaine extérieur. Dans le cas du creuset froid, cette température décrira soit la température ambiante de l'air loin de la surface libre, soit la température de la paroi refroidie en contact avec le verre. Dans ce dernier cas, cette température sera prise égale à la celle de l'eau de refroidissement étant donné la très faible résistance thermique induite par la couche limite d'eau turbulente et l'épaisseur d'acier séparant la charge de cette eau.

En notant respectivement S_1 et S_2 les surfaces de la frontière du fluide (supposée localement convexe) et du domaine extérieur englobant, d'après [32] :

$$\varepsilon_{ext} = \frac{1}{1/\varepsilon_1 + \frac{S_1}{S_2}(1/\varepsilon_2 - 1)} \quad (2.21)$$

Dans le cas d'un domaine extérieur étendu loin de la frontière libre du fluide ($S_2 \gg S_1$), on a $\varepsilon_{ext} \approx \varepsilon_1$ et le domaine extérieur agit alors comme un corps noir. C'est typiquement le cas de la surface libre d'une fonte verrière en creuset froid. Dans le cas contraire de surfaces en regard proches (ou en contact, $S_2 = S_1$), on obtient :

$$\varepsilon_{ext} = \frac{1}{1/\varepsilon_1 + 1/\varepsilon_2 - 1} \leq \min(\varepsilon_1, \varepsilon_2) \quad (2.22)$$

Le coefficient d'échange conducto-convectif total $H(T)$ est alors défini par :

$$H(T) = \frac{-\lambda \frac{\partial T}{\partial n}}{T^+ - T_{ext}} \quad (2.23)$$

Grâce à l'équation de saut supplémentaire 2.17, la condition aux limites est totalement résolue en T et T^+ . La prise en compte des échanges radiatifs sur toutes les surfaces de

la charge et pas seulement à la surface libre est capitale dans le cas de la fusion de verre en creuset froid [33, 34].

Dans le cas de fluides opaques et de parois en contact relativement froides, impliquant une forte valeur du paramètre de couplage conduction-rayonnement, le saut peut être négligé en considérant $T^+ = T$ obtenue grâce à 2.17 dans la limite :

$$\frac{\Psi(N^+)\lambda_r}{4\sigma T^4} \left| \frac{\partial T}{\partial n} \right| = \frac{4\Psi(N^+)n^2}{3\beta_r T^+} \left| \frac{\partial T}{\partial n} \right| \ll 1$$

La condition aux limites généralement utilisée dans les études thermohydrauliques est alors obtenue :

$$-\lambda \frac{\partial T}{\partial n} = h_{ext}(T - T_{ext}) + \varepsilon_{ext}\sigma(T^4 - T_{ext}^4) \quad (2.24)$$

Il est intéressant de quantifier l'importance relative du flux échangé par rayonnement et par conduction-convection [35]. Il apparaît directement que le ratio entre terme conducto-convectif et radiatif dans la condition aux bords 2.24 est donné par le nombre adimensionné :

$$N' = \frac{h_{ext}}{\varepsilon_{ext}\sigma(T + T_{ext})(T^2 + T_{ext}^2)} = \begin{cases} \frac{h_{ext}}{4\varepsilon_{ext}\sigma T^3} & \text{si } T \approx T_{ext} \\ \frac{h_{ext}}{\varepsilon_{ext}\sigma T^3} & \text{si } T \gg T_{ext} \\ \frac{h_{ext}}{\varepsilon_{ext}\sigma T_{ext}^3} & \text{si } T \ll T_{ext} \end{cases}$$

Dans l'approximation de saut négligeable $T^+ \approx T$, on a $H(T) = h_{ext}(1 + 1/N')$. Ainsi, lorsque le fluide est au contact imparfait d'une paroi chaude, les transferts radiatifs sont prédominants. Ils sont négligeables lorsque le contact thermique est suffisamment bon et au contact de parois relativement froides.

2.2.5 Adimensionnement

Équations d'évolution

Nous choisissons de poser $\nu = \nu_0 f_\nu$, $c_p = c_{p0} f_{c_p}$ et $\lambda = \lambda_0 f_\lambda$, ce qui entraîne, en remplacement de 2.19 et 2.16 :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \nabla \mathbf{u} \cdot \mathbf{u} &= -\nabla p + \nu_0 (\nabla \cdot (f_\nu \nabla \mathbf{u})) + {}^t \nabla \mathbf{u} \cdot \nabla f_\nu - \beta(T - T_c) g \hat{\mathbf{g}} + \beta_p C g \hat{\mathbf{g}} \\ f_{c_p} \left(\frac{\partial T}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla T \right) &= a_0 \nabla \cdot (f_\lambda \nabla T) + \frac{1}{\rho_0 c_{p0}} p_J \end{aligned} \quad (2.25)$$

où $a_0 = \frac{\lambda_0}{\rho_0 c_{p0}}$. Les fonctions adimensionnées f permettent de décrire la dépendance des propriétés physiques à la température. Nous réalisons l'adimensionnement du système en utilisant pour échelle de longueur L . Pour la thermique, on utilise la température adimensionnée :

$$\frac{T - T_c}{T_h - T_c} = \frac{T - T_c}{\Delta T}$$

La densité de puissance Joule est adimensionnée selon les choix de la modélisation électromagnétique en régime harmonique. Deux échelles de temps sont possibles : l'échelle

de temps caractéristique d'advection par le fluide L/U et le temps caractéristique de diffusion visqueuse L^2/ν_0 . Ainsi, nous avons respectivement le système adimensionné final :

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (2.26)$$

$$\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \nabla \mathbf{u} \cdot \mathbf{u} - \frac{1}{Re} \left(\nabla \cdot (f_\nu \nabla \mathbf{u}) + {}^t \nabla \mathbf{u} \cdot \nabla f_\nu \right) + \frac{Gr}{Re^2} T \hat{\mathbf{g}} - \frac{Gr_p}{Re^2} C \hat{\mathbf{g}} = -\nabla p \quad (2.27)$$

$$f_{c_p} \left(\frac{\partial T}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla T \right) - \frac{1}{Re Pr} \nabla \cdot (f_\lambda \nabla T) - \frac{In}{Re Pr} p_J = 0 \quad (2.28)$$

ou :

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (2.29)$$

$$\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \nabla \mathbf{u} \cdot \mathbf{u} - \left(\nabla \cdot (f_\nu \nabla \mathbf{u}) + {}^t \nabla \mathbf{u} \cdot \nabla f_\nu \right) + Gr T \hat{\mathbf{g}} - Gr_p C \hat{\mathbf{g}} = -\nabla p \quad (2.30)$$

$$f_{c_p} \left(\frac{\partial T}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla T \right) - \frac{1}{Pr} \nabla \cdot (f_\lambda \nabla T) - \frac{In}{Pr} p_J = 0 \quad (2.31)$$

où on définit respectivement le nombre de Grashof, le Grashof particulaire (ou massique), le nombre de Reynolds et de Prandtl par :

$$Gr = \frac{\beta \Delta T g L^3}{\nu_0^2}, \quad Gr_p = \frac{\beta_p g L^3}{\nu_0^2}, \quad Re = \frac{LU}{\nu_0}, \quad Pr = \frac{\nu_0}{a_0}$$

et In est le paramètre de chauffage par effet Joule, ratio entre les valeurs caractéristiques de puissance Joule injectée et de flux thermique à travers la paroi froide :

$$In = \frac{\sigma_0 \omega^2 \Delta A^2 L^2}{\lambda_0 \Delta T}$$

Négliger la convection thermique naturelle reviendrait à supposer un faible nombre de Richardson $Ri = \frac{Gr}{Re^2} \ll 1$ et négliger la convection solutale (décrite plus tard) reviendrait à supposer un faible nombre de Richardson massique $Ri_p = \frac{Gr_p}{Re^2} \ll 1$. Il est nécessaire de vérifier que le nombre de Brinkman est suffisamment faible pour négliger les phénomènes thermiques de dissipation visqueuse dans l'équation de l'énergie :

$$Br = \frac{\rho_0 \nu_0 U^2}{\lambda_0 \Delta T} \ll 1$$

Conditions aux limites

L'adimensionnement de la plupart des conditions aux limites présentées est direct et ne fait intervenir aucun paramètre adimensionné supplémentaire, hormis deux d'entre elles. La condition aux bords mécanique relative à l'équilibre des contraintes tangentielles à la surface libre adimensionnée s'écrit, en utilisant respectivement l'échelle de temps caractéristique d'advection par le fluide et l'échelle de temps de diffusion visqueuse :

$$f_\nu (\nabla \mathbf{u} \cdot \mathbf{n})_t = \text{sgn} \left(\frac{d\gamma}{dT} \right) \frac{Mg}{Pr Re} (\nabla T)_t$$

ou :

$$f_\nu (\nabla \mathbf{u} \cdot \mathbf{n})_t = \text{sgn} \left(\frac{d\gamma}{dT} \right) \frac{Mg}{Pr} (\nabla T)_t$$

où on définit le nombre de Marangoni par :

$$Mg = \left| \frac{d\gamma}{dT} \right| \frac{L\Delta T}{\rho_0 \nu_0 a_0}$$

L'adimensionnement de la condition aux limites thermique donne quant à elle (on considère par souci de simplicité le cas $T^+ \approx T$ et la dépendance des nombres adimensionnés à la température n'est pas explicitée) :

$$-f_\lambda \frac{\partial T}{\partial n} = Bi \left(1 + \frac{1}{N'} \right) (T - T_{ext})$$

où on définit le nombre de Biot :

$$Bi = \frac{h_{ext} L}{\lambda_0}$$

2.2.6 Dépendance à la température des propriétés du verre nucléaire

De nombreux phénomènes thermohydrauliques trouvent leur origine dans la dépendance des propriétés physiques du fluide à la température. La dépendance de la masse volumique à la température, à l'origine des phénomènes de convection thermique naturelle, a déjà été prise en compte grâce à la mise en place d'une approximation de Boussinesq. Nous présentons ici de manière détaillée les dépendances des propriétés thermiques et de la viscosité du verre.

Propriétés thermiques

Des mesures de conductivité thermique et de capacité thermique ont été réalisées sur un verre de type UOx pour déterminer leur dépendance à la température, prise en compte dans la modélisation. La conductivité thermique vraie λ_t et la capacité thermique c_p n'ayant pas de formule analytique accessible sur la gamme de températures considérée, on choisira d'évaluer ces grandeurs pour toute température en utilisant une interpolation linéaire entre deux points de mesure. Les résultats sont regroupés dans la figure 2.5.

Viscosité

La viscosité du verre est fortement dépendante de la température. Ces variations sont bien capturées par une loi Vogel-Fulcher-Tammann (VFT) :

$$\nu = A \exp \left(\frac{B}{R^n (T - T_v)} \right) \quad (2.32)$$

Cette loi montre de très bons résultats pour des températures proches de la température de transition vitreuse mais n'est plus valable à des températures relativement très inférieures ou très supérieures à T_g [36]. Dans la gamme des températures balayée par les procédés de vitrification, les déviations à haute température ne sont pas atteintes et les déviations à basse température ne sont pas déterminantes dans l'évolution hydrodynamique

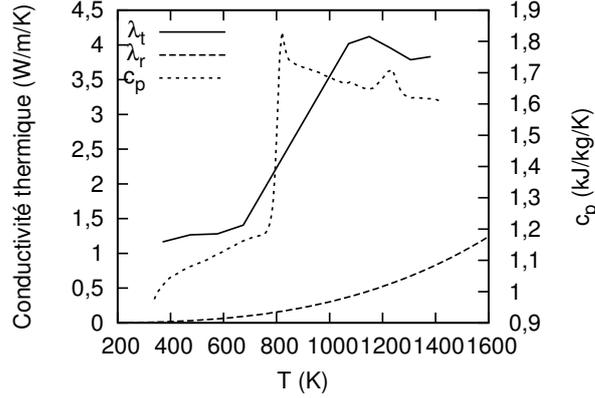


Figure 2.5 – Conductivité thermique et capacité thermique d’un verre de type UOx en fonction de la température

du fluide qui se trouve être en phase « solide ». Salez et al. [37] ont proposé un modèle élémentaire de réorganisation moléculaire dite en « chaînes coopératives » permettant de retrouver la loi de viscosité VFT. Ils proposent ainsi une interprétation de la température de Vogel T_v ainsi que des relations liant A , B et T_v qui expliquent la présence de fortes corrélations entre ces trois paramètres observées pour différents verres. T_v est ainsi interprétée comme la température à laquelle plus aucune relaxation n’est possible (individuelle ou coopérative). Sa relation avec T_g reste toutefois, dans ce cadre, indéterminée car la définition de la température de transition vitreuse est liée à la définition d’une échelle de temps considérée comme longue par rapport à la durée d’observation. L’introduction de la température T_v brise alors la symétrie entre température chaude et froide qui existait dans un système où la viscosité était considérée indépendante de la température.

La viscosité cinématique A est « la viscosité du fluide à très haute température ». Dans de nombreuses situations, les températures rencontrées dans le système ne sont pas assez élevées pour considérer que A soit la viscosité de référence. Bien que le choix $\nu_0 = A$ soit théoriquement possible, l’évaluation des paramètres adimensionnés du système résultant d’un tel choix peut donner des valeurs très éloignées des valeurs typiques rencontrées localement au sein du fluide. Pour pallier cet écart, la viscosité de référence est prise égale à $\nu_0 = A/f_\nu^{min}$, où f_ν^{min} est choisi tel que la viscosité cinématique au sein du fluide soit raisonnablement proche de ν_0 . Afin de supprimer le mauvais comportement de la loi VFT aux basses températures (T très proche ou inférieur à T_v), on force $f_\nu = f_\nu^{max}$ pour cette gamme de température, où f_ν^{max} est choisi suffisamment fort pour capturer la « solidification » du verre. Lors des simulations numériques, le type de verre utilisé nous pousse à choisir $f_\nu^{min} = 10^{-2}$ et $f_\nu^{max} = 10^6$ entraînant une borne supérieure de la viscosité dynamique de l’ordre de 10^5 Pa.s, supérieure d’un ordre de grandeur à la viscosité du « point d’écoulement » introduit par l’industrie verrière valant 10^4 Pa.s. En écriture adimensionnée, la loi VFT s’écrit alors :

$$f_\nu(T) = f_\nu^{min} \exp\left(\frac{1}{Pn(T - D)}\right) \quad (2.33)$$

ajoutant ainsi deux paramètres adimensionnés caractérisant respectivement le rapport de la différence de températures et de « l’énergie d’activation » (nombre de Pearson noté Pn) et la position relative de la température caractéristique du fluide aux températures

chaude et froide notée D :

$$Pn = \frac{R^n \Delta T}{B}, D = \frac{T_v - T_c}{\Delta T}$$

2.2.7 Modélisation de la résistance thermique aux parois

Dans le cas où le contact thermique entre la charge à fondre (initialement sous forme granulaire) et les parois refroidies est suffisamment bon, il est naturel de penser qu'il existe au sein du verre proche de la paroi une surface isotherme à la température caractéristique de coalescence, ou sintérisation, du matériau granulaire T_f . Dans le cas des verres, T_f est choisie égale à la température de transition vitreuse. Plusieurs études utilisent ce principe pour remplacer la condition aux limites thermiques par une condition de Dirichlet $T^+ = T_f$ [14–16]. L'équipe de recherche allemande de Hanovre [16] obtient notamment une bonne prédiction quantitative des transferts thermiques avec cette méthode dans le cadre de la fusion de poudre d'alumine en creuset froid. Toutefois, l'étude de E. Sauvage [14] concernant la fusion d'une charge de fritte de verre en creuset froid a montré que l'hypothèse selon laquelle l'isotherme T_f serait présente dans le verre en fusion mène systématiquement à une forte surestimation du flux thermique reçu par les éléments refroidis. Ce constat permet d'affirmer que la température de la frontière du domaine fluide dépasse T_f en certains points, ce qui n'est possible que grâce à des effets de tension superficielle empêchant le verre fluide de s'approcher de la paroi extérieure froide¹². Ceci est dû à la résistance thermique importante induite par la présence d'air à l'interface.

La prédiction quantitative des flux thermiques nécessite alors la modélisation précise de l'interface entre fluide et paroi. L'analyse de la structure et des phénomènes de transfert d'énergie proches de la paroi doit permettre de proposer un coefficient d'échange conducto-convectif h_{ext} entrant en jeu dans les conditions aux limites thermiques. La présence d'un mélange hétérogène de fritte de verre infondue et d'air stagnant au niveau des parois froides entraîne l'apparition d'une forte résistance de contact (« gap conductance »)¹³. L'importance de cette résistance affecte le flux thermique en provenance de la fonte verrière. La modélisation du contact thermique entre verre et parois refroidies revient alors à proposer une valeur ou une expression pour le coefficient d'échange conducto-convectif h_{ext} .

Des études précédentes concernant la fusion de métaux en creuset proposent une expression du coefficient d'échange basé sur une résolution locale du transfert thermique par conduction et par rayonnement à travers la couche d'air séparant la fonte et le creuset. Deux grandeurs physiques interviennent alors de manière prédominante : l'épaisseur de cette zone et sa conductivité thermique [38, 39]. Mortensen [40] prescrit arbitrairement l'épaisseur de la couche et propose d'évaluer la conductivité thermique à la température moyenne $(T^+ + T_{ext})/2$. M'Hamdi et al. [41] ont ensuite proposé un modèle d'évolution de l'épaisseur de couche d'air gouverné par la dilatation thermique du lingot. Ces études

12. Travaux de P. GIRARDIN (DTE/STS/SDC NT 92/58), référence interne CEA.

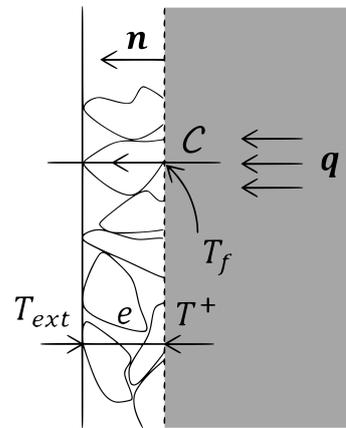
13. Dans certains cas, où une part importante de la charge est sous forme de fritte dans le creuset (au démarrage de la fusion par exemple), la modélisation par résistance de contact est caduque et une modélisation de la fritte en tant que milieu poreux est nécessaire. Ces cas ne seront pas abordés dans cette étude.

montrent la nécessité de considérer une valeur de h_{ext} dépendante de la température de paroi. Dans le cas du creuset froid appliqué à la fusion de verre, la morphologie du contact est également dépendante du flux thermique surfacique local. En effet, lorsque ce dernier est important, la fritte a tendance à fondre de plus en plus près de la paroi froide, entraînant une diminution de l'épaisseur de la couche fritte/air et donc une amélioration du contact thermique (augmentation de h_{ext}). Cette dynamique doit être prise en compte dans la modélisation.

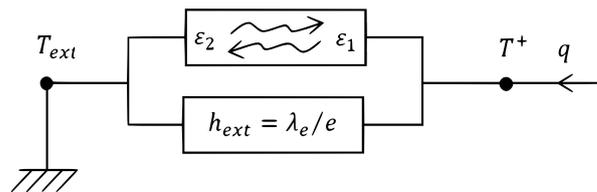
Nous proposons ici un modèle de résistance thermique basé sur l'existence d'une couche de fritte de verre d'épaisseur e entre la frontière du fluide et la surface du domaine extérieur (dont la température imposée T_{ext} est supposée inférieure à T_f). Cette couche est composée d'un matériau granulaire (mélange hétérogène de grains solides de conductivité λ_f et d'air de conductivité λ_a) de conductivité thermique effective λ_e .



(a) Photographie de la couche résistive au contact de la virole du creuset froid après refroidissement



(b) Modèle de couche résistive pour l'évaluation de la résistance de contact à la paroi



(c) Schéma de résistances équivalentes du modèle de couche isolante

Figure 2.6 – Couche résistive fritte/air entre la fonte et la paroi refroidie

L'hypothèse « opposée » à l'existence de l'isotherme T_f est l'hypothèse de flux thermique localement uniforme au bord, qui permet une résolution analytique de la condition aux limites thermique, sachant que la réalité des transferts se situera entre ces deux bornes analytiques. Les hypothèses suivantes sont considérées :

- Le flux surfacique $q = \mathbf{q} \cdot \mathbf{n} = H(T^+ - T_{ext})$ est localement uniforme le long de la frontière ;
- Le fluide présente une vitesse nulle le long de la frontière et une température moyenne locale T^+ ;
- La paroi est faiblement courbée ;

- La couche granulaire ne participe pas aux échanges radiatifs ;
- La conductivité du verre est indépendante de la température pour $T \leq T_f$.

Le coefficient d'échange thermique est alors donné par (valide dans le cas de faible courbure $e \max(|\gamma_{min}|, |\gamma_{max}|) \ll 1$, où γ_{min} et γ_{max} sont les courbures principales de la paroi) :

$$h_{ext} = \frac{\lambda_e}{e} \quad (2.34)$$

Afin d'évaluer l'épaisseur de couche granulaire e , nous considérons un chemin \mathcal{C} rectiligne orienté selon la normale \mathbf{n} reliant la fonte verrière à la paroi extérieure et ne passant que par le verre à une température $T \leq T_f$. Le long de ce chemin, en négligeant les échanges radiatifs devant les échanges conductifs, $\mathbf{q} = -\lambda_f \nabla T$. Alors :

$$\begin{aligned} \int_{\mathcal{C}} \mathbf{q} \cdot \mathbf{n} dl &= qe = \lambda_f (T_f - T_{ext}) \\ \Rightarrow e &= \frac{\lambda_f (T_f - T_{ext})}{H(T^+ - T_{ext})} \end{aligned} \quad (2.35)$$

En remplaçant e par sa formule 2.35 dans 2.34 puis en utilisant la formule du coefficient d'échange thermique global issue de 2.23 :

$$H(T) = h_{ext} + \varepsilon_{ext} \sigma (T^+ + T_{ext}) (T^{+2} + T_{ext}^2)$$

nous obtenons la formule du coefficient d'échange, valide pour $e \ll L$ (cas du creuset froid) :

$$h_{ext} = \frac{\sigma \varepsilon_{ext} (T^{+4} - T_{ext}^4)}{\frac{\lambda_f}{\lambda_e} (T_f - T_{ext}) - (T^+ - T_{ext})} \quad (2.36)$$

La conductivité thermique effective du milieu granulaire de porosité n (on considère que la pression de contact ainsi que l'éventuelle dilatation thermique des grains ne modifie pas significativement la valeur de porosité du milieu granulaire), dans le cas de flux localement uniforme, s'obtient par [18] :

$$\lambda_e = \frac{\lambda_f \lambda_a}{n \lambda_f + (1 - n) \lambda_a}$$

La conductivité de l'air est évaluée selon la formule empirique suivante, valide dans la gamme des températures considérées, à la température moyenne $(T^+ + T_{ext})/2$ (T en Kelvins, λ_a en W/m/K) :

$$\lambda_a(T) = 1,5207 \cdot 10^{-11} T^3 - 4,857 \cdot 10^{-8} T^2 + 1,0184 \cdot 10^{-4} T - 3,9333 \cdot 10^{-4}$$

Lorsque la présence d'air est négligée ($n = 0$), h_{ext} présente une forte et soudaine augmentation pour $T^+ \approx T_f$ et, pour les flux thermiques suffisamment élevés, la condition aux limites dégénère en une condition de Dirichlet :

$$T^+ \approx T_f$$

Ce cas correspond alors à l'autre borne analytique évoquée, qui considère la présence de l'isotherme T_f dans la zone périphérique de la charge, et qui est donc retrouvée dans la limite $n = 0$ du modèle de résistance thermique développé.

La condition aux bords thermique constitue une équation de la forme :

$$\mathcal{F} \left(\frac{q}{\sigma \varepsilon_{ext} T_f^4}, \frac{T^+}{T_f}, n \right) = 0$$

La résolution numérique de cette équation pour différentes valeurs de flux thermique nous donne un faisceau de courbes de température aux bords du domaine fluide en fonction de la porosité de la couche de fritte infondue, représenté sur la figure 2.7.

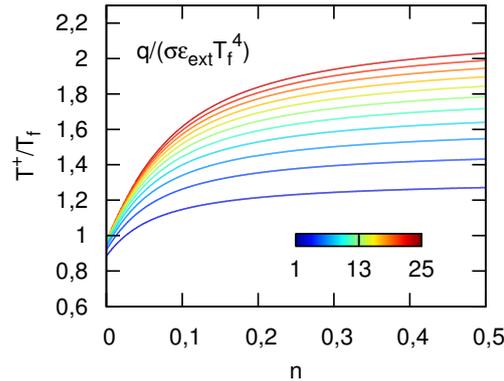


Figure 2.7 – Température au bord du domaine fluide en fonction de la porosité de la couche de fritte infondue pour différentes valeurs de flux thermique - un rapport de conductivités indépendant de la température $\frac{\lambda_f}{\lambda_a} = 20$ et $\frac{T_{ext}}{T_f} = 0,41$ ont été prescrits

Le développement présenté ne tient pas compte de l'éventuel mouvement de l'air situé dans la couche pariétale de fritte de verre qui pourrait, dans une mesure qu'il reste à évaluer, modifier les échanges thermiques considérés. Enfin, l'épaisseur de fritte infondue est amenée à diminuer lors de l'augmentation transitoire du flux thermique. Lorsque le flux thermique revient à des valeurs plus faibles, l'épaisseur de fritte infondue ne peut pas augmenter, la coalescence due à la fusion du verre étant un phénomène irréversible. Ce phénomène d'hystérésis a déjà été observé dans certaines situations rencontrées sur des prototypes de creuset froid et peut être pris en compte dans la simulation numérique instationnaire du problème thermohydraulique. Pour ce faire, l'épaisseur de milieu granulaire doit être gardée en mémoire et systématiquement comparée à l'épaisseur de milieu granulaire recalculée lors de l'évaluation de la condition aux limites thermique.

2.3 Transport de particules

Afin d'étudier l'influence des particules de platinoïdes sur le système, il est nécessaire de développer un modèle d'évolution de la fraction volumique en particules. Le problème du transport de particules (liquides ou solides) dans un fluide est a priori résolu par l'écriture de la conservation de la quantité de mouvement de la ou des phases fluides (équations de Navier-Stokes) et de la quantité de mouvement de la phase solide éventuelle (équations de la dynamique d'un solide indéformable). À ces lois s'ajoutent les conditions mécaniques aux interfaces (cinétiques et dynamiques) assurant les transferts d'énergie mécanique et éventuellement des lois régissant les collisions interparticulaires. Ce type de formulation

permet un suivi Lagrangien de chaque particule au sein du fluide et permet alors d'obtenir une valeur précise de la fraction volumique locale en particules au sein de la suspension. Le véritable challenge dans la modélisation du transport de particules vient de leur nombre colossal, qui rend impossible à l'heure actuelle la résolution numérique des équations mentionnées et donc un tel suivi Lagrangien. Pour donner un ordre d'idée, une masse de 300 kg de verre chargé en platinoïdes à une fraction volumique de 0,7% contient plus de mille milliards de particules. L'approche Eulérienne décrite par la suite permet de contourner cette difficulté majeure. Nous nous attacherons à dériver une équation d'évolution de la fraction volumique en particules dans le cadre de cette approche Eulérienne, en explicitant l'ensemble des hypothèses et approximations ainsi que leur domaine de validité.

2.3.1 Approche Eulérienne

Nous considérons dans cette section la modélisation des particules en suspension sous la forme d'un champ scalaire continu, dénommée modèle à un fluide. De tels modèles Eulériens ont notamment été initiés dans le cadre des phénomènes de sédimentation par les théories de Kynch [42, 43]. Ces dernières décennies, avec le développement des capacités de calcul parallèle, ils ont permis la simulation numérique de problèmes complexes comme les suspensions diluées en écoulement turbulent [44]. Ils ont également déjà été proposés dans le cadre de la simulation numérique du comportement des platinoïdes dans les fontes verrières [45, 46] et ont montré non seulement un bon accord avec les données expérimentales mais également une certaine facilité de mise en œuvre. Contrairement à plusieurs travaux de modélisation du transport des platinoïdes tentant de modéliser la diversité des particules [46, 47] en multipliant les équations de transport pour chaque classe de particules (forme, taille...), nous faisons ici le choix d'inclure cette diversité des morphologies dans le terme de diffusion. Ce terme, parfois absent des modélisations de transport, à pourtant l'avantage de fournir une écriture simple de phénomènes microscopiques complexes à caractère macroscopique diffusif [48].

2.3.2 Détermination d'une équation de transport

Considérons un mélange de fines particules sphériques de diamètre d_p et de masse volumique ρ_p en suspension dans un liquide visqueux incompressible de masse volumique ρ_f et de viscosité dynamique η . Le mélange est localement à la température T et soumis à l'accélération de la pesanteur $\mathbf{g} = g\hat{\mathbf{g}}$. C désigne la fraction volumique locale de particules dans le mélange et \mathbf{u} le champ de vitesse du fluide, supposé connu. D'autre part, on suppose qu'il existe un champ de vitesse locale moyenne des particules \mathbf{u}_p .

Conservation de la masse de particules

L'écriture locale de la conservation de la masse de particules dans la suspension s'écrit :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \nabla \cdot (C\mathbf{u}_p) = 0$$

Démonstration. On considère un ensemble de particules dans un volume élémentaire dV de surface dS , de normale unitaire sortante \mathbf{n} . Le bilan de masse de particules pendant

un temps infinitésimal δt s'écrit :

$$\rho_p dV (C(t + \delta t) - C(t)) = - \oint_{dS} \rho_p C \delta t \mathbf{u}_p \cdot \mathbf{n} d^2s$$

Entraînant, par application du théorème de Green-Ostrogradski ¹⁴ :

$$\rho_p dV (C(t + \delta t) - C(t)) = -\rho_p \delta t \int_{dV} \nabla \cdot (C \mathbf{u}_p) d^3v \approx -\rho_p \delta t dV \nabla \cdot (C \mathbf{u}_p)$$

et donc le résultat. □

Équilibre dynamique des particules

Les particules sont supposées suffisamment fines pour pouvoir négliger tout phénomène d'inertie. L'équilibre dynamique des particules est donc satisfait à tout instant. Le volume élémentaire dV sera supposé en mouvement localement rectiligne uniforme (centrifugation négligée par exemple). Chaque particule de cet ensemble est individuellement soumise à sa traînée de Stokes (particules considérées sphériques et, dans un premier temps, uniques dans un milieu infini), au poids et à la poussée d'Archimède. Les forces de pressions non hydrostatiques seront négligées. Les interactions entre les particules de l'ensemble et les autres sont traitées en considérant que les particules avoisinant cette ensemble exercent une force de pression $p_p = \zeta C$ répartie sur l'enveloppe de dV , soit une force volumique $-\zeta \nabla C$ où ζ dépend du type de diffusion discuté dans la section 2.3.3. L'équilibre dynamique s'écrit alors :

$$\frac{C dV}{\pi d_p^3 / 6} \left(3\pi \eta d_p (\mathbf{u} - \mathbf{u}_p) + \frac{\pi d_p^3}{6} (\rho_p - \rho_f) \mathbf{g} \right) - \zeta \nabla C dV = 0$$

Cet équilibre peut être dérivé de l'équation de Basset-Boussinesq-Oseen dans laquelle les termes instationnaires d'accélération, de masse ajoutée et de force de Basset ainsi que les forces de pression non hydrostatique ont été négligés tandis qu'une force d'interaction interparticulaire a été ajoutée. Il est nécessaire de vérifier que le nombre de Reynolds particulaire est suffisamment faible pour appliquer cette relation d'équilibre (et notamment l'expression de la traînée de Stokes) :

$$Re_p = \frac{d_p \rho_f \|\mathbf{u}_p - \mathbf{u}\|}{\eta} \ll 1$$

14. Ce théorème (également dénommé théorème de Gauss, donnant parfois son nom aux méthodes de discrétisation spatiale dans le cadre des méthodes volumes finis) appliqué à une fonction vectorielle \mathbf{f} sur un volume \mathcal{V} à l'intérieur d'une surface fermée \mathcal{S} de normale extérieure \mathbf{n} s'énonce ainsi :

$$\int_{\mathcal{V}} \nabla \cdot \mathbf{f} dv = \oint_{\mathcal{S}} \mathbf{f} \cdot \mathbf{n} ds$$

Appliqué à un tenseur d'ordre 2 noté \mathbf{T} , il s'énonce de la même manière :

$$\int_{\mathcal{V}} \nabla \cdot \mathbf{T} dv = \oint_{\mathcal{S}} \mathbf{T} \cdot \mathbf{n} ds$$

Lorsqu'il est appliqué au tenseur d'ordre 2 particulier $\mathbf{T} = f \mathbb{1}$, avec f un champ scalaire, il prend la forme :

$$\int_{\mathcal{V}} \nabla f dv = \oint_{\mathcal{S}} f \mathbf{n} ds$$

Dans le cas d'un fluide en écoulement laminaire, de vitesse caractéristique U et de dimension caractéristique L , l'inertie des particules est en effet négligeable pour un nombre de Stokes suffisamment faible :

$$St = \frac{\rho_p d_p^2 U}{18\eta L} \ll 1$$

les particules agissant alors comme des traceurs (mis à part leur tendance à sédimenter et à interagir entre elles). Le champ de vitesse des particules est alors directement obtenu :

$$\mathbf{u}_p = \mathbf{u} + \tau \hat{\mathbf{g}} - \frac{\kappa}{C} \nabla C$$

où τ et κ désignent respectivement la vitesse de sédimentation de Stokes et la diffusivité des particules dans le fluide :

$$\tau = \frac{d_p^2 (\rho_p - \rho_f) g}{18\eta} \quad (2.37)$$

$$\kappa = \frac{d_p^2 \zeta}{18\eta} \quad (2.38)$$

L'introduction de la valeur du champ de vitesse des particules dans l'équation de conservation de la masse entraîne l'équation d'évolution de la fraction volumique de particules :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla C + \nabla \cdot (\tau C \hat{\mathbf{g}}) = \nabla \cdot (\kappa \nabla C) \quad (2.39)$$

Au niveau de parois imperméables, la condition aux limites est directement donnée par :

$$\frac{\partial C}{\partial n} - \frac{\tau}{\kappa} \hat{\mathbf{g}} \cdot \mathbf{n} C = 0$$

où \mathbf{n} désigne la normale sortante du domaine.

Nous négligerons tout phénomène de thermophorèse qui apparaîtrait dans le cas non-isotherme. Cet effet de migration des particules soumises à un gradient thermique n'a en effet pas été observé pour des suspensions de platinoïdes dans du verre fondu [49].

Correction pour les particules liquides ou non sphériques

Dans le cas de particules liquides (gouttes), un écoulement se développe au sein même de la particule (appelé écoulement interne), qui a tendance à diminuer la force de traînée appliquée par le fluide suspendant. L'expression de la traînée de Stokes présente alors un facteur correctif entraînant une modification de la vitesse terminale de sédimentation, donnée par l'équation d'Hadamard-Rybczynski [50, 51] :

$$\tau = \frac{d_p^2 (\rho_p - \rho_f) g}{18\eta} \frac{1 + \bar{\eta}}{2/3 + \bar{\eta}}$$

où $\bar{\eta} = \eta_p / \eta$ est le rapport entre la viscosité du liquide constituant la particule et celle du fluide suspendant. Dans le cas de particules non sphériques, un facteur de forme intervient

également comme préfacteur dans la formule de la vitesse terminale de Stokes et tend à diminuer cette dernière. Ces contributions ne modifient toutefois pas l'ordre de grandeur de la vitesse de sédimentation.

Entravement

Le terme de sédimentation ne montre pas de phénomène d'entravement car la formule de la traînée de Stokes utilisée est uniquement valable pour une sphère unique dans un milieu infini. Les fractions volumiques rencontrées ne permettent cependant pas de traiter la suspension comme une suspension diluée et les interactions interparticulaires sont à prendre en compte. Nous ajoutons donc a posteriori un facteur d'entravement en supposant que la présence de particules ralentit la sédimentation d'une particule via des interactions hydrodynamiques entre particules voisines et via le mouvement local ascendant du fluide suspendant déplacé par les particules [52]. On cherche donc une fonction d'entravement f_e telle que le terme de sédimentation s'écrive :

$$\nabla \cdot (\tau f_e(C) \hat{\mathbf{g}} C)$$

Cette fonction doit être décroissante avec la fraction volumique, continûment différentiable, strictement positive et prendre la valeur 1 pour $C = 0$. Richardson et Zaki [53] ont proposé la forme :

$$f_e(C) = (1 - C)^\alpha$$

Démonstration. Nous proposons ici une démonstration de l'expression générale de la fonction d'entravement de Richardson et Zaki grâce à la démarche de Mooney [54] et Krieger et Dougherty [55], en faisant le postulat que chaque particule « voit » autour d'elle un fluide suspendant dont les propriétés sont données par la fraction volumique locale C . Soit une telle fonction f et $C \in [0; 1[$. La fraction volumique C dans un volume V peut être décomposée en l'apport d'une première fraction volumique $C_1 \leq C$ donnant un fluide de propriété $f(C_1)$ puis l'ajout d'une fraction $C_2 = \frac{C - C_1}{1 - C_1}$ dans ce nouveau fluide de volume effectif $(1 - C_1)V$ donnant un fluide de propriété $f(C_1)f(C_2)$. Il vient donc :

$$\forall C_1 \leq C, f(C) = f(C_1) f\left(\frac{C - C_1}{1 - C_1}\right)$$

En différenciant partiellement cette expression par rapport à C , puis en prenant $C_1 = C$, on obtient :

$$\forall C \in [0; 1[, d \ln(f) = \frac{-\alpha dC}{1 - C}, \alpha \geq 0$$

Soit :

$$\forall C \in [0; 1[, f(C) = (1 - C)^\alpha$$

qui respecte l'ensemble des conditions voulues. □

Richardson et Zaki déterminent de plus expérimentalement les valeurs de l'exposant α (appelé exposant d'entravement) selon le Reynolds particulaire. Dans notre cas de faible Reynolds particulaire ($Re_p \leq 0,2$), la valeur admise est $\alpha = 4,65$. Cette fonction d'entravement a l'inconvénient d'annuler la vitesse de sédimentation pour une fraction volumique $C = 1$, alors qu'expérimentalement, cette annulation est observée pour un

empilement compact avec $C \approx 0,6-0,7$ dans le cas de particules sphériques de même taille (empilement hexagonal ou cubique à faces centrées). Pour pallier ce problème, Michaels et Bolger [56] proposent la fonction d'entravement :

$$f_e(C) = \left(1 - \frac{C}{C_a}\right)^{4,65}$$

où C_a est la fraction volumique d'agglomération maximale effective des particules. Les particules de platinoïdes telles que celles composées principalement de palladium, quasi-sphériques, ont probablement une compacité de l'ordre de 60%. Mais contrairement aux particules sphériques rigides, les platinoïdes tels que les particules d'oxyde de ruthénium (en forme d'aiguilles) présentent une compacité effective d'agglomération C_a bien plus faible, de l'ordre de 6%, comme il sera observé par la suite. Cette valeur est fortement dépendante de la forme des particules et est attribuée au phénomène de volume exclu pour les particules non sphériques.

L'équation de transport des particules 2.39 devient alors :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla C + \nabla \cdot \left(\tau \hat{\mathbf{g}} C \left(1 - \frac{C}{C_a}\right)^\alpha \right) = \nabla \cdot (\kappa \nabla C) \quad (2.40)$$

Au niveau de parois imperméables immobiles, la condition aux limites est donnée par :

$$\frac{\partial C}{\partial n} - \frac{\tau}{\kappa} \hat{\mathbf{g}} \cdot \mathbf{n} C \left(1 - \frac{C}{C_a}\right)^\alpha = 0 \quad (2.41)$$

où \mathbf{n} désigne la normale sortante du domaine.

La non linéarité de l'équation de transport dans le cas d'un entravement non négligeable entraîne en particulier l'amincissement des éventuels fronts de sédimentation (« self-sharpening » [48]) voire l'apparition de chocs de fraction volumique. Ces phénomènes ne sont toutefois observés qu'à haute fraction volumique et sont limités par le terme de diffusivité.

Dans le cas particulier de paramètres τ et κ constants, l'équation d'évolution 2.40 devient :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla C + \tau \hat{\mathbf{g}} \cdot \nabla \left(C \left(1 - \frac{C}{C_a}\right)^\alpha \right) = \kappa \nabla^2 C$$

2.3.3 Détermination de la diffusivité

Dans le cas de petites particules browniennes sans interactions (solution dite colloïdale), la pression des particules avoisinantes est issue de l'agitation thermique soit [57] :

$$p_p = \frac{C}{\pi d_p^3/6} k_B T \Leftrightarrow \zeta = \frac{p_p}{C} = \frac{k_B T}{\pi d_p^3/6}$$

où k_B désigne la constante de Boltzmann. En remplaçant le coefficient ζ dans 2.38 par l'expression obtenue, on retrouve ainsi la diffusivité de Stokes-Einstein :

$$\kappa_{S-E} = \frac{k_B T}{3\pi\eta d_p}$$

Dans le cas de particules moins fines, la diffusion est d'origine hydrodynamique. Il s'agit de multiples processus d'interaction entre les particules et le fluide et entre particules, menant à une dispersion équivalente. Le régime de diffusivité (brownienne ou hydrodynamique) dépend de la valeur du nombre de Péclet particulaire :

$$Pe_p = \frac{\|\mathbf{u}_p\|d_p}{\kappa_{S-E}} = \frac{3\pi\|\mathbf{u}_p\|d_p^2\eta}{k_B T}$$

Il peut être considéré comme le rapport de l'échelle de temps de diffusion brownienne sur une distance égale à la taille de la particule d_p^2/κ_{S-E} et du temps caractéristique de déplacement de la particule sur une distance égale à sa taille $d_p/\|\mathbf{u}_p\|$. Si $Pe_p \ll 1$, la diffusion est d'origine thermique. Des valeurs plus élevées du Péclet particulaire indiquent l'importance des phénomènes hydrodynamiques, ce qui est le cas pour une suspension de particules de platinoïdes dans un verre fondu, notamment en raison de leur taille micrométrique. Comme montré par de nombreuses études, le tenseur de diffusion est en général non scalaire (diffusion anisotrope). Toutefois, seule une diffusion Fickienne isotrope sera considérée dans cette étude. De nombreuses études s'attachent également à proposer des valeurs numériques ou des lois d'échelle de diffusion hydrodynamique. Parmi elles, citons deux cas classiques :

- Dans le cas d'un fluide au repos (expérience de sédimentation), la loi d'échelle est communément admise [58] :

$$\kappa \sim d_p \tau$$

à laquelle une dépendance supplémentaire à la fraction volumique en particules a pu être observée et caractérisée [58] ;

- Dans le cas d'un fluide en mouvement ($\mathbf{u} \neq 0$), la dispersion peut être induite par cisaillement et entraîne une diffusivité de la forme [59–61] :

$$\kappa \sim d_p^2 \dot{\gamma}$$

On notera qu'avec ce type de mécanisme, la diffusivité de particules non sphériques dans un fluide en écoulement est en général bien supérieure à leur diffusivité dans un fluide au repos.

Dans le cadre de la modélisation proposée, seule la dépendance du coefficient de dispersion à la température liée à la dépendance à la température de la viscosité du fluide suspendant [3] ainsi qu'à la polydispersion des particules sera prise en compte. Une part importante de dispersion est en effet liée à la diversité des morphologies des particules considérées [62] et notamment leur granulométrie, appelée diffusivité de polydispersion.

Nous démontrons dans cette section qu'une dispersion gaussienne des tailles de particules entraîne bien un profil de fraction volumique de type diffusif lors de la sédimentation dans un fluide au repos. Une expression de la diffusivité est alors proposée, permettant une évaluation numérique a priori de la diffusivité de polydispersion. Supposons pour cela que la taille des particules suit une loi normale d'espérance d_p et d'écart type relatif (coefficient de variation) σ considéré faible. La taille d'une particule s'écrit alors :

$$d_p + d'_p \text{ où } \frac{d'_p}{d_p} \sim \mathcal{N}(0, \sigma^2), \sigma \ll 1$$

Dans le référentiel se déplaçant à la vitesse $\bar{\tau}\hat{\mathbf{g}}$, où $\bar{\tau} = \frac{d_p^2(\rho_p - \rho_f)g}{18\eta}$, cette particule chute à la vitesse de Stokes $\tau(d'_p)$:

$$\tau(d'_p) = \left(1 + \frac{d'_p}{d_p}\right)^2 \bar{\tau} - \bar{\tau} \approx \frac{2d'_p}{d_p} \bar{\tau}$$

Sa position à l'instant t est ainsi donnée par :

$$p(d'_p, t) = \tau(d'_p)t \approx \frac{2d'_p}{d_p} \bar{\tau}t \sim \mathcal{N}(0, (2t\sigma\bar{\tau})^2)$$

Afin de faciliter la démonstration, nous ne considérons aucune interaction entre particules. Dans le cas d'une suspension monodispersée de fraction volumique initiale \bar{C} sans autres sources de diffusivité, le profil du front de sédimentation est donné par la fonction de Heaviside (dans le référentiel se déplaçant à la vitesse $\bar{\tau}\hat{\mathbf{g}}$ muni d'un repère d'axe vertical orienté selon $\mathbf{e}_y = -\hat{\mathbf{g}}$) :

$$\bar{C}H(p(0, t) - y) = \bar{C}H(-y)$$

Dans le cas d'une suspension polydispersée, le profil s'obtient alors par un processus de moyenne sur les positions possibles des particules :

$$\begin{aligned} C(t, y) &= \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\bar{C}}{2t\sigma\bar{\tau}\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{p^2}{2(2t\sigma\bar{\tau})^2}\right) H(p(d'_p, t) - y) dp \\ &= \bar{C} \int_y^{+\infty} \frac{1}{2t\sigma\bar{\tau}\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{p^2}{2(2t\sigma\bar{\tau})^2}\right) dp \\ &= \frac{\bar{C}}{2} \operatorname{erfc}\left(\frac{y}{2\sqrt{2}t\sigma\bar{\tau}}\right) \end{aligned}$$

où erfc désigne la fonction d'erreur complémentaire. Il s'agit bien d'un profil de diffusion avec une diffusivité :

$$\kappa = 2\sigma^2\bar{\tau}^2t \quad (2.42)$$

où t désigne le temps de sédimentation. La largeur du front de sédimentation δ est définie comme la distance séparant les fronts de concentration $\bar{C}/4$ et $3\bar{C}/4$. En utilisant la forme du profil obtenue, on a :

$$\delta = 4\sqrt{2} \operatorname{erf}^{-1}\left(\frac{1}{2}\right) \sigma\bar{\tau}t$$

où erf désigne la fonction d'erreur de Gauss. La largeur du front δ croît donc linéairement avec le temps (super-diffusion), comme observé dans des travaux précédents [63, 64]. Suivant ces travaux, en définissant la distance de sédimentation par $\xi = \bar{\tau}t$, nous obtenons la relation :

$$\frac{\delta}{\xi} = 4\sqrt{2} \operatorname{erf}^{-1}\left(\frac{1}{2}\right) \sigma \approx 2,7\sigma \quad (2.43)$$

La figure 2.8 montre la comparaison entre les données expérimentales issues de [64] et la prédiction 2.43, qui révèle un très bon accord. À une distance de sédimentation donnée, on a bien $\kappa = 2\sigma^2\bar{\tau}\xi \propto \bar{\tau}$. Ainsi, dans notre cas, diffusivité hydrodynamique et vitesse de Stokes présentent la même dépendance à la viscosité du fluide suspendant ainsi qu'à la taille des particules.

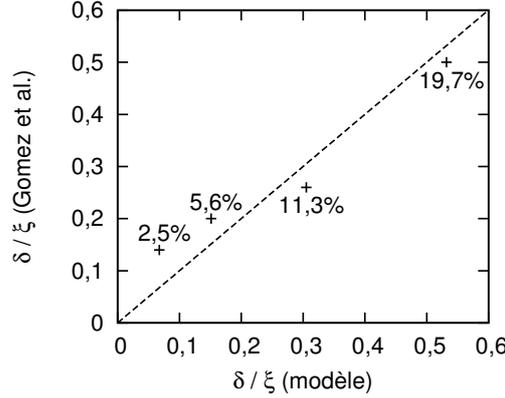


Figure 2.8 – Comparaison pour des suspensions polydisperses entre la relation 2.43 et les données expérimentales issues de [64] - les étiquettes de données indiquent l'écart type de polydispersion σ

2.3.4 Dépendance des paramètres de transport à la température

La source de non uniformité de la vitesse de sédimentation de Stokes τ et de la diffusivité des particules κ réside principalement dans les variations de la viscosité du fluide apparaissant dans leur définition ($\tau, \kappa \propto 1/\eta$), cette viscosité étant thermo-dépendante $\eta = \rho_0 \nu_0 f_\nu(T)$ ¹⁵. τ_0 et κ_0 sont alors définis tels que :

$$\tau = \frac{\tau_0}{f_\nu}, \quad \kappa = \frac{\kappa_0}{f_\nu} \quad (2.44)$$

2.3.5 Mode de sédimentation « en agrégats »

Plusieurs études ont montré que les particules de platinoïdes présentaient une tendance à l'agrégation dans des verres peu cisailés, formant des « clusters » de particules en surconcentration proche de (ou bien même dépassant) la fraction volumique d'agglomération maximale C_a observée dans les expériences de sédimentation sans agitation [7, 8]. Ces études ont par ailleurs montré que cette agrégation réversible donnait naissance au comportement non Newtonien des suspensions de platinoïdes. Il est intéressant de déterminer la vitesse de sédimentation de cet ensemble de particules dans le cas où il est considéré comme un agrégat sphérique imperméable de fraction volumique (compacité) C_a .

Dans l'établissement de l'équation de transport, il a été considéré que chaque particule était individuellement soumise à sa traînée de Stokes (cf. figure 2.9). La résistance à l'avancement d'un ensemble de volume dV s'écrit alors comme la somme de ces traînées de Stokes :

$$\mathbf{dD} = -\frac{CdV}{\pi d_p^3/6} 3\pi\eta d_p \mathbf{u}_p = -\frac{18\eta CdV}{d_p^2} \mathbf{u}_p$$

La vitesse de sédimentation (où l'entravement est négligé) s'obtient grâce à l'équilibre avec le poids et la poussée d'Archimède subis par l'ensemble valant :

¹⁵. Dans la pratique, sauf expérience dédiée de la section 5.2.2, nous utiliserons la viscosité effective de la suspension obtenue par mesures rhéologiques à haut taux de cisaillement, où la présence des particules a un effet mineur sur la valeur de la viscosité [8].

$$d\mathbf{P} = CdV(\rho_p - \rho_f)g\hat{\mathbf{g}}$$

Une vitesse de sédimentation égale à la vitesse de Stokes $\mathbf{u}_p = \tau\hat{\mathbf{g}}$ est alors obtenue. Dans le cas d'un agrégat de particules imperméable, la résistance à l'avancement exercée par le fluide s'écrit sous la forme d'une traînée de Stokes globale relative à la taille de l'agrégat d_a (définie par $dV = \pi d_a^3/6$, cf. figure 2.9) :

$$d\mathbf{D}' = -3\pi\eta d_a \mathbf{u}'_p$$

La vitesse de sédimentation s'obtient de même grâce à l'équilibre avec le poids et la poussée d'Archimède subis par l'ensemble valant :

$$d\mathbf{P}' = C_a dV(\rho_p - \rho_f)g\hat{\mathbf{g}}$$

Nous obtenons directement [65] :

$$\mathbf{u}'_p = C_a \left(\frac{d_a}{d_p}\right)^2 \tau\hat{\mathbf{g}} = C_a \left(\frac{d_a}{d_p}\right)^2 \mathbf{u}_p$$

En particulier, la vitesse de sédimentation « en agrégats » peut donc être soit supérieure soit inférieure à la vitesse de sédimentation individuelle, selon la compacité et la taille de l'agrégat. À titre d'exemple, certains agrégats de particules de platinoïdes observés (cas de l'oxyde de ruthénium ou des mélanges oxyde de ruthénium-palladium-tellure) présentent un diamètre $d_a \approx 100 \mu\text{m}$ et une compacité $C_a \approx 10\%$ qui entraîneraient une augmentation de la vitesse de sédimentation d'un facteur 10 par rapport à la vitesse de Stokes d'une particule indépendante. Dans le cas où ce phénomène serait prédominant, sa prise en compte dans l'équation de transport (que le fluide soit au repos ou non) est réalisée par une simple correction de la vitesse terminale de sédimentation de Stokes τ et de la diffusivité des particules κ par le facteur sans dimension $C_a \left(\frac{d_a}{d_p}\right)^2$. D'autres études proposent des corrections prenant en compte la perméabilité et la forme des agrégats [66, 67]. La valeur de la vitesse de sédimentation se situe alors entre les deux limites déterminées dans cette étude.

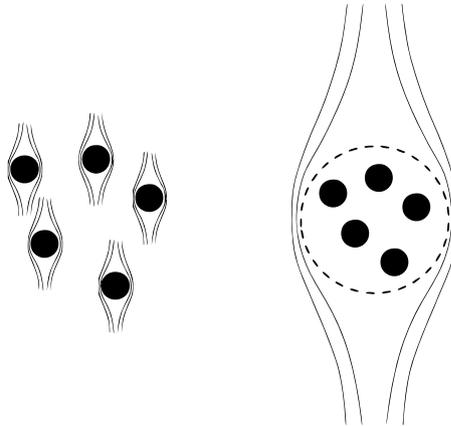


Figure 2.9 – Lignes de courant du fluide suspendant autour des particules pour les deux modes de sédimentation (particules individuelles à gauche ou « en agrégats » à droite)

2.3.6 Adimensionnement

Il existe trois échelles de temps légitimes pour l'adimensionnement de l'équation d'évolution de la fraction volumique en particules, menant à trois possibilités d'adimensionnement de l'équation de transport des particules présentées ici.

Fluide au repos

Dans un fluide au repos, le système est adimensionné avec la longueur caractéristique L et le temps caractéristique de diffusion L^2/κ_0 . L'adimensionnement de la température est identique aux sections précédentes.

$$\frac{\partial C}{\partial t} - \mathcal{N} \nabla \cdot \left(f_\nu^{-1} C \left(1 - \frac{C}{C_a} \right)^\alpha \hat{\mathbf{g}} \right) - \nabla \cdot (f_\nu^{-1} \nabla C) = 0 \quad (2.45)$$

où on définit le paramètre adimensionné :

$$\mathcal{N} = \frac{\tau_0 L}{\kappa_0}$$

\mathcal{N} s'interprète comme le rapport de l'échelle de temps de diffusion et de l'échelle de temps d'advection des particules par la pesanteur et est donc analogue à un nombre de Péclet. Plus \mathcal{N} est élevé, moins le système est diffusif.

Fluide en mouvement

Dans le cas où le mouvement du fluide est à considérer, il est judicieux d'utiliser soit le temps caractéristique d'advection par le fluide L/U , soit le temps caractéristique de diffusion visqueuse L^2/ν_0 , donnant respectivement :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla C + \frac{\mathcal{N}}{ReSc} \nabla \cdot \left(f_\nu^{-1} C \left(1 - \frac{C}{C_a} \right)^\alpha \hat{\mathbf{g}} \right) - \frac{1}{ReSc} \nabla \cdot (f_\nu^{-1} \nabla C) = 0$$

ou :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla C + \frac{\mathcal{N}}{Sc} \nabla \cdot \left(f_\nu^{-1} C \left(1 - \frac{C}{C_a} \right)^\alpha \hat{\mathbf{g}} \right) - \frac{1}{Sc} \nabla \cdot (f_\nu^{-1} \nabla C) = 0$$

Avec l'introduction d'un nouveau paramètre adimensionné, le nombre de Schmidt :

$$Sc = \frac{\nu_0}{\kappa_0}$$

Dans tous les cas, l'adimensionnement de la condition aux limites d'imperméabilité est direct et n'entraîne pas l'apparition de nouveaux paramètres adimensionnés.

2.4 Retour sur les couplages

2.4.1 Couplages pris en compte

Le schéma 2.10 a pour objectif de récapituler l'ensemble des couplages pris en compte dans la modélisation des phénomènes magnéto-thermo-hydrauliques proposée. En particulier, certains couplages engendrent des phénomènes bien connus dans ce type de situation physique, parmi lesquels les phénomènes de convection naturelle :

- La convection thermique due à une masse volumique du verre ρ dépendante de la température ;
- La convection thermo-capillaire due à une tension superficielle de l'interface air/verre γ dépendante de la température ;
- La convection « solutale » due à une masse volumique du verre ρ dépendante de sa concentration en platinoïdes. Nous n'utiliserons pas, par la suite, le terme « solutale », réservé au cas d'espèces dissoutes, car les platinoïdes sont majoritairement présents dans le verre sous forme de particules insolubles.

Par ailleurs, l'hydrodynamique influence le transport de l'énergie thermique et des particules grâce au phénomène d'advection par la vitesse du fluide \mathbf{u} . Le champ de température est également directement dépendant de la résolution du problème électromagnétique qui détermine la puissance Joule dissipée dans le matériau p_J agissant comme un terme source d'énergie thermique. Le problème électromagnétique dépend quant à lui totalement de la valeur de la conductivité électrique σ dépendante à la fois de la température et de la concentration en particules conductrices électroniques comme nous le montrerons par la suite. Enfin, la forte dépendance de la viscosité du fluide η à la température modifie drastiquement le comportement hydrodynamique de la fonte ainsi que le transport des particules en suspension.

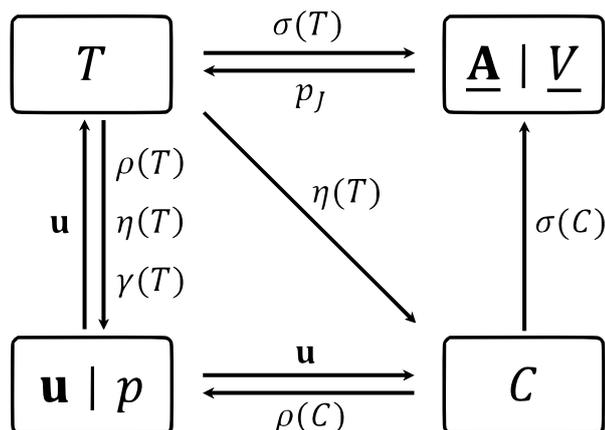


Figure 2.10 – Schéma représentatif des couplages entre physiques considérés

2.4.2 Phénomènes négligés

Dépendances des propriétés physico-chimiques

Toutes les dépendances des propriétés physico-chimiques n'ont pas été prises en compte dans notre modélisation, notamment :

- Les propriétés optiques (indice de réfraction n et coefficient d'atténuation β_r) sont considérées indépendantes de la température et de la concentration en particules de platinoïdes. On notera que ces particules, de nature métallique et de taille supérieure au micromètre, sont en effet opaques au rayonnement et apportent donc une contribution à l'atténuation du rayonnement ;
- Nous négligerons dans notre étude la dépendance de la conductivité thermique et de la capacité thermique de la suspension au taux de platinoïdes.

Outre les couplages négligés en ne considérant pas toutes ces dépendances, certains phénomènes issus du couplage entre différentes physiques sont de faible intensité et ont donc été négligés. Quelques-uns ont déjà été abordés (comme la thermophorèse), les autres sont évoqués dans cette section par souci d'exhaustivité.

Impact des particules sur la viscosité de la suspension

D'un point de vue macroscopique, la viscosité apparente d'une suspension est en général une fonction dépendante de la fraction volumique de particules en raison de la dissipation d'énergie occasionnée par les interactions non conservatrices entre particules et entre les particules et le fluide [68] ainsi que des interactions chimiques. On observe alors également une dépendance de la viscosité au taux de cisaillement¹⁶ entraînant un caractère fortement non-Newtonien. Les verres nucléaires n'échappent pas à ce phénomène [4] et l'on observe pour les verres de type UOx un comportement rhéofluidifiant avec deux plateaux Newtoniens à bas et haut taux de cisaillement séparés par une région en loi de puissance [7, 8]. L'importante viscosité à bas taux de cisaillement est due à la formation d'agrégats (échelle de la centaine de micromètres) entraînant une forte dissipation locale d'énergie. Ces agrégats se brisent à relatif haut taux de cisaillement [47], entraînant l'apparition du deuxième plateau Newtonien de plus faible viscosité. Ces effets rhéologiques ne seront toutefois pas pris en compte dans la modélisation car Puig et al. [7] puis Hannotin et al. [8] ont montré que les suspensions de particules de platinoïdes dans le verre présentaient de forts effets (anti-)thixotropiques avec une échelle de temps de variation de la viscosité de l'ordre de 100s, très grande devant le temps caractéristique de transport des particules dans le creuset $L/U \approx 1$ s. La prise en compte de ce phénomène nécessiterait de plus un modèle de viscosité dépendant du temps ainsi qu'un suivi Lagrangien de particules, hors d'atteinte dans notre modélisation Eulérienne. Enfin les calculs menés dans le cadre de ces travaux et présentés dans le chapitre dédié à la simulation numérique du creuset froid ont montré qu'en régime nominal de fonctionnement, seulement 5% du volume total de verre en convection se trouve à un instant donné soumis à un taux de cisaillement inférieur à 1 s^{-1} et à une température supérieure à 1000 °C , conditions nécessaires à la formation des agrégats de platinoïdes [8]. Nous utiliserons alors une viscosité effective de la suspension obtenue par mesures rhéologiques à haut taux de cisaillement.

Magnétohydrodynamique

Les couplages potentiels entre électromagnétisme et hydrodynamique sont dans notre cas négligeables :

- Influence du fluide sur l'électromagnétisme : le mouvement d'un fluide conducteur peut distordre le champ électromagnétique (convection du champ) et entre également en jeu dans la loi constitutive d'Ohm. Ces impacts sont faibles en raison d'un Reynolds magnétique faible et des hautes fréquences utilisées, respectivement :

$$R_m = \mu_0 \sigma L U \ll 1, \quad U \ll \omega L$$

- Influence de l'électromagnétisme sur le mouvement du fluide : on considérera le fluide localement électriquement neutre (malgré les variations spatiales de conductivité électrique). D'autre part, le fluide conducteur, parcouru par des courants libres dans un champ électromagnétique, est soumis aux forces de Lorentz. Ces

16. Dans toute l'étude, le taux de cisaillement est défini par $\dot{\gamma} = \sqrt{2\mathbf{d} : \mathbf{d}} = \sqrt{2d_{ij}d_{ij}}$.

forces sont toutefois négligeables devant les contraintes fluides (pression dynamique et viscosité) en raison de faibles nombres de Stuart et d'Hartmann, respectivement :

$$N = \frac{B^2 \sigma L}{\rho U} \ll 1, \quad Ha = BL \sqrt{\frac{\sigma}{\eta}} \ll 1$$

Forces électromagnétiques sur les particules

Les particules restant globalement neutres (entraînant ainsi l'absence d'électrophorèse), les seules forces électromagnétiques en jeu sont les forces de magnétophorèse et de diélectrophorèse, toutes deux négligeables en raison de faibles gradients macroscopiques d'énergie électromagnétique. On peut montrer que la déviation des particules des lignes de courant du fluide $\frac{\|\mathbf{u} - \mathbf{u}_p\|}{\|\mathbf{u}\|}$ est, respectivement pour la magnétophorèse et la diélectrophorèse, de l'ordre de :

$$\frac{B^2 d_p^2}{\eta U L \mu_0} \ll 1$$

et ¹⁷ :

$$\frac{\varepsilon_0 E^2 d_p^2}{\eta U L} \sim \left(\frac{L\omega}{c}\right)^2 \frac{B^2 d_p^2}{\eta U L \mu_0} \ll 1$$

Les forces électromagnétiques qui s'exercent sur les particules sont donc trop faibles pour les éloigner de leur comportement de traceur.

2.5 Conclusion

Les études présentées dans cette partie ont apporté plusieurs réponses concernant l'approche de modélisation des différentes physiques de l'élaboration de verre en creuset froid. L'étude du problème électromagnétique a en particulier permis de :

- Proposer une formulation compacte des équations de Maxwell, réduites spatialement à la charge à fondre ;
- Présenter une méthode d'imposition d'un champ électromagnétique externe basée sur la prescription de conditions aux limites portant sur les potentiels.

L'étude du problème thermohydraulique a quant à elle portée sur la modélisation rigoureuse du transport de l'énergie mécanique et thermique avec notamment une modélisation complète des transferts thermiques par conduction-rayonnement aux frontières de la charge de verre. En particulier, les travaux portant sur la prise en compte de la morphologie de la couche de broyat de verre séparant la fonte des parois refroidies ont permis de proposer une expression analytique du coefficient de transfert thermique. Nous nous sommes également attachés à démontrer la pertinence d'une modélisation Eulérienne du transport des particules de platinoïdes en suspension dans le verre. Il a en particulier été démontré que le terme de diffusion permettait la prise en compte de la polydispersion de la taille des particules lors de leur sédimentation. Enfin, une attention toute particulière a été portée sur la prise en compte de l'ensemble des couplages multiphysiques influençant de manière décisive l'évolution du système. Les techniques de résolution numérique des équations sont présentées dans le chapitre suivant.

17. D'après l'équation de Maxwell-Faraday 2.3, $E \sim L\omega B$.

Chapitre 3

Méthodes de simulation numérique

3.1	Schémas numériques et codes de calcul	52
3.1.1	Discrétisation spatiale	52
3.1.2	Discrétisation temporelle	54
3.1.3	Codes de calcul	54
3.2	Simulation de l'induction électromagnétique	55
3.2.1	Principe	55
3.2.2	Formulation alternative du schéma pour la résolution du potentiel scalaire	56
3.2.3	Benchmarks	58
3.3	Simulation du transport des particules	62
3.3.1	Transport 1D dans un fluide au repos	62
3.3.2	Fluide en mouvement	63
3.4	Stratégie de couplage par ségrégation	65
3.5	Conclusion	66

La complexité des équations des modèles développés et de la géométrie du domaine spatial nous pousse à résoudre ces équations par la simulation numérique. Nous présentons dans cette section les techniques de résolution utilisées, certaines déjà largement utilisées, d'autres plus originales. Nous optons pour une approche de volumes finis pour l'ensemble des physiques, particulièrement adaptée aux formulations choisies, où toute équation a été interprétée comme une équation de transport, voire de simple diffusion. La formulation en potentiels des équations de Maxwell a notamment permis la disparition de l'opérateur rotationnel, inadapté au cadre des volumes finis. De plus, ce choix permet à terme de faciliter le rassemblement des résolutions numériques des différentes physiques au sein d'un code de calcul unique utilisant un espace de mémoire vive unique, et ce sur un maillage unique, potentiellement non conforme. Avec l'avènement du calcul haute performance parallélisé, cette démarche de code de simulation et de maillage unique est aujourd'hui adoptée par des équipes de recherche de plus en plus nombreuses. Elle permet en effet de supprimer les coûts d'opérations liés à l'échange de données entre les physiques (lecture et écriture de champs, interpolations spatiales...), typiques des approches dites « 2-meshes-2-solvers ». Les travaux de Beckstein et al. [21, 24] et Lüdtke et al. [69], concernant en particulier la résolution des équations de l'électromagnétisme dans des logiciels initialement conçus pour la mécanique des fluides numérique, attestent de cette tendance.

3.1 Schémas numériques et codes de calcul

3.1.1 Discrétisation spatiale

La résolution numérique par volumes finis se base sur l'intégration sur un volume de contrôle des équations à résoudre et l'utilisation du théorème de Green-Ostrogradski pour l'approximation de ces intégrales. Le théorème de Green-Ostrogradski permet d'évaluer l'intégrale de dérivées partielles de champs sur le volume de contrôle grâce à la valeur des champs sur les faces du volume. Dans la plupart des cas, les volumes de contrôle sont les éléments du maillage et l'on discrétise les champs par leur valeur aux centres des mailles (cellules). Toute écriture de schéma de discrétisation spatiale se ramène donc à proposer une évaluation de la valeur des champs aux faces grâce aux valeurs aux centres, qui détermine alors la stabilité et la précision du schéma. Pour les termes de diffusion, on utilise un schéma aux différences finies centré (d'ordre 2) pour évaluer le champ (qui est alors un gradient) à la face. Sauf mention contraire, pour les termes d'advection, on utilise une interpolation linéaire des champs dans les cellules pour obtenir la valeur aux faces, ce qui constitue un schéma linéaire précis d'ordre deux en espace, stable sous condition de faible Péclet de maille [70]. Dans la pratique, lorsque la condition de faible Péclet de maille exige un maillage trop fin (cas des faibles diffusivités), le schéma est stabilisé par un décentrement amont (« upwinding ») et/ou on introduit une non-linéarité de type limiteur de gradient en bornant les valeurs obtenues par interpolation pour éviter l'explosion de nouveaux extrema numériques¹, ce qui entraîne un schéma d'ordre entre un et deux en espace. À titre d'exemple, nous explicitons un schéma de discrétisation d'ordre deux des termes d'advection et de diffusion (dans le cas d'un maillage conforme).

Termes d'advection

Les termes d'advection² sont de la forme générale $\nabla \cdot \mathbf{f}$, où \mathbf{f} est un champ vectoriel de coordonnées cartésiennes (f^x, f^y, f^z) . Dans le schéma final, l'évaluation de l'intégrale de ce terme sur une maille ne doit faire intervenir que les valeurs du champ \mathbf{f} aux centres des mailles. Soit \mathcal{V}_i la maille considérée (cf. figure 3.1). Sa surface est $\bigcup_k \mathcal{F}_k$, où les \mathcal{F}_k sont les faces de la maille. Une première utilisation du théorème de Green-Ostrogradski donne :

$$\int_{\mathcal{V}_i} \nabla \cdot \mathbf{f} dv = \oint_{\bigcup_k \mathcal{F}_k} \mathbf{f} \cdot \mathbf{n} ds \approx \sum_k \mathcal{F}_k \mathbf{f}_k \cdot \mathbf{n}_k$$

où \mathbf{f}_k et \mathbf{n}_k désignent respectivement la valeur du champ \mathbf{f} interpolée à la face \mathcal{F}_k et la normale à \mathcal{F}_k (sortante de la maille). Le choix du schéma intervient alors pour l'évaluation des \mathbf{f}_k . L'interpolation linéaire consiste en l'utilisation d'un développement de Taylor à l'ordre 1. En notant \mathbf{dx}_k le vecteur joignant le centre de la maille \mathcal{V}_i au centre d'une de ses faces \mathcal{F}_k , la valeur du champ extrapolée à cette face à partir de la valeur au centre de la maille amont (méthode du décentrement amont) \mathbf{f}_i est calculée par :

$$\mathbf{f}_k \approx \mathbf{f}_i + \nabla \mathbf{f}_i \cdot \mathbf{dx}_k$$

1. Le théorème de barrière d'ordre de Godunov stipule en effet qu'il n'existe pas de schéma linéaire d'ordre supérieur à un ne produisant pas de nouveaux extrema (monotone).

2. La discrétisation présentée ne s'applique pas à l'équation de continuité $\nabla \cdot \mathbf{u} = 0$ qui traduit la conservation de la masse dans le cas incompressible considéré, et qui sera prise en compte par une méthode de prédiction-corrrection.

où $\nabla \mathbf{f}_i$ est l'évaluation du gradient (tenseur d'ordre 2) du champ au centre de la maille. Cette valeur nécessite seulement le calcul des 3 composantes ∇f_i^x , ∇f_i^y et ∇f_i^z . Nous présentons ici la méthode de Green-Gauss basée sur les cellules. Avec une deuxième utilisation du théorème de Green-Ostrogradski, pour la composante ∇f_i^x par exemple :

$$\nabla f_i^x \approx \frac{1}{V(\mathcal{V}_i)} \int_{\mathcal{V}_i} \nabla f^x dv = \frac{1}{V(\mathcal{V}_i)} \oint_{\bigcup_k \mathcal{F}_k} f^x \mathbf{n}_k ds \approx \frac{1}{V(\mathcal{V}_i)} \sum_k \mathcal{F}_k f_k^x \mathbf{n}_k$$

où f_k^x est l'évaluation de la composante f^x à la face \mathcal{F}_k , cette fois obtenue simplement par moyenne arithmétique :

$$f_k^x = \frac{f_i^x + f_j^x}{2}$$

où j désigne la cellule adjacente à la cellule i par la face considérée \mathcal{F}_k (maille en aval) ;

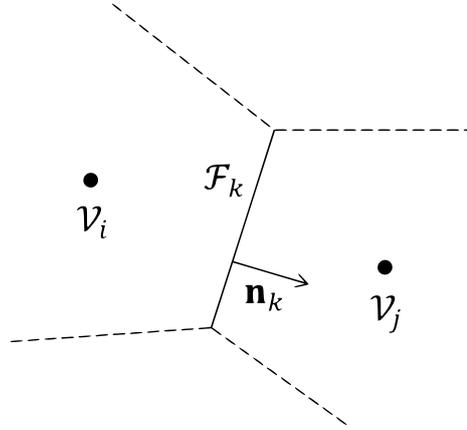


Figure 3.1 – Représentation schématique de deux mailles d'espace voisines (cas conforme)

Termes de diffusion

La forme générale des termes de diffusion est $\nabla \cdot (\Gamma \nabla f)$, où Γ et f sont des champs scalaires. Avec les mêmes notations que précédemment, l'utilisation du théorème de Green-Ostrogradski donne :

$$\int_{\mathcal{V}_i} \nabla \cdot (\Gamma \nabla f) dv = \oint_{\bigcup_k \mathcal{F}_k} \Gamma \nabla f \cdot \mathbf{n}_k ds \approx \sum_k \mathcal{F}_k \Gamma_k \nabla f_k \cdot \mathbf{n}_k$$

où Γ_k désigne la valeur du « coefficient de diffusion » à la face \mathcal{F}_k et ∇f_k désigne la valeur du gradient du champ f à la face \mathcal{F}_k . Cette fois-ci, on utilise le schéma aux différences finies centré suivant :

$$\nabla f_k \cdot \mathbf{n}_k \approx \frac{f_j - f_i}{dx}$$

où dx est la distance entre les centres des mailles i et j , séparées par la face \mathcal{F}_k . Pour des maillages non réguliers (où \mathbf{n}_k n'est pas strictement un vecteur directeur de la droite joignant les centres des cellules i et j), cette formule est corrigée par un calcul secondaire, non décrit ici. Les variations spatiales du « coefficient de diffusion » Γ pouvant être très élevées, l'interpolation de cette propriété aux faces des mailles est réalisée par moyenne harmonique au lieu de l'interpolation linéaire (moyenne arithmétique) [71, 72].

3.1.2 Discrétisation temporelle

Dans le cas de simulations instationnaires, le terme de dérivée temporelle est discrétisé par un schéma d'Euler implicite (inconditionnellement stable) ou explicite (stable sous condition de Courant-Friedrichs-Lewy) précis d'ordre un.

À titre d'exemple, nous précisons le cas d'un schéma d'Euler explicite. Soit \mathcal{A} un opérateur différentiel (d'espace), l'équation d'évolution d'un champ indifféremment scalaire ou vectoriel \mathbf{f} s'écrit de manière générale :

$$\frac{\partial \mathbf{f}}{\partial t} = \mathcal{A}(\mathbf{f})$$

Le temps est discrétisé avec un pas de temps Δt . Le schéma s'écrit alors (en notant n l'itération temporelle) :

$$\frac{\mathbf{f}^{n+1} - \mathbf{f}^n}{\Delta t} = \mathcal{A}(\mathbf{f}^n)$$

Après intégration sur une maille de contrôle \mathcal{V}_i , on obtient :

$$\mathbf{f}_i^{n+1} \approx \mathbf{f}_i^n + \frac{\Delta t}{V(\mathcal{V}_i)} \int_{\mathcal{V}_i} \mathcal{A}(\mathbf{f}^n) dv$$

où l'intégrale du terme de droite est évaluée grâce aux techniques de discrétisation spatiale décrites plus haut.

3.1.3 Codes de calcul

Hormis le cas instationnaire avec discrétisation en temps explicite (où l'avancement en temps se réduit à un calcul explicite), la discrétisation spatiale et temporelle d'une équation se ramène à un système numérique (linéaire ou non) discret, résolu par des méthodes numériques classiques (méthodes multigrilles, algorithme itératif de Gauss-Seidel...). Même si le système obtenu peut être linéaire, les méthodes itératives sont préférées à la résolution directe, trop coûteuse. Une grande partie des codes de calcul sont développés en langage C++ [73] grâce à la bibliothèque open source OPENFOAM®. Certains codes (associés à des problèmes d'évolution 1D, à des problèmes aux valeurs propres ou encore à des problématiques de traitement du signal) sont développés avec le logiciel de calcul numérique open source SCILAB® qui offre des opérations vectorielles optimisées. Enfin, les simulations numériques nécessitant un plus grand travail de prétraitement (CAO, génération de maillages non réguliers...) et de post-traitement (évaluation d'un grand nombre de grandeurs intégrées, visualisation...) sont effectuées sous la suite de logiciels propriétaires d'ANSYS (ANSYS FLUENT®, ANSYS MESHING®...), l'outil User-Defined Function (UDF) permettant d'augmenter les modèles existants par l'écriture de nouveaux codes de calcul et routines en langage C.

Dans le cadre des équations de Navier-Stokes, il existe une difficulté supplémentaire due à la présence dans l'équation de la quantité de mouvement du terme de pression qui ne possède pas d'équation d'évolution propre mais qui est nécessaire au maintien de la conservation de la masse. En général, cette difficulté est dépassée par la mise en place de méthodes itératives. Nous utilisons ici la méthode de prédiction-corrrection SIMPLE pour les champs \mathbf{u} et p dans les cas stationnaires et PISO dans les cas instationnaires. Les

couplages avec l'équation de la température sont résolus par ségrégation, comme exposé dans la section 3.4. La résolution numérique du problème thermohydraulique est déjà implémenté dans les codes de calcul existants, qui sont précis et stables, et n'a donc pas fait l'objet de développements particuliers. Seul l'ajout de termes sources de quantité de mouvement (liés à la rétroaction des particules sur le fluide et à l'effet du bullage d'air au sein du fluide) ont été ajoutés de manière explicite.

Lorsque la demande en capacité de calcul et/ou le besoin en mémoire vive est élevé, les codes sont parallélisés soit grâce à la bibliothèque open source OPENMP, permettant de répartir les tâches de calcul sur une architecture à mémoire partagée, soit grâce à la bibliothèque open source OPEN MPI, permettant l'exécution de processus parallèles en utilisant une architecture de mémoire distribuée. L'avantage de l'architecture à mémoire distribuée réside dans le fait qu'il n'y a pas de limite a priori sur le nombre de processus tandis que l'architecture à mémoire partagée est limitée par le nombre de cœurs des CPUs. Les travaux présentés ont en particulier bénéficié des moyens de calcul du Centre de Calcul Recherche et Technologie (CCRT) et notamment du supercalculateur COBALT.

Les sections suivantes ont en particulier pour but de détailler les développements réalisés relatifs à certains des codes volumes finis mentionnés dans le tableau 3.1. Les développements des codes K-OF, SP-SCI et ST-SCI sont quant à eux évoqués plus tard, lors de leur utilisation.

Tableau 3.1 – Liste des codes de calcul développés lors de cette étude. La première partie du tableau est relative aux codes volumes finis qui, sauf mention contraire, permettent des simulations tridimensionnelles

Référence	Problème	Langage/logiciel/bibliothèque	Cœurs
AV-OF	Induction	C++/OPENFOAM®	1
AV-AF	Induction	C/ANSYS FLUENT®	20
C-OF	Transport de particules	C++/OPENFOAM®	1
C-AF	Transport de particules	C/ANSYS FLUENT®	1
C-SCI	Transport de particules (1D)	SCILAB®	1
K-OF	Conductivité effective	C++/OPENFOAM®	64
SP-SCI	Analyse spectrale d'image	C/SCILAB®	1
ST-SCI	Stabilité linéaire	SCILAB®	1

3.2 Simulation de l'induction électromagnétique

3.2.1 Principe

Dans le cas du régime harmonique, pour l'écriture des codes de calcul AV-OF et AV-AF, la formulation complexe du problème 2.11-2.12 doit être explicitée en utilisant la décomposition algébrique des amplitudes complexes des potentiels :

$$\underline{\mathbf{A}} = \mathbf{A}_r + i\mathbf{A}_i$$

$$\underline{V} = V_r + iV_i$$

Les potentiels étant couplés, plusieurs itérations de résolution sont nécessaires, et ce au sein de chaque pas de temps s'il s'agit d'une simulation couplée instationnaire. Le critère de convergence est la stabilisation de la puissance Joule totale dissipée dans le domaine P_J . Dans les problèmes d'induction électromagnétique (régime harmonique), les courants de Foucault induits dans le système par le champ magnétique externe imposé s'opposent aux effets de ce champ (loi de modération de Lenz) en générant un champ magnétique en opposition de phase. Lorsque le paramètre d'écran est élevé, le champ magnétique variable, créé par cette première génération de courants de Foucault, induit lui-même des courants de deuxième génération générant un champ magnétique variable modérateur cette fois-ci en phase avec le champ externe, et ainsi de suite. Ce phénomène physique se traduit numériquement par l'apparition d'oscillations lors du processus de convergence. Au cours des itérations de couplage, les courants électriques sont donc sous-relaxés (coefficient de sous-relaxation $\alpha \in]0; 1[$) pour faciliter la convergence, notamment hors du régime de grande peau électromagnétique (paramètre d'écran élevé). Avec l'utilisation de la jauge de Coulomb, nous proposons l'algorithme suivant (en notant k l'itération de couplage) :

$$\begin{array}{l}
 \text{résoudre } \left[\nabla \cdot \left(f_\sigma \left(\nabla V_r^{k+1} - \mathbf{A}_i^k \right) \right) = 0 \right] \rightarrow V_r^{k+1} \\
 (1 - \alpha) \mathbf{j}_r^k + \alpha \left(-f_\sigma \left(\nabla V_r^{k+1} - \mathbf{A}_i^k \right) \right) \rightarrow \mathbf{j}_r^{k+1} \\
 \text{résoudre } \left[\nabla^2 \mathbf{A}_r^{k+1} + R_\omega \mathbf{j}_r^{k+1} = 0 \right] \rightarrow \mathbf{A}_r^{k+1} \\
 \text{résoudre } \left[\nabla \cdot \left(f_\sigma \left(\nabla V_i^{k+1} + \mathbf{A}_r^{k+1} \right) \right) = 0 \right] \rightarrow V_i^{k+1} \\
 (1 - \alpha) \mathbf{j}_i^k + \alpha \left(-f_\sigma \left(\nabla V_i^{k+1} + \mathbf{A}_r^{k+1} \right) \right) \rightarrow \mathbf{j}_i^{k+1} \\
 \text{résoudre } \left[\nabla^2 \mathbf{A}_i^{k+1} + R_\omega \mathbf{j}_i^{k+1} = 0 \right] \rightarrow \mathbf{A}_i^{k+1} \\
 -\frac{1}{2} \int_\Omega \left(\mathbf{j}_r^{k+1} \cdot \left(\nabla V_r^{k+1} - \mathbf{A}_i^{k+1} \right) + \mathbf{j}_i^{k+1} \cdot \left(\nabla V_i^{k+1} + \mathbf{A}_r^{k+1} \right) \right) dv \rightarrow P_J^{k+1} \\
 \text{si } \left[\frac{|P_J^{k+1} - P_J^k|}{P_J^{k+1}} \leq tol \right] \text{ alors fin sinon continuer}
 \end{array}$$

Cette formulation présente l'avantage de se ramener à la résolution de quatre équations associées à des problèmes de diffusion avec terme source explicite, pour lesquels un schéma d'ordre deux en espace est précis et stable. La tolérance sur l'erreur relative de la puissance Joule sera $tol = 10^{-5}$.

3.2.2 Formulation alternative du schéma pour la résolution du potentiel scalaire

L'équation du potentiel scalaire (à potentiel vecteur explicite) à résoudre 2.11 s'écrit :

$$\nabla \cdot (f_\sigma (\nabla V)) = -i (\nabla f_\sigma \cdot \underline{\mathbf{A}} + f_\sigma \nabla \cdot \underline{\mathbf{A}})$$

En l'état, lors de la résolution numérique, cette formulation nécessite à la fois l'évaluation par moyenne harmonique de la conductivité électrique aux faces des mailles pour le terme de diffusion du potentiel scalaire, ainsi que l'évaluation du gradient de la conductivité entrant en jeu dans le terme source explicite. La conductivité pouvant varier fortement, cette dernière évaluation donne des valeurs numériques très élevées, s'avère peu

précise et cause alors des instabilités numériques lors de la résolution du système couplé. Nous proposons dans cette section un nouveau schéma numérique permettant d'atténuer ces problématiques. En développant le terme de diffusion présent dans la formule précédente, on obtient la forme strictement équivalente :

$$\nabla^2 \underline{V} = -\nabla \ln(f_\sigma) \cdot \nabla \underline{V} - i (\nabla \ln(f_\sigma) \cdot \underline{\mathbf{A}} + \nabla \cdot \underline{\mathbf{A}}) \quad (3.1)$$

qui s'interprète comme une équation de diffusion pour le potentiel scalaire avec un « coefficient de diffusion » unitaire (ne nécessitant donc aucune interpolation) et un terme source (terme de droite) faisant intervenir le gradient du logarithme de la conductivité électrique. Pour $f_\sigma > 1$, l'évaluation du gradient du logarithme de la conductivité électrique donne alors des valeurs numériques plus faibles pour le terme source. Il est possible de montrer que la discrétisation spatiale de cette formulation conduit à un schéma numérique précis d'ordre deux proche du schéma classique. L'ordre deux découle naturellement du fait que des méthodes de discrétisation spatiale d'ordre deux sont utilisées pour tous les termes de 3.1. Nous tenons toutefois à démontrer cette précision en appliquant les méthodes de discrétisation à la formulation alternative proposée puis en appliquant au schéma obtenu la méthode de l'équation modifiée [74]. En plus de mettre en lumière le schéma numérique final, à comparer au schéma classique, cette démonstration nous permet d'évaluer le terme d'erreur du schéma.

Démonstration. La démonstration est restreinte au cas de l'équation de diffusion générale sans terme source :

$$\nabla \cdot (\Gamma \nabla f) = 0 \quad (3.2)$$

pour laquelle notre formulation alternative s'écrit :

$$\nabla^2 f = -\nabla \ln(\Gamma) \cdot \nabla f \quad (3.3)$$

Nous explicitons alors le schéma issu de la discrétisation spatiale pour la résolution du problème de diffusion sur un domaine 1D maillé régulièrement. Trois cellules successives $i-1$, i et $i+1$, de taille Δx , sont considérées. En utilisant la méthode de Green-Gauss basée sur les cellules pour la discrétisation des gradients du membre de droite de 3.3, on obtient le système linéaire :

$$f_i = f_{i-1} \left(\frac{1}{2} - \frac{1}{8} \ln \left(\frac{\Gamma_{i+1}}{\Gamma_{i-1}} \right) \right) + f_{i+1} \left(\frac{1}{2} + \frac{1}{8} \ln \left(\frac{\Gamma_{i+1}}{\Gamma_{i-1}} \right) \right)$$

À titre de comparaison, dans le cas de la formulation classique 3.2 avec schéma aux différences finies centré et moyenne harmonique de la conductivité aux faces, le système linéaire final s'écrit :

$$f_i = f_{i-1} \left(\frac{1}{1 + \frac{\Gamma_{i+1}(\Gamma_i + \Gamma_{i-1})}{\Gamma_{i-1}(\Gamma_i + \Gamma_{i+1})}} \right) + f_{i+1} \left(\frac{1}{1 + \frac{\Gamma_{i-1}(\Gamma_i + \Gamma_{i+1})}{\Gamma_{i+1}(\Gamma_i + \Gamma_{i-1})}} \right)$$

Dans les deux cas, f_i est bien un barycentre des valeurs du champ f dans les deux cellules voisines. En supposant f et Γ régulières, solutions du problème discrétisé et en notant x l'abscisse du centre de la cellule i , l'utilisation des développements de Taylor dans le schéma numérique alternatif entraîne :

$$\partial_x(\Gamma \partial_x f)(x) \frac{\Delta x^2}{2\Gamma(x)} + e(x) \frac{\Delta x^4}{2\Gamma(x)} = 0$$

où le terme d'erreur s'écrit :

$$e(x) = \frac{1}{6} \left(\partial_{xxx}^3 f \partial_x \Gamma + \partial_x f \partial_{xxx}^3 \Gamma \right) + \frac{1}{2} \partial_{xx}^2 f \partial_{xx}^2 \Gamma + \frac{1}{3\Gamma(x)^2} \partial_x f (\partial_x \Gamma)^3 + \frac{\Gamma(x)}{12} \partial_{xxxx}^4 f + O(\Delta x)$$

ce qui montre que f et Γ sont solutions de l'équation de diffusion modifiée :

$$\partial_x(\Gamma \partial_x f)(x) + e(x) \Delta x^2 = 0$$

Le schéma est donc bien précis d'ordre deux en espace. \square

Dans le cas d'une conductivité non-uniforme, le terme d'erreur présente des dérivées paires et impaires du champ f , si bien que le schéma proposé peut présenter à la fois un comportement numérique diffusif et dispersif [74]. On notera toutefois que dans les zones de conductivité uniforme, le schéma devient purement diffusif ($e(x) \sim \Gamma(x) \partial_{xxxx}^4 f$). La conductivité électrique étant généralement une fonction discontinue de l'espace, notamment à l'interface entre différents matériaux, nous comparons le comportement du schéma alternatif à celui du schéma classique en comparant la valeur du poids attribué à la cellule amont pour un choc prescrit du coefficient de diffusion (cf. figure 3.2) :

$$\Gamma_{i-1} = R, \Gamma_{i+1} = 1 \text{ et } \Gamma_i = 1 \text{ ou } R$$

Nous obtenons bien deux schémas très proches. Cette formulation alternative a été utilisée dans le code AV-AF, permettant une stabilisation de ce dernier. Plusieurs schémas de discrétisation peuvent être testés et comparés en modifiant simplement la méthode d'évaluation du gradient du logarithme de la conductivité. Des méthodes de moindres carrés basée sur les cellules ou de Green-Gauss basée sur les nœuds semblent alors donner les meilleurs résultats mais n'ont pas été décrites ici, la seconde n'ayant en particulier pas d'analogue 1D.

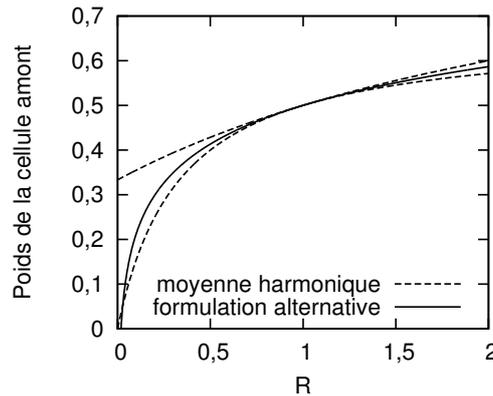


Figure 3.2 – Comparaison du poids barycentrique de la cellule amont pour le schéma à moyenne harmonique et le schéma proposé

3.2.3 Benchmarks

Les benchmarks réalisés, qui consistent en la comparaison des résultats de simulation avec un code existant ou un résultat analytique dans le cas d'une géométrie simple, ont plusieurs objectifs :

- Vérifier la bonne implémentation, la précision et la stabilité des schémas numériques utilisés pour la simulation du problème électromagnétique ;
- Vérifier la précision et l'efficacité de la méthode d'imposition de champs électromagnétiques externes par les conditions aux limites sur les potentiels ;
- Évaluer le biais systématiques introduit par l'absence de modélisation des éventuels internes métalliques baignant dans la charge soumise à l'induction.

Cas analytique : puissance Joule dissipée dans une sphère soumise à un champ magnétique uniforme

Nous nous intéressons ici à la puissance Joule dissipée dans une boule conductrice plongée au centre d'un milieu cubique de taille caractéristique L (arête) et de relative faible conductivité (prise comme référence) et soumise à un champ magnétique externe uniforme harmonique. Nous rappelons que dans l'ensemble des simulations numériques présentées dans ces travaux, un unique domaine est considéré. Ainsi, dans ce cas benchmark, la présence de la boule conductrice est simplement signifiée par un champ de conductivité électrique adimensionnée prescrit :

$$\sigma(\mathbf{x}) = \begin{cases} R & \text{si } \|\mathbf{x}\| < \frac{d_a}{2} \\ 1 & \text{sinon} \end{cases}$$

où l'on note \mathbf{x} le vecteur position adimensionné (origine au centre du domaine), $R \gg 1$ la valeur adimensionnée de la conductivité électrique de la boule et d_a son diamètre adimensionné. Dans le cadre des hypothèses réalisées, la puissance Joule totale adimensionnée dissipée dans la boule, en négligeant tout développement de courants dans le milieu englobant, s'écrit [75] :

$$P_J = \frac{\pi d_a^3}{8R_\omega} \operatorname{Im} \left(\frac{j_2 \left((1+i)\sqrt{R'_\omega/2} \right)}{j_0 \left((1+i)\sqrt{R'_\omega/2} \right)} \right)$$

où $R'_\omega = \frac{1}{4}d_a^2 R_\omega R$ est le paramètre d'écran de la boule et j_n désigne la fonction sphérique de Bessel de première espèce et d'ordre n . Les relations asymptotiques respectivement pour le régime de grande et de fine peau électromagnétique, sont données par :

$$\operatorname{Im} \left(\frac{j_2 \left((1+i)\sqrt{R'_\omega/2} \right)}{j_0 \left((1+i)\sqrt{R'_\omega/2} \right)} \right) \begin{cases} \underset{R'_\omega \rightarrow 0^+}{=} \frac{R'_\omega}{15} + o(R'_\omega) \\ \underset{R'_\omega \rightarrow +\infty}{=} \frac{3}{\sqrt{2R'_\omega}} + o\left(\frac{1}{\sqrt{R'_\omega}}\right) \end{cases}$$

La figure 3.3(a) présente les résultats obtenus lors d'une simulation tridimensionnelle (code AV-OF) pour différentes valeurs de conductivité $R \in \llbracket 1; 9 \rrbracket \times 10^7$, pour un diamètre $d_a = 0,4$ et un paramètre d'écran $R_\omega = 10^{-5}$. Le maillage a été raffiné près de l'interface de la sphère (cf. figure 3.3(b)) afin de conserver un nombre satisfaisant de mailles dans l'épaisseur de peau électromagnétique $\delta_a(R)$:

$$\delta_a(R) = \sqrt{\frac{2}{RR_\omega}} \geq 4,7 \cdot 10^{-2} \gg \Delta x_{min} \approx 4,2 \cdot 10^{-3}$$

Nous observons un très bon accord avec la solution analytique, avec toutefois un faible écart à haut paramètre d'écran, dû à la concentration des courants induits près de la surface de la boule, nécessitant un maillage de plus en plus fin pour maintenir une bonne précision. La condition de chauffage optimal s'écrit :

$$R'_\omega \approx 10 \Leftrightarrow d_a \approx 4,5\delta_a \quad (3.4)$$

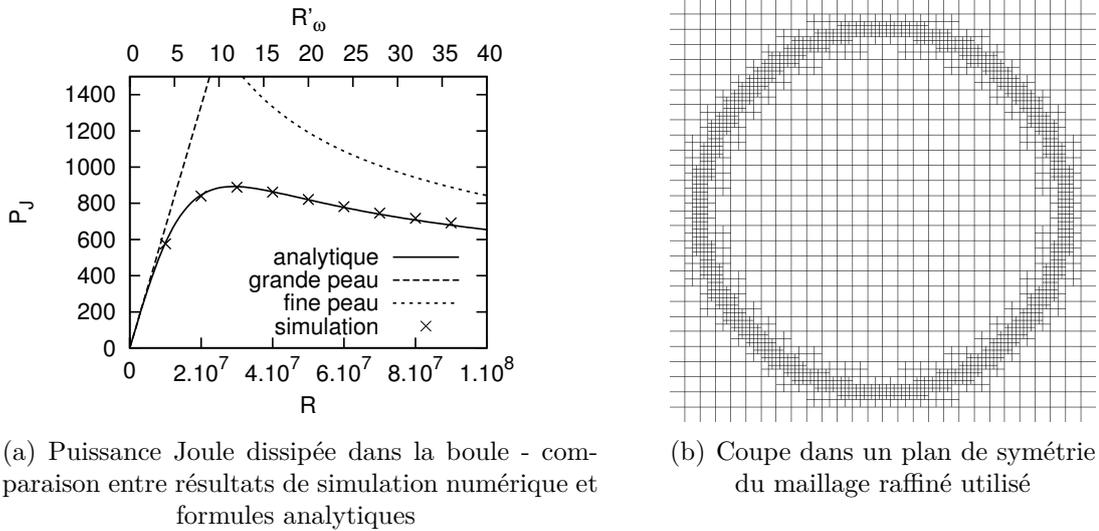


Figure 3.3 – Boule conductrice soumise à un champ magnétique externe uniforme harmonique - simulation numérique et résultats analytiques

Comparaison à un code existant : puissance Joule dissipée dans un cylindre présentant une inclusion

Nous réalisons une autre comparaison entre le code AV-AF et le logiciel propriétaire FLUX® 3D pour une géométrie et des paramètres proches de ceux rencontrés pour une charge de verre en creuset froid. Nous considérons pour cela un domaine Ω , représenté sur la figure 3.4 constitué d'un cylindrique de rayon $R = 0,325$ m, de hauteur 0,4 m et de conductivité uniforme $\sigma = 10$ S/m (conductivité typique du verre autour de 1000°C) muni d'une cavité sphérique vide de rayon 5 cm. Dans le code AV-AF, la surface de la cavité sphérique constitue une frontière du domaine simulé : le problème électromagnétique n'est donc pas résolu dans le volume de la cavité. Dans FLUX® 3D, le volume de la cavité est au contraire simulé et soit laissé vide, soit il contient une boule de rayon 4 cm, de conductivité uniforme et égale à 10^7 S/m (conductivité typique d'un métal comme l'acier), traitée grâce à une formulation en impédance de surface [20].

Le système est soumis à un champ magnétique harmonique, de pulsation $\omega = 1,8 \cdot 10^6$ rad/s. Dans la simulation numérique réalisée sous FLUX® 3D, ce champ est créé par une nappe cylindrique de courant orthoradial de rayon 1 m et de hauteur 2 m englobant le domaine Ω , produisant au niveau de ce domaine un champ quasi-uniforme et vertical. L'intensité du courant dans la nappe est fixée en valeur efficace à $I = 2 \cdot 10^3$ A. Dans le code AV-AF, la condition aux limites de Dirichlet pour le potentiel vecteur sur la face latérale du domaine conducteur $\underline{\mathbf{A}} = A_\theta \mathbf{e}_\theta$ est imposée, où $A_\theta = 2 \cdot 10^{-4}$ T·m est choisi tel que la même puissance Joule globale de 42 kW soit dissipée dans Ω dans les deux codes de calcul. Une condition de Neumann homogène est appliquée sur toutes les autres frontières (cavité sphérique, base et surface supérieure du cylindre). La simulation électromagnétique est alors limitée au domaine Ω .

On considère deux chemins sur lesquels la densité de puissance Joule p_J est évaluée : la droite passant par les centres du cylindre et de l'inclusion sphérique \mathcal{L}_1 ainsi que le demi-équateur de l'inclusion sphérique \mathcal{L}_2 . Sur la figure 3.5, les profils de densité de puissance Joule sont comparés entre eux et, sur \mathcal{L}_1 , à la solution analytique sans inclusion sous hypothèse de grande peau électromagnétique, donnée par :

$$p_J = \frac{\sigma}{2} \left(\frac{A_\theta \omega x}{R} \right)^2$$

Un très bon accord est obtenu entre les différentes situations et les différents codes, ce qui montre que la technique d'imposition de champ externe par les conditions aux limites donne de bons résultats, et que, même si la présence de métal est négligée, le biais sur la puissance Joule dissipée reste relativement modéré et localisé. L'erreur maximale sur la densité de puissance Joule est en effet d'environ 30 % et reste localisée à la surface même de l'inclusion sphérique, en regard de la paroi cylindrique de la charge. L'augmentation locale de la puissance dissipée dans le matériau au niveau de l'inclusion par rapport au cas analytique sans inclusion est due à la déviation des courants induits comme observé sur la figure 3.6.

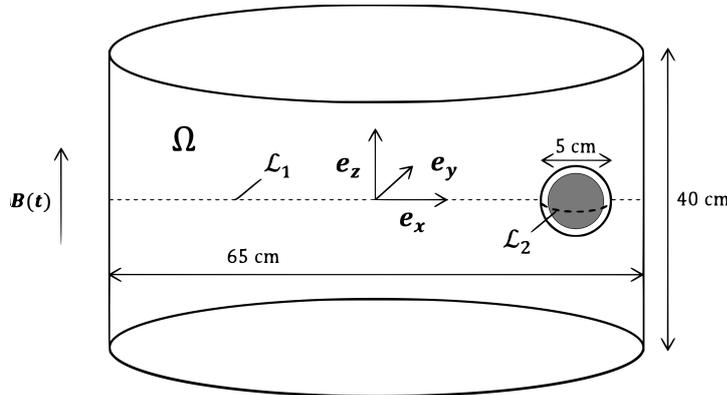


Figure 3.4 – Configuration physique étudiée - un cylindre conducteur présentant une cavité sphérique est plongé dans un champ magnétique harmonique

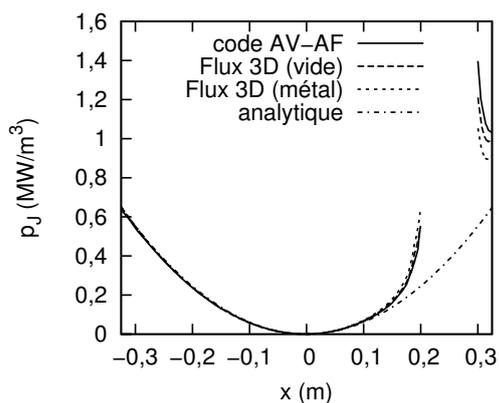
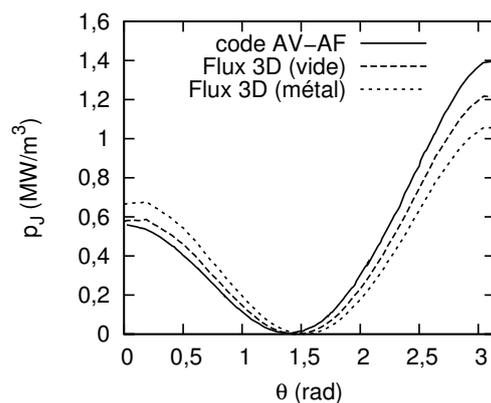

 (a) Sur \mathcal{L}_1 , paramétré par l'abscisse x

 (b) Sur \mathcal{L}_2 , paramétré par la longitude θ du système de coordonnées sphériques de la cavité

Figure 3.5 – Comparaison des profils de densité de puissance Joule dissipée dans un cylindre conducteur présentant une cavité sphérique isolée - code développé AV-AF et FLUX® 3D (avec et sans boule métallique)

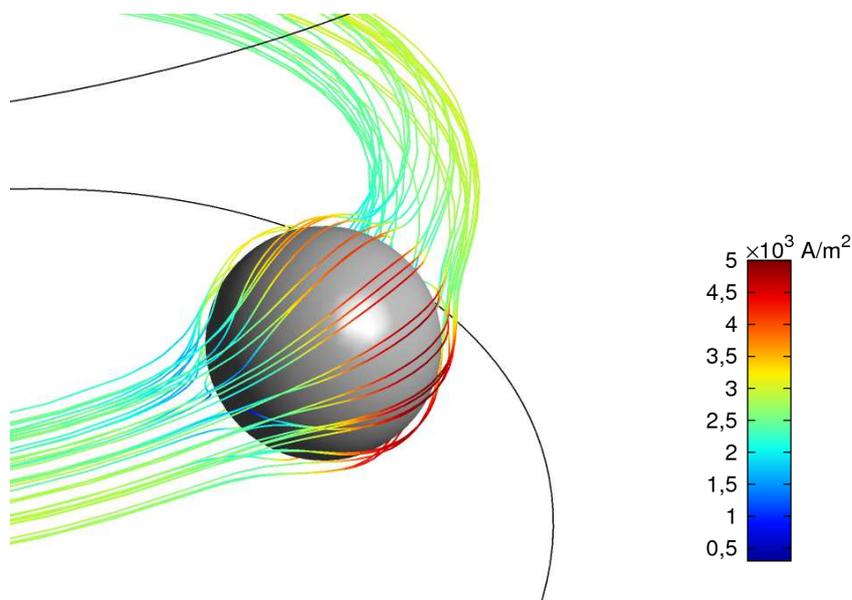


Figure 3.6 – Courants induits en quadrature de phase avec le champ magnétique imposé - observation de la déviation due à la présence d'une inclusion isolée électriquement de la charge

3.3 Simulation du transport des particules

3.3.1 Transport 1D dans un fluide au repos

Un code de simulation 1D (C-SCI) a été développé afin de résoudre l'équation conservative d'évolution de la fraction volumique 2.40 sans mouvement macroscopique du fluide suspendant. Il sera utilisé par la suite pour les comparaisons expérimentales de profils de sédimentation de particules de platinoïdes dans des verres nucléaires soumis à un traitement thermique sans agitation. Nous considérons la sédimentation de particules dans un domaine de hauteur L dans le cas $\mathbf{u} = 0$. Par convention, on choisit l'orientation de

la pesanteur $\hat{\mathbf{g}} = -\mathbf{e}_y$. La solution est recherchée sous la forme $C(t, y)$ et vérifie alors l'équation conservative issue de 2.45 :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial y} \left(\frac{-1}{f_\nu} \left(\frac{\partial C}{\partial y} + \mathcal{N} C \left(1 - \frac{C}{C_a} \right)^\alpha \right) \right) = 0$$

La condition aux limites s'écrit quant à elle :

$$\frac{\partial C}{\partial y} + \mathcal{N} C \left(1 - \frac{C}{C_a} \right)^\alpha = 0 \text{ en } y = 0, 1$$

Le domaine est maillé régulièrement avec le pas d'espace adimensionné Δy . Nous optons pour un schéma de discrétisation spatiale centré, stable sous condition de faible Péclet de maille ($Pe_{\Delta y} = \mathcal{N} \Delta y$) et l'on utilise un schéma d'Euler explicite d'ordre un pour l'intégration temporelle, avec un pas de temps Δt suffisamment faible pour assurer le respect de la condition CFL et donc la stabilité du schéma. Le schéma final (précis d'ordre un en temps et deux en espace) est donc le schéma FTCS (Forward-Time Central-Space) [76]. La figure 3.7 montre le profil de concentration au cours du temps pour $\mathcal{N} = 20$ et une fraction volumique initiale uniforme de 1 %, dans le cas isotherme non entravé ($f_\nu = 1$ et $\alpha = 0$). On distingue les trois zones typiques d'un processus de sédimentation : la zone de fluide claire en haut du domaine, la zone de sédimentation uniforme ainsi que la couche de compactage en fond de domaine. Le front de sédimentation se déplace à la vitesse de Stokes adimensionnée \mathcal{N} .

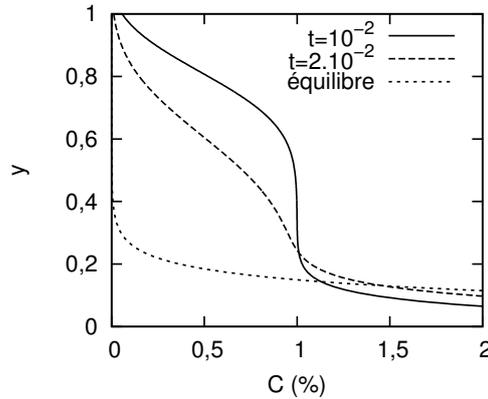


Figure 3.7 – Profils de sédimentation 1D obtenus par simulation pour $\mathcal{N} = 20$, $C(t = 0) = 10^{-2}$ et différents horizons de temps

3.3.2 Fluide en mouvement

Discrétisation du terme d'advection

Lorsque le terme d'advection par le fluide est présent, apparaît une problématique d'ordre numérique qui réside dans la faible diffusivité des particules. Nous utilisons dans le code C-AF, comme présenté plus haut, un schéma d'ordre supérieur à un pour la discrétisation du terme d'advection par le fluide, afin d'éviter une trop grande diffusion numérique typique du schéma d'ordre un (qui serait alors dominante). L'utilisation d'un schéma d'ordre deux entraîne l'apparition d'une condition de stabilité de faible Péclet de maille (en notant Δx la dimension caractéristique d'une maille) :

$$Pe_{\Delta x} = \frac{U \Delta x}{\kappa_0} = ReSc \frac{\Delta x}{L}$$

Cette condition est généralement atteinte par un raffinement du maillage (diminution de Δx), mais la trop faible diffusivité des particules de platinoïdes demanderait une augmentation déraisonnable du nombre de mailles dans les cas tridimensionnels. Afin de pallier cette difficulté, nous proposons ici une technique de décentrement amont « hybride » du terme d'advection-sédimentation apparaissant dans l'équation de transport 2.40, qui s'écrit sous la forme :

$$\nabla \cdot (\Psi(\mathbf{u}, T, C)C)$$

où :

$$\Psi(\mathbf{u}, T, C) = \mathbf{u} + \tau(T)\hat{\mathbf{g}} \left(1 - \frac{C}{C_a}\right)^\alpha$$

Comme mentionné plus haut, l'écriture d'un schéma consiste en l'évaluation des champs aux faces. Or le terme de flux à l'intérieur de l'opérateur divergence est un produit des deux champs C et $\Psi(\mathbf{u}, T, C)$. Le schéma proposé est alors le suivant :

- $\Psi(\mathbf{u}, T, C)$ est évalué à la face grâce à un schéma centré (d'ordre 2) ;
- C est évalué à la face grâce à un schéma du second ordre décentré amont soit une interpolation linéaire à la face à partir de la valeur au centre de la maille située en amont. En notant \mathbf{n} la normale à la face sortante de la maille courante, si $\Psi(\mathbf{u}, T, C) \cdot \mathbf{n} > 0$, la maille amont est la maille courante, sinon, la maille amont est la maille voisine.

Utiliser la limitation de gradient ou augmenter l'ordre du schéma de discrétisation spatiale du terme d'advection peut également être efficace dans certains cas. Si le schéma d'ordre deux est classiquement dispersif, un schéma d'ordre trois est diffusif et limite donc en partie l'apparition de nouveaux extrema (ondelettes numériques non physiques). Ainsi, dans les cas où la diffusivité des particules est négligée ($Sc \rightarrow +\infty$), on utilisera un schéma d'ordre trois avec limiteur « Superbee » pour l'advection des particules, notamment dans le code C-OF.

Accélération de la cinétique de sédimentation individuelle

Une seconde difficulté, d'ordre physique, réside dans la grande variabilité des échelles de temps caractéristiques des phénomènes hydrodynamique, thermique et de transport par sédimentation des particules. Le rapport d'échelle de temps d'advection par le fluide (de la quantité de mouvement, de l'énergie et des particules) et de sédimentation individuelle des particules est donné par le facteur adimensionné :

$$\frac{\tau_0}{U} = \frac{\mathcal{N}}{ReSc} \approx 10^{-7}$$

Comme nous le détaillerons par la suite, les phénomènes d'agglomération par sédimentation individuelle en fond de four pour des particules de taille nominale et non agrégées n'apparaissent donc qu'à très long terme, voire sont inexistantes. De tels temps physiques sont impossibles à atteindre lors d'une simulation numérique instationnaire. En multipliant la vitesse terminale de sédimentation de Stokes et la diffusivité des particules par $\chi \geq 1$, on montre que l'équation de transport des particules 2.40 devient :

$$\frac{DC}{D(\chi t)} + \tau_0 \nabla \cdot \left(f_\nu^{-1} C \left(1 - \frac{C}{C_a} \right)^\alpha \hat{\mathbf{g}} \right) = \kappa_0 \nabla \cdot (f_\nu^{-1} \nabla C)$$

Cette manipulation, utilisée dans le code C-AF, correspond donc à une accélération de la dynamique de transport par sédimentation individuelle d'un facteur χ . Du point de vue physique, deux phénomènes peuvent être à l'origine d'une telle accélération :

- Comme $\tau_0, \kappa_0 \propto d_p^2$, cela correspond à une augmentation de la taille des particules d'un facteur $\sqrt{\chi}$;
- Comme démontré lors de l'étude de la sédimentation des particules, l'accélération peut être due à une forte agrégation, avec $\chi = C_a \left(\frac{d_a}{d_p} \right)^2$.

Du point de vue numérique, cette accélération permet la stabilisation du schéma numérique due à un nouveau Péclet de maille valant $\chi^{-1} Pe_{\Delta x}$.

Imposition de la conservation de la masse totale de particules

Le modèle de transport de particules est accompagné de conditions aux bords de type Neumann inhomogène stipulant l'imperméabilité des frontières du domaine. Ainsi, aucune valeur de référence pour la fraction volumique n'est présente dans les équations à résoudre et seul l'état initial (en général une fraction volumique homogène égale à la fraction volumique moyenne \bar{C}) fixe la valeur numérique du champ C au cours du calcul. Selon les processus de convergence, et notamment lors du calcul d'un état stationnaire avec le code C-AF, « l'héritage » de l'état initial peut être perdu et il est nécessaire d'ajuster la valeur du champ C pour assurer que la fraction volumique moyenne dans le domaine reste identique à sa valeur initiale. C'est pourquoi, lors des itérations externes, le champ C se voit appliquer la transformation linéaire suivante, permettant le respect de la condition de conservation de la masse de particules :

$$C \mapsto C \frac{\bar{C} V(\Omega)}{\int_\Omega C dv}$$

En se rapprochant d'un état convergé, cette transformation tend vers l'identité.

3.4 Stratégie de couplage par ségrégation

Le couplage entre les différentes physiques est géré par une méthode de ségrégation : les équations régissant les différents champs sont résolues l'une après l'autre. Lors de la résolution d'une physique, si un champ relatif à une autre physique est nécessaire, l'unique champ stocké en mémoire est utilisé (méthode « on-the-fly »). En plus des itérations dites « internes » associées aux équations de Navier-Stokes (résolution du couplage vitesse-pression) et aux équations de Maxwell (résolution du couplage entre potentiels), dans le cas d'une simulation stationnaire ou instationnaire avec schéma temporel implicite, l'ensemble des physiques est résolu plusieurs fois lors d'itérations dites « externes », jusqu'à convergence de l'ensemble des physiques et de leurs couplages. La figure 3.8 schématise la stratégie de couplage présentée, dans les cas stationnaire et instationnaires.

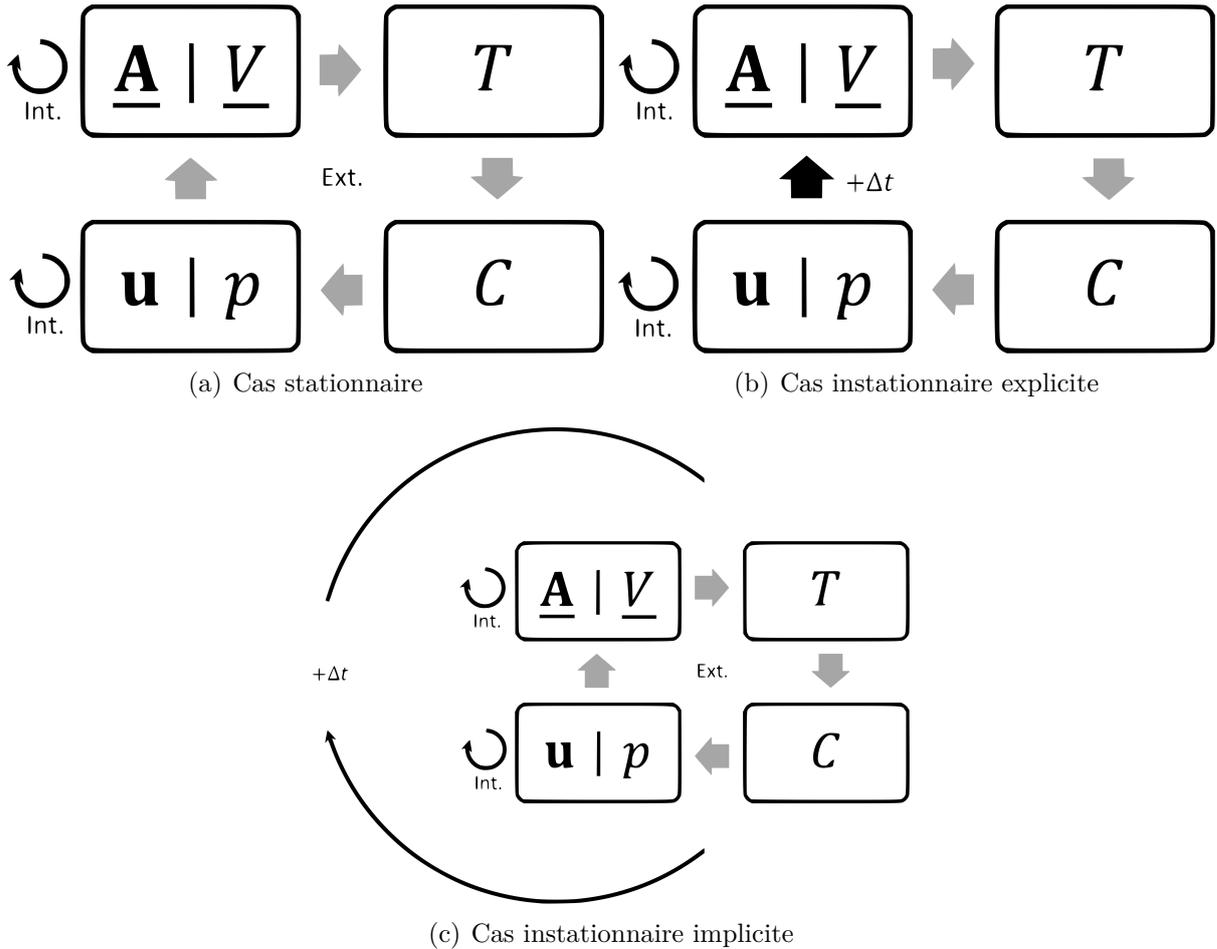


Figure 3.8 – Stratégie de couplage par ségrégation

3.5 Conclusion

Après une brève description des techniques numériques de type volumes finis et des choix de langages et architectures pour leur codage, nous avons présenté dans ce chapitre plusieurs techniques originales de résolution numérique des équations régissant le problème multiphysique, implémentées dans les codes développés pour les besoins de l'étude. Parmi celles-ci, les techniques relatives à la résolution du problème d'induction électromagnétique :

- Une stratégie de résolution du couplage entre potentiels électromagnétiques ;
- Une nouvelle formulation du schéma de résolution de l'équation du potentiel scalaire électrique, permettant de limiter les problématiques de stabilité de couplage liées aux fortes variations spatiales de conductivité électrique ;
- Une analyse quantitative des biais introduits par les choix de modélisation (imposition de champs par les conditions aux limites, absence des internes métalliques).

Les techniques relatives à la résolution du transport des particules au sein d'une fonte de verre agitée ou non ont également fait l'objet d'une attention toute particulière. Les principales difficultés résidant dans leur très faible diffusivité ainsi que dans l'absence de référence de concentration a priori. Enfin, nous avons explicité la méthode de couplage par ségrégation utilisée pour la résolution des couplages multiphysiques, mise en œuvre indifféremment pour des simulations stationnaires et instationnaires implicites ou explicites.

L'ensemble des méthodes a spécifiquement été choisi pour permettre l'intégration de tous les codes de calcul au sein d'un même outil de résolution efficace, stable, précis et rapide. Comme nous le montrerons par la suite, cette approche permet notamment de bénéficier d'une accélération en latence quasi-optimale lors de l'augmentation du nombre de cœurs de calcul, en maximisant la fraction de code parallélisé d'une part puis, d'autre part, en permettant un bon équilibrage des charges de calcul et en limitant les temps de communication entre cœurs.

Chapitre 4

Induction électromagnétique dans une suspension

4.1	Conductivité électrique effective de milieux hétérogènes di-	
	phasiques	72
4.1.1	Hypothèses	72
4.1.2	Formulation générale	73
4.1.3	Modèles analytiques de conductivité effective	75
4.1.4	Benchmark	77
4.2	Étude d'un verre chargé en particules de platinoïdes	78
4.2.1	Acquisition et prétraitement de mesures par microtomographie	78
4.2.2	Résultats des simulations numériques	83
4.2.3	Prise en compte d'une conductivité du verre dépendante de la température	84
4.3	Pertinence de l'utilisation d'une conductivité électrique ef-	
	fective dans le calcul de la puissance Joule	87
4.4	Conclusion	89

La nature du matériau à l'échelle microscopique, telle que décrite en introduction de ces travaux (voir section 1.2.2), pose le problème de son comportement vis-à-vis de l'induction électromagnétique. Les verres nucléaires considérés se présentant sous la forme d'une suspension de particules de platinoïdes de forte conductivité électrique en comparaison à la matrice de verre homogène, les courants induits par la présence d'un champ magnétique harmonique sont a priori différents, en localisation et en intensité, de ceux qui se développeraient dans un matériau homogène. Tout comme pour la modélisation mécanique de cette suspension, il est aujourd'hui impossible de considérer une modélisation prenant en compte le matériau sous sa forme hétérogène, où chaque particule serait représentée, sous la forme d'une inclusion fortement conductrice et où l'induction électromagnétique y serait résolue. Nous utiliserons alors la technique dite d'homogénéisation, où le matériau est considéré comme une phase homogène dont les propriétés physico-chimiques sont supposées uniquement fonction de la fraction volumique en inclusions et d'éventuelles grandeurs intensives thermodynamiques (comme la température). Dans le cadre de l'induction électromagnétique et sous l'ensemble des hypothèses réalisées, nous avons montré que la seule propriété d'intérêt est la conductivité électrique. Le but de cette section est donc de proposer un modèle de conductivité électrique effective du matériau

dépendant du taux de platinoïdes ainsi que de sa température. Nous nous attacherons également à montrer que l'utilisation de cette technique d'homogénéisation est pertinente pour l'évaluation précise de la densité de puissance Joule dissipée dans le matériau en énonçant des critères de séparation d'échelle permettant de fixer les limites de validité de cette modélisation par homogénéisation.

Cette étude fait suite à de nombreux travaux expérimentaux concernant la mesure et la modélisation de la conductivité effective de verres contenant des particules de platinoïdes. Il est important de noter que, dans toutes ces études, la morphologie des particules est très variable. Citons en particulier les travaux relatifs aux résistances à couche épaisse à base d'oxyde de ruthénium et de verre [77, 78] et ceux relatifs aux verres nucléaires de Krause et Luckscheiter [79, 80], Simonnet et al. [5] et Pflieger et al. [81]. Ces travaux se basent principalement sur la mesure de la conductivité électrique d'échantillons de verre par impédancemétrie et mettent en exergue plusieurs phénomènes :

- Pour toute concentration en platinoïdes, une augmentation de la température entraîne une augmentation de la conductivité ;
- Pour toute température, l'augmentation de la fraction volumique en particules de platinoïdes augmente la conductivité effective ;
- L'existence d'un phénomène de percolation c'est-à-dire la mise en place d'un chemin continu de particules associé à une augmentation soudaine de la conductivité électrique de la suspension lors du dépassement d'une fraction volumique en particules de platinoïdes critique appelé « seuil de percolation ».

Ils sont toutefois en général limités par la connaissance seulement approximative de la fraction volumique en particules des échantillons soumis à la mesure ainsi que par le maintien quasi-impossible d'un état de dispersion satisfaisant (agrégation et décantation lors de l'élaboration des échantillons en laboratoire). Contrairement à eux, l'obtention de valeurs de conductivité effective est ici assurée par la résolution numérique de courants électriques à travers des échantillons de verre numérisés par microtomographie aux rayons X. En plus des résultats de conductivité, l'imagerie des échantillons permet une analyse et un contrôle préalable de leur teneur et de l'état de dispersion des particules.

Lors de l'élaboration de verre en creuset froid, la fréquence du champ magnétique imposé doit être ajustée afin de respecter la condition de chauffage optimal de la charge (relation donnée entre taille de la charge et épaisseur de peau). Techniquement, le circuit générateur oscillant doit être adapté pour que cette fréquence optimale corresponde à sa fréquence de résonance. Ainsi, en raison d'une différence de plusieurs ordres de grandeur de conductivité électrique (et donc d'épaisseur de peau), il est dans les faits impossible d'assurer le chauffage d'une masse de verre possédant un taux de platinoïdes qui dépasserait le seuil de percolation avec une adaptation du générateur correspondant à un verre relativement peu chargé en platinoïdes. Or, les essais récents réalisés au CEA concernant la vitrification des déchets UOx ont montré que des taux de charge moyens de plus de 3 % de platinoïdes en volume pouvaient être atteints sans altération du procédé ni modification de l'adaptation du générateur. Ce taux dépasse largement les préconisations des travaux de Simonnet et al. [5] qui observait un seuil de percolation électrique de l'ordre de 1 % et ces essais récents attestent donc d'un seuil de percolation électrique au moins supérieur à 3 %. Les travaux qui suivent ont en particulier pour but d'évaluer précisément le seuil de percolation mais également la dépendance de la conductivité au taux de platinoïdes avant ce seuil de percolation, non abordé jusqu'à présent.

Nous développons dans un premier temps une formulation analytique de la conductivité effective d'un matériau diphasique dont la répartition spatiale des inclusions conductrices est connue. Les conductivités des deux matériaux sont supposées connues. L'expression développée n'est pas utilisable en l'état dans une simulation où le matériau serait considéré comme homogène car elle présuppose la connaissance de la répartition spatiale des particules qui n'est justement pas modélisée. Nous présentons alors les différents modèles de conductivité effective développés jusqu'alors, proposant des expressions analytiques fonctions de la fraction volumique en inclusions conductrices, supposées rendre compte d'un grand nombre de répartitions spatiales appartenant à une classe d'agencement (en série, en parallèle ou plus complexes). Notre choix portera sur un modèle de percolation que nous raccorderons (mathématiquement parlant) de manière continue. Nous nous attacherons alors à déterminer les paramètres de ce modèle par la résolution numérique de la formulation analytique de conductivité effective sur un grand nombre de répartitions spatiales de particules obtenues grâce à l'imagerie d'un échantillon de verre par microtomographie aux rayons X. Enfin, le modèle sera augmenté afin de prendre en compte la forte dépendance à la température de la conductivité de la matrice de verre, d'origine ionique.

4.1 Conductivité électrique effective de milieux hétérogènes diphasiques

Nous nous intéressons dans cette partie à la détermination par simulation à petite échelle de la conductivité électrique effective d'une suspension de particules de platinoïdes, présentant une conductivité électrique (conductivité électronique de type métal ou semi-conducteur) importante, dans un verre chaud conducteur ionique. Nous visons ainsi l'intégration d'une loi de conductivité dépendante de la fraction volumique locale en platinoïdes à la simulation macroscopique développée. Cette démarche de simulation multi-échelle se base sur la théorie de l'homogénéisation ou « upscaling ». Mottram [82] a proposé une revue des différents modèles analytiques (théoriques et semi-empiriques) permettant de calculer la conductivité effective de matériaux hétérogènes diphasiques. Wang et al. [83] ont proposé une revue récente plus étendue de l'ensemble des modèles analytiques et exposent les principes de la méthode numérique utilisée dans cette section. Les modèles de percolation sont détaillés dans [84–86]. L'homogénéisation est présentée de manière extensive dans [86].

4.1.1 Hypothèses

Nous supposons que le contact entre les phases est parfait et l'effet tunnel est négligé. Les milieux considérés sont isotropes (ce qui sera démontré par la suite), entraînant un tenseur de conductivité effective scalaire.

Bien que chaque phase (matrice et particules) soit localement très faiblement polarisable aux fréquences considérées, chaque particule peut subir une polarisation de Maxwell-Wagner qui, à relativement basse fréquence, pourrait se traduire par l'apparition de courants de polarisation (relaxation diélectrique de Maxwell-Wagner-Sillars [87]). Dans ce cas, les courants observés à grande échelle sont de deux natures. D'une part se développent des courants de conduction assurés par le déplacement des charges libres (électrons ou ions) dans les matériaux, considérés ohmiques :

$$\mathbf{j} = \sigma \mathbf{E}$$

et d'autre part les courants de polarisation mésoscopiques de Maxwell-Wagner-Sillars (se rajoutant à la polarisation du vide et à la polarisation diélectrique intrinsèque des matériaux), en général déphasés :

$$\mathbf{j}_p = i\omega\varepsilon_0\varepsilon_r \mathbf{E}$$

où $\varepsilon_r = \varepsilon' - i\varepsilon''$ est la permittivité relative complexe. Les courants totaux sont alors reliés au champ électrique par la relation :

$$\mathbf{j}_t = \mathbf{j} + \mathbf{j}_p = \underline{\sigma} \mathbf{E}$$

où l'on définit la conductivité complexe :

$$\underline{\sigma} = \sigma + i\omega\varepsilon_0\varepsilon_r = (\sigma + \omega\varepsilon_0\varepsilon'') + i\omega\varepsilon_0\varepsilon'$$

Des expériences d'impédancemétrie permettent de mesurer cette conductivité complexe $\underline{\sigma}$ en fonction de la fréquence et de la température du matériau pour une concentration en particules donnée. Des mesures ont été réalisées sur un simulant de verre nucléaire

de type UOx chargé en particules de platinoïdes à l'aide d'un montage à quatre électrodes. Comme observé sur la figure 4.1 (le comportement de l'angle de perte à faible fréquence est dû à la polarisation des électrodes de mesure [88]), quelle que soit la température (en-dessous de la température de transition vitreuse et donc a fortiori au-dessus, où la conductivité ionique augmente considérablement), ces mesures montrent que :

$$\sigma_{AC} = \text{Re } \underline{\sigma} \text{ indépendant de } \omega$$

$$\tan \delta = \frac{\text{Re } \underline{\sigma}}{\text{Im } \underline{\sigma}} = \frac{\sigma + \omega \varepsilon_0 \varepsilon''}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon'} \gg 1$$

où $\tan \delta$ est la tangente de l'angle de perte, ce qui entraîne :

$$\sigma \gg \omega \varepsilon_0 \varepsilon'$$

$$\sigma \gg \omega \varepsilon_0 \varepsilon''$$

Nous supposons donc que les courants de polarisation sont faibles devant les courants de conduction et donc que le matériau reste non-polarisable à l'échelle macroscopique. La conductivité effective est ainsi réelle et indépendante de la fréquence et peut donc être déterminée par des simulations de conduction de courant stationnaires.

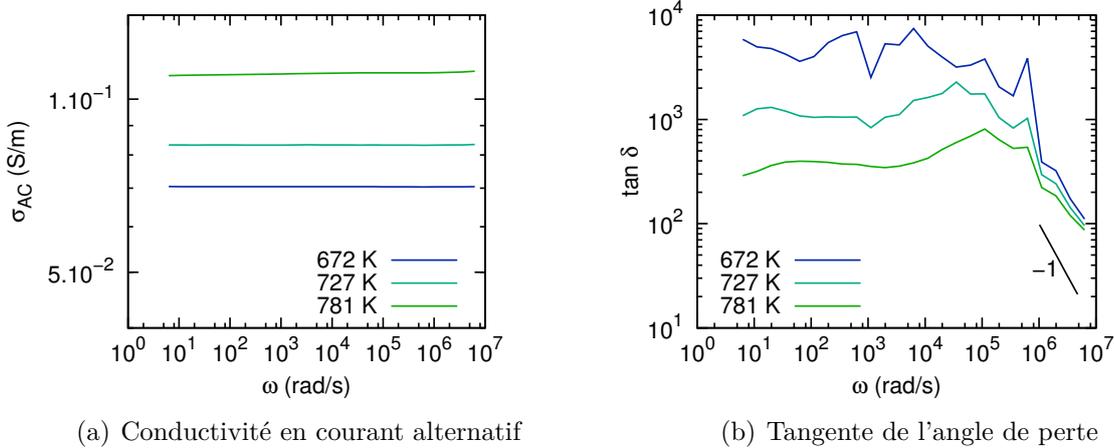


Figure 4.1 – Propriétés électriques à basse température d'un simulant de verre nucléaire de type UOx chargé en particules de platinoïdes, obtenues par impédancemétrie à quatre électrodes

4.1.2 Formulation générale

Nous dérivons dans cette section une formule analytique de la conductivité effective d'un milieu hétérogène diphasique lorsque la distribution spatiale des inclusions est parfaitement connue. Par souci de généralité, les conductivités évoquées dans cette partie seront notées k car elles peuvent décrire indifféremment une conductivité électrique ou thermique.

Calcul de la conductivité effective d'un milieu hétérogène à géométrie connue

Le milieu hétérogène binaire est modélisé par une fonction indicatrice de phase ϕ valant 0 dans les zones occupées par la matrice (continue) de conductivité k_m et 1 dans les inclusions (discontinues) de conductivité k_i . La conductivité dépend alors de ϕ selon :

$$k(\phi) = \phi k_i + (1 - \phi) k_m$$

On considère un cube de matériau \mathcal{V} (de normale sortante \mathbf{n}) de côté L , auquel est imposé un champ constant f_{min} sur sa face inférieure notée \mathcal{S} et f_{max} sur sa face supérieure notée \mathcal{S}' . Une condition de Neumann homogène est imposée sur les faces latérales. Comme montré en particulier dans le cas électromagnétique (équation 2.10), le problème se réduit à la résolution de l'équation générale :

$$\nabla \cdot (k(\phi) \nabla f) = 0$$

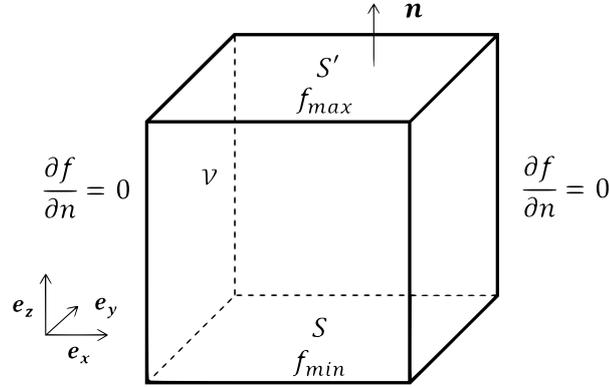


Figure 4.2 – Domaine matériel considéré pour le calcul de conductivité effective

Dans le cas où l'on assimile le matériau à une phase homogène de conductivité effective k_e , le champ f solution est directement donné par :

$$f = f_{min} + z \frac{f_{max} - f_{min}}{L}$$

La conductivité effective du matériau hétérogène k_e se calcule alors en identifiant des grandeurs intégrées du cas inhomogène et homogène effectif. L'identification du flux à travers la surface \mathcal{S} entraîne par exemple :

$$\begin{aligned} k_e L^2 \frac{(f_{max} - f_{min})}{L} &= - \int_{\mathcal{S}} k(\phi) \nabla f \cdot \mathbf{n} ds \\ \Rightarrow k_e &= \frac{-1}{(f_{max} - f_{min}) L} \int_{\mathcal{S}} k(\phi) \nabla f \cdot \mathbf{n} ds \end{aligned}$$

De manière équivalente, il est également possible d'identifier l'analogie de la puissance dissipée par effet Joule dans le cas électromagnétique stationnaire :

$$\begin{aligned} k_e L^3 \left(\frac{f_{max} - f_{min}}{L} \right)^2 &= \int_{\mathcal{V}} k(\phi) \|\nabla f\|^2 dv \\ \Rightarrow k_e &= \frac{1}{(f_{max} - f_{min})^2 L} \int_{\mathcal{V}} k(\phi) \|\nabla f\|^2 dv \end{aligned}$$

Démonstration. Ces deux formules sont strictement équivalentes. En effet, grâce au théorème de Green-Ostrogradski :

$$\begin{aligned} \int_{\mathcal{S}} k(\phi) \nabla f \cdot \mathbf{n} ds + \int_{\mathcal{S}'} k(\phi) \nabla f \cdot \mathbf{n} ds &= \int_{\mathcal{V}} \nabla \cdot (k(\phi) \nabla f) dv = 0 \\ \Rightarrow \int_{\mathcal{S}'} k(\phi) \nabla f \cdot \mathbf{n} ds &= - \int_{\mathcal{S}} k(\phi) \nabla f \cdot \mathbf{n} ds \end{aligned}$$

qui entraîne, en intégrant par parties :

$$\begin{aligned} \int_{\mathcal{V}} k(\phi) \nabla f \cdot \nabla f dv &= \int_{\mathcal{S}} f k(\phi) \nabla f \cdot \mathbf{n} ds + \int_{\mathcal{S}'} f k(\phi) \nabla f \cdot \mathbf{n} ds - \int_{\mathcal{V}} f \nabla \cdot (k(\phi) \nabla f) dv \\ &= -(f_{max} - f_{min}) \int_{\mathcal{S}} k(\phi) \nabla f \cdot \mathbf{n} ds \end{aligned}$$

□

Adimensionnement et expression finale

On définit le rapport des conductivités $R = \frac{k_i}{k_m}$ et la fonction adimensionnée de conductivité :

$$f_k(\phi, R) = \frac{k}{k_m} = 1 + \phi(R - 1)$$

L'échelle de longueur est L et le champ f est adimensionné par la transformation $f \mapsto \frac{f - f_{min}}{f_{max} - f_{min}}$. La conductivité effective s'obtient alors par :

$$\frac{k_e}{k_m} = \int_{\mathcal{V}} f_k(\phi) \|\nabla f\|^2 dv = - \int_{\mathcal{S}} f_k(\phi) \nabla f \cdot \mathbf{n} ds \quad (4.1)$$

où f vérifie :

$$\nabla \cdot (f_k(\phi) \nabla f) = 0 \quad (4.2)$$

avec pour conditions aux limites :

$$f = 0 \text{ sur } \mathcal{S}, \quad f = 1 \text{ sur } \mathcal{S}', \quad \frac{\partial f}{\partial n} = 0 \text{ partout ailleurs}$$

La fraction volumique en inclusions dans le domaine s'obtient par :

$$C = \int_{\mathcal{V}} \phi dv \quad (4.3)$$

4.1.3 Modèles analytiques de conductivité effective

Nous développons dans cette partie un modèle de percolation permettant de rendre compte de l'augmentation subite de conductivité lorsque la fraction volumique en inclusions conductrices dépasse une valeur critique appelée seuil de percolation C_p . Dans les modèles de percolation, le comportement est décrit grâce à l'introduction d'exposants critiques s et t , la conductivité effective du milieu se mettant alors sous la forme [84–86] :

$$\frac{k_e}{k_m} = \begin{cases} \left(\frac{C_p - C}{C_p}\right)^{-s} & \text{si } C < C_p \\ R \left(\frac{C - C_p}{1 - C_p}\right)^t & \text{si } C > C_p \\ R^{\frac{s}{t+s}} & \text{si } C = C_p \end{cases}, \text{ où } R = \frac{k_i}{k_m}$$

avec, a priori, $1 \leq t \leq 2$. Les paramètres t , s et C_p sont liés aux caractéristiques géométriques du milieu diphasique [85].

Cette expression n'est pas continue au seuil de percolation. Plusieurs études, dont Clerc et al. propose une revue [85], ont montré que le comportement de la conductivité effective près du seuil de percolation devait être décrit grâce à l'introduction de fonctions d'échelle Φ_{\pm} telles que :

$$\frac{k_e}{k_m} = R|C - C_p|^t \Phi_{\pm} \left(\frac{1}{R|C - C_p|^{t+s}} \right)$$

où Φ_- et Φ_+ sont les fonctions d'échelles utilisées respectivement sous et au-dessus du seuil de percolation. Nous proposons dans cette étude un raccordement continu, dit C^0 , du modèle de percolation classique :

$$\frac{k_e}{k_m} = \begin{cases} \left(\frac{C_p - C + CR^{-\frac{1}{t+s}}}{C_p} \right)^{-s} & \text{si } C < C_p \\ R \left(\frac{C - C_p + (1 - C)R^{-\frac{1}{t+s}}}{1 - C_p} \right)^t & \text{si } C > C_p \end{cases}$$

qui assure en particulier le respect de la relation suivante décrivant la conductivité théorique au seuil de percolation [89] :

$$\frac{k_e}{k_m}(C = C_p) = R^{\frac{s}{t+s}}$$

Ce modèle raccordé peut être augmenté vers un modèle C^1 avec la condition de dérivée continue à la percolation (les trois paramètres t , s et C_p ne sont alors plus indépendants) :

$$C_p = \frac{s}{t + s}$$

Dans le cas C^1 , les fonctions d'échelle correspondantes sont :

$$\begin{aligned} \Phi_-(x) &= x \left(\frac{t+s}{s} \left(1 - R^{-\frac{1}{t+s}} \right) + x^{\frac{1}{t+s}} \right)^{-s} \\ \Phi_+(x) &= \left(\frac{t+s}{t} \left(1 - R^{-\frac{1}{t+s}} \right) + x^{\frac{1}{t+s}} \right)^t \end{aligned}$$

Ces fonctions d'échelles ainsi que la condition de dérivée continue satisfont des propriétés élémentaires nécessaires [85, 89] :

- $\Phi_-(x) \underset{x \rightarrow 0^+}{\sim} x$ et $\Phi_+(x) \underset{x \rightarrow 0^+}{\sim} cst > 0$;
- $\Phi_{\pm}(x) \underset{|x| \rightarrow +\infty}{\sim} x^{\frac{t}{t+s}}$, ce qui assure $\frac{k_e}{k_m}(C = C_p) = R^{\frac{s}{t+s}} = R^{C_p}$ (formule géométrique) ;

- Dans le cas 1D où les exposants critiques sont $s = 1$ et $t = 0$, on a bien $C_p = 1$ et la formule exacte de l'agencement en séries :

$$\frac{k_e}{k_m} = R\Phi_- \left(\frac{1}{R(1-C)} \right) = \frac{1}{1+C(1/R-1)}$$

- Dans le cas de réciprocité (cas 2D par exemple) où les exposants critiques vérifient $s = t$, on a bien $C_p = \frac{1}{2}$, $\frac{k_e}{k_m}(C = C_p) = \sqrt{R}$ et la condition :

$$\Phi_-(x)\Phi_+(x) = x$$

qui assure la condition de réciprocité explicitée dans [85, 90].

La largeur de la région critique est $\delta C \sim R^{-\frac{1}{t+s}}$. De nombreux modèles de conductivité effective existent. Quelques-uns sont reportés sur la figure 4.3. Nous avons montré que la formule d'ordre un associée à l'agencement en séries était un cas particulier du modèle de percolation C^1 . Nous montrons également que d'autres modèles peuvent être interprétés comme des cas particuliers du modèle de percolation proposé :

- L'agencement parallèle est le dual de l'agencement séries, et s'obtient avec les exposants critiques $s = 0$ et $t = 1$, qui entraîne $C_p = 0$ (dans l'agencement parallèle, un chemin conducteur existe dès que la fraction volumique en inclusions est non nulle). En effet, dans ce cas :

$$\Phi_+(x) = \left(1 - \frac{1}{R}\right) + \frac{1}{x}$$

et :

$$\frac{k_e}{k_m} = RC\Phi_+ \left(\frac{1}{RC} \right) = 1 + C(R-1)$$

- Le modèle géométrique est le cas limite $s \rightarrow +\infty$. On montre dans ce cas que :

$$\frac{k_e}{k_m} = R^C$$

Nous montrerons par la suite que le modèle de percolation C^0 permet une bonne représentation de la conductivité effective d'un verre nucléaire chargé en particules de platinoïdes.

4.1.4 Benchmark

La résolution numérique du problème de conduction (code K-OF, basé sur le schéma de discrétisation spatiale déjà présenté) revient à la résolution d'une équation de diffusion sans terme source. Le maillage est raffiné près des interfaces entre inclusions conductrices et matrice. Bien que le problème à résoudre ne présente qu'un seul champ inconnu f , plusieurs itérations sont nécessaires lorsque le maillage est non conforme (après raffinement) ou lorsque la résolution est parallélisée sur plusieurs cœurs de calcul, les processus échangeant leurs valeurs aux bords à chaque itération. Le critère de convergence est la stabilisation de la valeur de conductivité effective k_e/k_m . La méthode présentée est testée et validée par la comparaison de ses résultats avec des cas particuliers de champ de phase ϕ dont la conductivité effective peut être obtenue analytiquement :

- Agencement en parallèle : $\phi = 1$ si $x < C$, 0 sinon ;

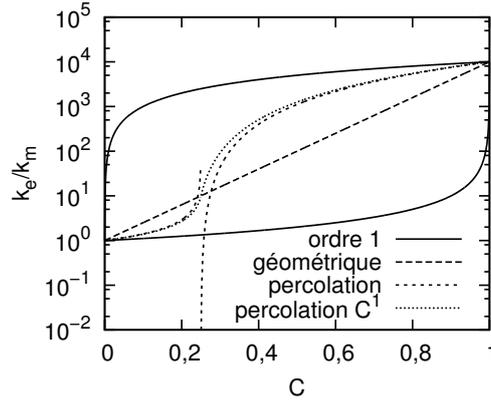


Figure 4.3 – Quelques modèles de conductivité effective fonction de la fraction volumique en inclusions pour les paramètres $R = 10^4$, $C_p = 0,25$, $t = 2$ et $s = 2/3$ - les modèles sont détaillés dans [84–86]

- Agencement en séries : $\phi = 1$ si $z < C$, 0 sinon ;
- Champ exponentiel : $\phi = \frac{\exp(\beta z) - 1}{R - 1}$, $\beta < \ln(R)$.

Les résultats sont rassemblés dans le tableau 4.1 et montrent un excellent accord entre conductivité effective calculée et attendue.

Tableau 4.1 – Benchmark du code de calcul de la conductivité effective de milieux hétérogènes K-OF avec un rapport de conductivités $R = 10^3$

Cas	k_e/k_m (th.)	Paramètre	k_e/k_m (num.)	Erreur %
Parallèle	$1 + C(R - 1)$	$C = 0,4$	400,6	0
Séries	$\frac{1}{1 + C(1/R - 1)}$	$C = 0,4$	1,66556	0
Exponentiel	$\frac{\beta}{1 - \exp(-\beta)}$	$\beta = 4$	4,07470	$1,6 \cdot 10^{-3}$

4.2 Étude d'un verre chargé en particules de platinoïdes

4.2.1 Acquisition et prétraitement de mesures par microtomographie

La détermination de modèles de conductivité effective de matériaux diphasiques réels se base sur l'acquisition de leur structure par diverses techniques d'imagerie. Dans notre cas, le champ de phase ϕ décrivant la répartition spatiale des particules de platinoïdes dans un simulant de verre nucléaire est issu de mesures par microtomographie aux rayons X réalisées¹ sur une ligne de l'European Synchrotron Radiation Facility (ESRF, ligne ID19). Ces mesures se présentent sous la forme d'un champ scalaire échantillonné spatialement sur un maillage régulier composé de voxels cubiques d'arête $0,16 \pm 0,01 \mu\text{m}$ (précision relative de 6 % sur l'évaluation des longueurs). L'utilisation de ce type d'imagerie pour

1. Acquisitions réalisées par la société NOVITOM.

la détermination précise de propriétés de transport comme la conductivité électrique a déjà montré de très bons résultats en accord avec les mesures expérimentales [91]. Les valeurs v en chaque voxel du champ sont obtenues par une transformation affine des mesures brutes de tomographie (sensible à la densité des phases), projetant ces valeurs dans l'intervalle $\llbracket 0; 255 \rrbracket$ (encodées sur 8 bits). Pour chacun des échantillons, présentés par la suite, les mesures ont porté sur un cylindre inscrit dans un cube d'arête 0,32 mm. Elles se présentent donc sous la forme de $2000 \times 2000 \times 2000$ valeurs de voxels enregistrées dans un fichier unique dont la taille est de $8 \text{ Go} \approx 7,45 \text{ Gio}$.

Description des échantillons

Trois échantillons de verre de type UOx ont été tomographiés, présentant des teneurs moyennes en platinoïdes différentes. L'échantillon 1 est un prélèvement de verre réalisé par trempe lors de son élaboration en creuset froid à l'échelle du pilote industriel. L'analyse chimique par ICP-AES² de cet échantillon 1 indique une fraction volumique en particules de 2,5 %. L'échantillon 2, quant à lui, est un prélèvement dans la couche sédimentée (à une altitude d'environ 7 mm) issue de la sédimentation de verre de type UOx pendant 211 h (expérience de sédimentation sans agitation présentée dans la section 5.2.2), dont la figure 4.4 regroupe plusieurs vues. La fraction volumique initiale moyenne en platinoïdes de cet échantillon avant sédimentation était de 0,7 %. Comme les résultats obtenus par LIBS³ de la section 5.2.2 le montrent, les particules se retrouvent dans une couche sédimentée mesurant environ un cinquième de la hauteur initiale de l'échantillon. Une estimation de la fraction volumique moyenne en particules dans cette couche est donc 3 – 4 %. Enfin, l'échantillon 3 est un prélèvement réalisé sur un amas centimétrique de platinoïdes retrouvé après élaboration du verre en creuset froid dans des conditions de fonctionnement du procédé dégradées permettant l'apparition de telles structures.

Isotropie et Volume Élémentaire Représentatif

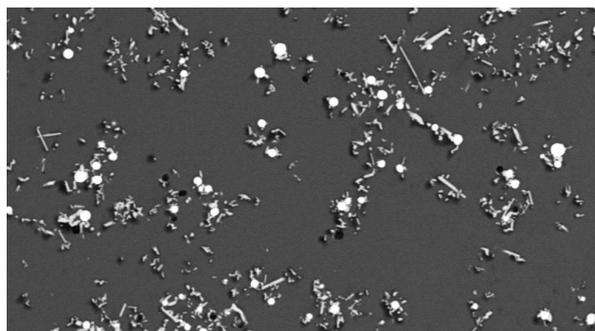
Préalablement au calcul de la conductivité effective des échantillons numérisés, nous portons notre attention sur deux interrogations typiques dans ce type d'étude d'homogénéisation :

- La structure microscopique est-elle isotrope ? Il est en effet nécessaire de vérifier s'il existe ou non à cette échelle une orientation préférentielle des particules. Nous avons, lors du développement analytique de la méthode de calcul, fait l'hypothèse d'un milieu isotrope, entraînant un tenseur de conductivité effective scalaire ;
- Quelle doit-être la taille du domaine cubique de simulation numérique ? Cette question renvoie à la détermination du Volume Élémentaire Représentatif (VER).

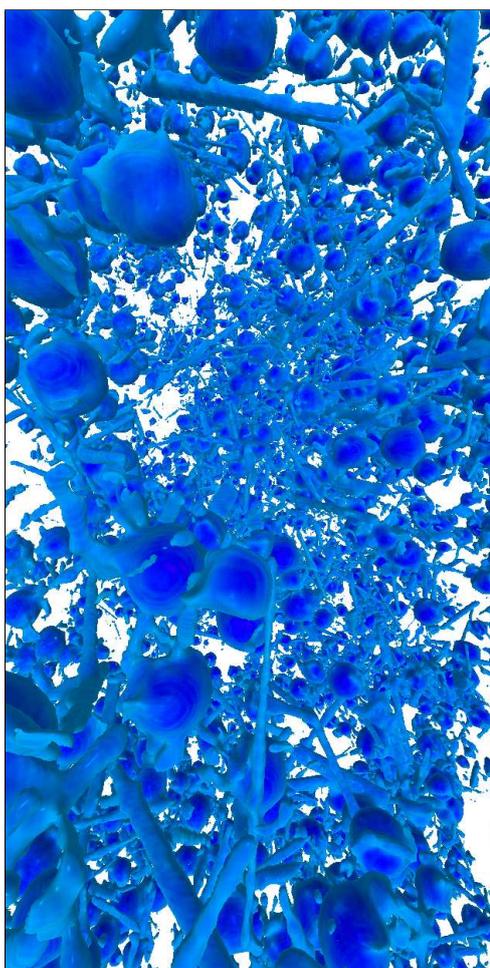
Nous proposons ici de répondre à ces interrogations grâce à l'analyse spectrale des données issues de la microtomographie, en calculant une estimation de la Densité Spectrale de Puissance (DSP) spatiale bidimensionnelle de coupes d'un échantillon tomographié. Les coupes utilisées sont des sections carrées de côté $l = 164 \mu\text{m}$ (contenant 1024×1024 pixels), pris comme longueur de référence pour l'adimensionnement du problème. La DSP P est définie comme l'espérance du carré du module de la transformée de Fourier du signal traité divisée par sa taille (au sens strict, lorsque sa taille tend vers l'infini), et est donc révélatrice de son contenu fréquentiel :

2. Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectroscopy

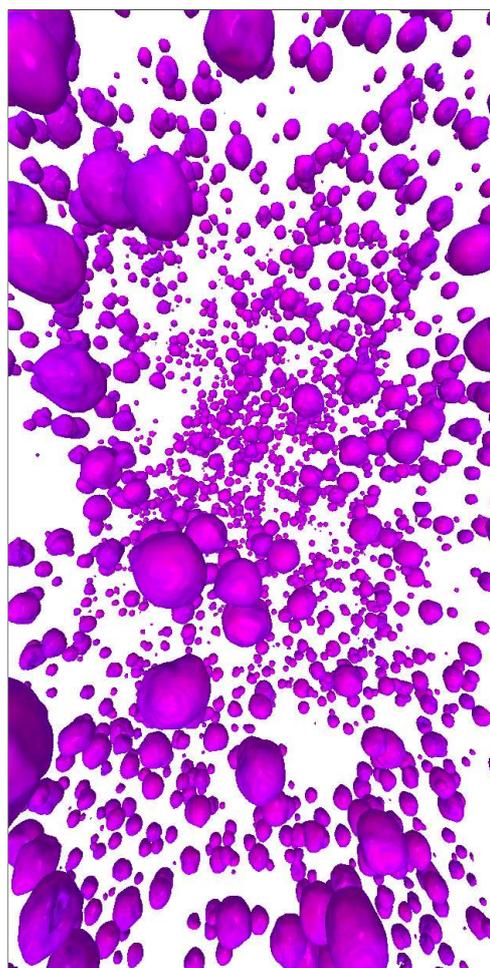
3. Laser Induced Breakdown Spectroscopy



(a) Cliché MEB - les particules de platinoïdes apparaissent en clair - la hauteur de l'image mesure $200\ \mu\text{m}$



(b) Iso-contour de densité permettant l'observation en perspective de l'ensemble des particules après analyse par microtomographie aux rayons X



(c) Iso-contour de densité permettant l'observation en perspective des particules de palladium-tellure seules après analyse par microtomographie aux rayons X

Figure 4.4 – Observation des particules de platinoïdes (billes de palladium-tellure et aiguilles de dioxyde de ruthénium) dans l'échantillon 2 de verre sédimenté pendant 211 h à $1200\ ^\circ\text{C}$ et soumis à analyse par Microscopie Électronique à Balayage (MEB) et par microtomographie aux rayons X

$$P(\mathbf{k}) = \frac{\mathbb{E} \left(\left| \int_{\Omega} \tilde{v}(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{r} \right|^2 \right)}{V(\Omega)}$$

où \tilde{v} est le champ de valeurs issu de la microtomographie normalisé et centré ($\tilde{v} \in [-1; 1]$ et $\int_{\Omega} \tilde{v} ds = 0$)⁴. En supposant l'ergodicité et l'homogénéité des données, l'espérance est remplacée par une moyenne sur 50 coupes de l'échantillon. L'estimation de la DSP obtenue est donc un périodogramme moyenné.

L'isotropie du signal peut être attestée par l'indépendance de la DSP à la direction du vecteur d'onde \mathbf{k} . De plus, le théorème de Wiener-Khinchin indique que la DSP est également la transformée de Fourier de la fonction d'autocorrélation du signal traité, et permet donc d'obtenir des informations sur les corrélations spatiales des coupes soumises à l'analyse. En particulier, nous pouvons obtenir leur longueur d'autocorrélation. Nous définissons pour cela la densité spectrale de puissance intégrée sur le cercle de rayon k (noté $\mathcal{S}(k)$) :

$$E(k) = \oint_{\mathcal{S}(k)} P(\mathbf{k}) d\mathcal{S}(k)$$

Ce spectre présente un vecteur d'onde de coupure k_c , relié à la longueur d'autocorrélation ξ par :

$$\xi \approx \frac{2\pi}{k_c}$$

Le vecteur d'onde de coupure est calculé à partir de l'intersection des courbes de loi d'échelle du spectre $E(k)$ à haut et bas vecteur d'onde. La taille du VER sera alors prise environ égale à dix fois la moyenne des longueurs d'autocorrélation des échantillons étudiés.

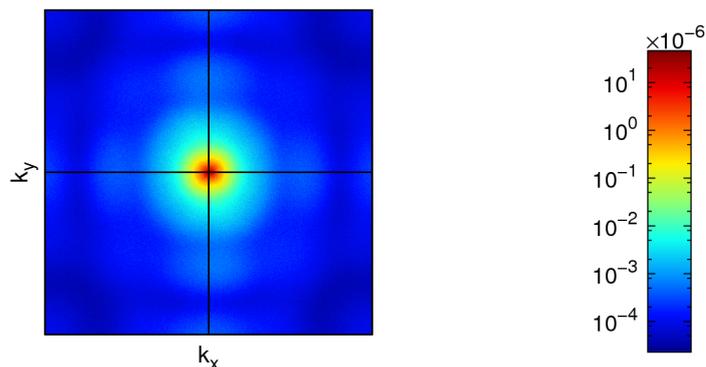
Les résultats des analyses spectrales des trois échantillons étudiés, obtenus grâce au code SP-SCI sont regroupés sur la figure 4.5 et dans le tableau 4.2. La DSP montre clairement l'isotropie des échantillons. De plus, nous obtenons dans notre cas une valeur moyenne de la longueur d'autocorrélation $\bar{\xi} \approx 6,1 \mu\text{m} \sim d_p$. La taille du VER sera donc prise égale à $64 \mu\text{m}$ pour les calculs de conductivité effective (taille correspondant à 400 voxels).

Seuillage

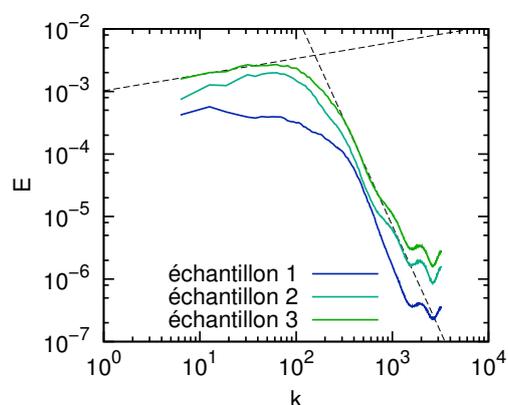
La figure 4.6 représente la fréquence d'apparition des valeurs v dans deux des échantillons étudiés. Le champ de phase ϕ est obtenu par un traitement de seuillage des données issues de la tomographie :

$$\phi = \begin{cases} 1 & \text{si } v \geq v_t \\ 0 & \text{si } v < v_t \end{cases}$$

4. Numériquement, la transformée de Fourier est calculée par un algorithme Fast Fourier Transform (FFT). Nous choisissons de pré-multiplier le signal par une fenêtre 2D d'apodisation de Hamming (obtenue par produit dyadique de deux fenêtres 1D) pour diminuer le biais d'évaluation spectrale due à la taille finie de l'échantillon.



(a) Estimation de la DSP $P(\mathbf{k})$ de l'échantillon 3 - représentation des droites $k_x = 0$ et $k_y = 0$ - les DSP des autres échantillons sont très similaires



(b) Densités spectrales intégrées $E(k)$ des différents échantillons tomographiés

Figure 4.5 – Analyse spectrale des échantillons tomographiés

Tableau 4.2 – Fractions volumiques moyennes (entre parenthèses la valeur a priori) et valeurs de la longueur d'autocorrélation obtenues par analyse des résultats de tomographie d'échantillons de verre de type UOx

Échantillon	Fraction volumique moyenne \bar{C} %	ξ μm
1	2,5 (ICP-AES : 2,5)	4,1
2	3,5 (LIBS : 3 – 4)	7,7
3	11,2	6,6

Plusieurs techniques permettent de déterminer la valeur seuil v_t , basées pour la plupart sur l'analyse de l'histogramme des valeurs rencontrées dans l'échantillon (méthode d'Otsu, détection de vallées...). Nous optons ici pour une méthode simple à mettre en œuvre et efficace dans notre cas, où v_t est une valeur seuil choisie telle que la fraction volumique dans l'un des échantillons soit égale à la valeur attendue d'après la composition chimique du verre. Les autres méthodes évoquées donnent des résultats très similaires. Après seuillage, le champ de phase présente une très bonne précision (localisation des interfaces) en raison de la différence significative de densité entre la matrice de verre et l'oxyde de ruthénium,

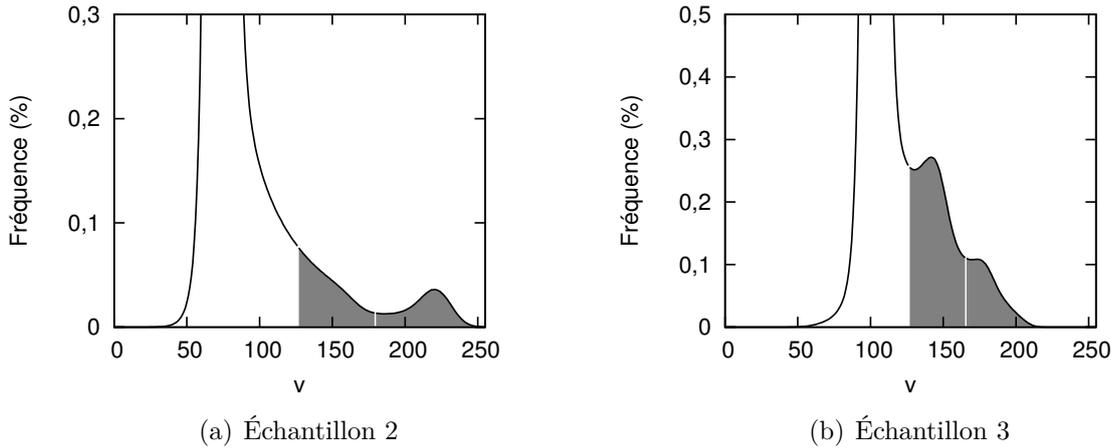


Figure 4.6 – Fréquence d'apparition des valeurs v dans deux des échantillons tomographiés. Les trois portions de courbe représentent respectivement, de gauche à droite, les valeurs correspondant à la matrice de verre, au dioxyde de ruthénium et à l'alliage de palladium-tellure - l'intégration de la fréquence correspondant aux deux dernières portions donne la fraction volumique moyenne en particules

le palladium et le tellure. Pour tous les échantillons, le seuil choisi est $v_t = 127$. Ce choix entraîne des fractions volumiques moyennes en particules, issues de l'évaluation numérique de l'équation 4.3 sur l'ensemble de chaque échantillon, cohérentes (cf. tableau 4.2).

4.2.2 Résultats des simulations numériques

Nous présentons ici les résultats de simulation numérique de conductivité obtenus grâce au code K-OF et la détermination des paramètres du modèle de percolation pour un verre de type UOx chargé en platinoïdes. Les simulations sont menées sur plusieurs domaines, chacun composé de 400^3 voxels soit un cube (VER) d'arête $64 \mu\text{m}$, répartis dans les différents échantillons. À ces échelles, les échantillons présentent une disparité de fraction volumique locale permettant d'évaluer la conductivité effective pour différentes fractions C proches de la fraction volumique moyenne de l'échantillon. Après raffinement du maillage aux interfaces particule-verre, ce dernier compte de 70 à 110 millions de mailles. Les calculs sont donc parallélisés sur 64 cœurs. Nous choisissons enfin un ratio de conductivité $R = 10^6$, typique d'un verre chaud chargé en platinoïdes.

La figure 4.7 montre le type de résultats obtenus par tomographie et après résolution numérique sur un sous-domaine. La figure 4.8 présente l'ensemble des valeurs de conductivité électrique effective obtenues. Ces valeurs sont très bien décrites par le modèle de percolation C^0 développé pour lequel les paramètres ont été ajustés, et valent :

$$C_p = 5,5 \%, \quad s = 0,63 \text{ et } t = 2,0 \quad (4.4)$$

Cette correspondance montre en particulier qu'il n'existe pas d'ordre structural particulier dans la suspension, menant à un comportement typique des agencements aléatoires. On observe une augmentation modérée de la conductivité électrique pour des fractions volumiques inférieures au seuil de percolation puis une augmentation soudaine de trois ordres de grandeurs lorsque des chemins de conduction continus se forment. Les valeurs

des exposants critiques sont typiques des problèmes de percolation et sont comparables aux valeurs données par Clerc et al. [85] ($s = 0,73 \pm 0,01$ et $t = 1,9 \pm 0,1$), Carcia et al. [77] ($t = 2$) ainsi que Yamaguchi et Nakamura [78] ($t = 1,80$). La valeur du seuil de percolation obtenue est relativement faible (en comparaison au seuil de percolation d'une suspension de particules sphériques d'environ 25 %), en raison de la présence de particules avec un fort rapport d'aspect (aiguilles). Elle correspond à la prédiction analytique pour les particules à fort rapport d'aspect Ψ (rapport de leur longueur et de leur diamètre, dans le cas des particules de dioxyde de ruthénium, $\Psi \approx 10$) [92, 93] :

$$C_p \approx \frac{0,6}{\Psi}$$

Pour ce type de morphologie, la valeur du seuil de percolation obtenue est toutefois plus grande que la valeur obtenue expérimentalement par Simonnet et al. ainsi que Pflieger et al. [5, 81] de l'ordre de 1 %, avec parfois un exposant critique $t > 2$ non physique. Cette faible valeur du seuil de percolation peut être attribuée à plusieurs phénomènes déjà identifiés dans ces études :

- La dissolution modérée de dioxyde de ruthénium et de palladium [78], contribuant alors à la conductivité de la matrice de verre ;
- L'existence de phénomènes plus complexes de transport électronique : effet tunnel, hopping, micro-claquages ;
- La sédimentation et l'agrégation des particules lors de l'élaboration des échantillons soumis à l'impédancemétrie.

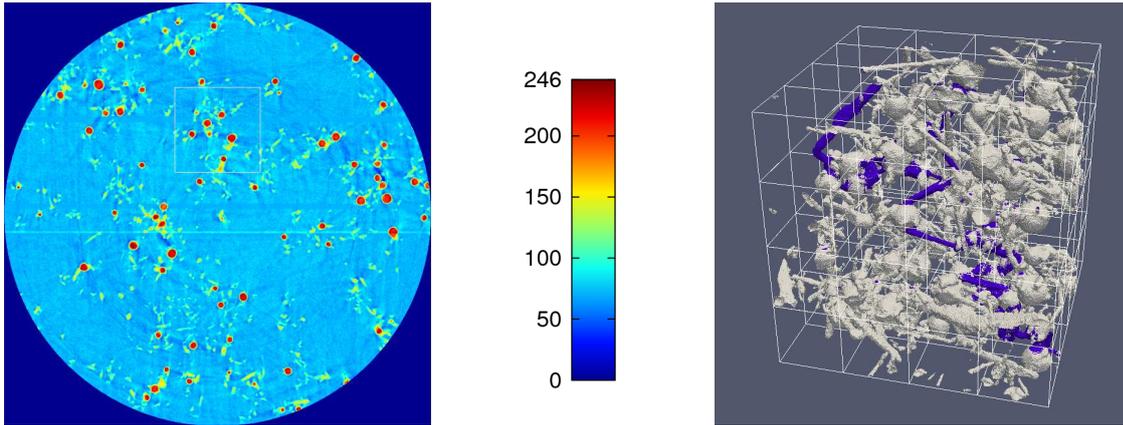
Les deux premiers points mentionnés favorisent l'apparition de courants électroniques passants entre des particules sans contact géométrique. Le dernier point contribue à une forte incertitude sur la teneur et l'état de dispersion des particules dans le verre. Ainsi, les « seuils de percolation » observés dans ces études correspondent en effet à une augmentation conséquente de conductivité de type électronique, mais qui reste très faible par rapport à la conductivité d'un échantillon réellement percolé (avec contact géométrique des particules). Dans le cas d'un verre en creuset froid et donc majoritairement chaud, la conductivité ionique est le mode de conduction prédominant dans la matrice de verre chaud comme l'atteste la dépendance à la température étudiée par la suite, et les courants électroniques liés à la dissolution des platinoïdes ou de l'effet tunnel et du hopping ne sont donc visibles qu'à faible température [94]. Ces effets seront donc négligés et nous utiliserons les valeurs des paramètres obtenus par simulation numérique 4.4.

4.2.3 Prise en compte d'une conductivité du verre dépendante de la température

Dérivation du modèle thermo-dépendant

Un couplage avec la thermique apparaît dans les équations électromagnétiques en raison d'une conductivité électrique du matériau dépendante de sa température. Dans le cas des verres chauds où la conductivité électrique est due au transport ionique (cations de relative petite taille), plusieurs études théoriques et expérimentales permettent de proposer des lois de variation avec la température. Toutes, dans une certaine gamme de température, se rapprochent d'une loi de type Arrhenius de la forme [26, 95] :

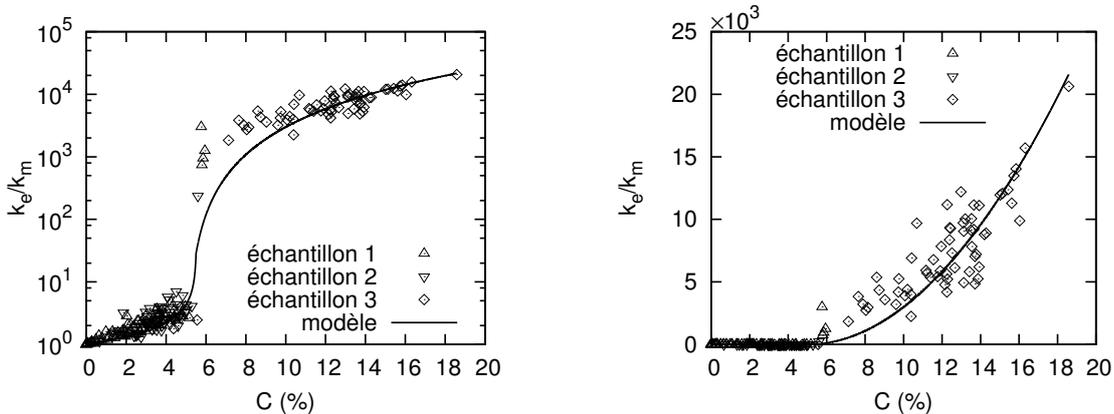
$$\sigma_m(T) = A_\sigma \exp\left(-\frac{B_\sigma}{R^n T}\right)$$



(a) Coupe dans un plan ($\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y$) des données brutes issues de la microtomographie v - représentation filaire d'un sous-domaine de simulation

(b) Résultats de simulation - les platinoïdes apparaissent en clair, la surface violette est une iso-contour de densité de courant électrique, qui forme un chemin continu entre les deux faces (haute et basse) imposant la différence de potentiel - représentation filaire du découpage du sous-domaine pour les 64 cœurs

Figure 4.7 – Calculs de conductivité électrique sur l'échantillon tomographié 2



(a) Représentation avec échelle logarithmique de conductivité

(b) Représentation avec échelle linéaire de conductivité

Figure 4.8 – Conductivité électrique effective d'une suspension de platinoïdes, comparaison entre plus de 200 points obtenus par simulation numérique et modèle de percolation C^0

où A_σ et B_σ s'interprètent respectivement comme la conductivité électrique du verre à très haute température et l'énergie d'activation du transport ionique.

D'autre part, nous disposons maintenant d'une loi de conductivité effective C^0 dépendante de la fraction volumique locale en particules :

$$\sigma_e(C) = \begin{cases} \sigma_m \left(\frac{C_p - C + C \left(\frac{\sigma_i}{\sigma_m} \right)^{-\frac{1}{t+s}}}{C_p} \right)^{-s} & \text{si } C < C_p \\ \sigma_i \left(\frac{C - C_p + (1-C) \left(\frac{\sigma_i}{\sigma_m} \right)^{-\frac{1}{t+s}}}{1 - C_p} \right)^t & \text{si } C > C_p \end{cases}$$

où σ_i est la conductivité des particules (supposée indépendante de la température). En admettant que les paramètres t , s et C_p varient peu dans la gamme des ratios de conductivité σ_i/σ_m rencontrés dans la plage de températures considérée, en combinant ces deux expressions, nous obtenons un modèle de conductivité effective dépendante de la température et du taux de platinoïdes, donné par l'expression :

$$\sigma(T, C) = \begin{cases} A_\sigma \exp\left(-\frac{B_\sigma}{R^n T}\right) \left(\frac{C_p - C + C \left(\frac{\sigma_i}{A_\sigma} \exp\left(\frac{B_\sigma}{R^n T}\right) \right)^{-\frac{1}{t+s}}}{C_p} \right)^{-s} & \text{si } C < C_p \\ \sigma_i \left(\frac{C - C_p + (1-C) \left(\frac{\sigma_i}{A_\sigma} \exp\left(\frac{B_\sigma}{R^n T}\right) \right)^{-\frac{1}{t+s}}}{1 - C_p} \right)^t & \text{si } C > C_p \end{cases}$$

Cette expression prévoit notamment un comportement fondamentalement différent de la conductivité effective aux basses températures entre le cas non percolé ($C < C_p$) et le cas percolé ($C > C_p$). Dans le premier cas, la conductivité effective tend à s'annuler à faible température, la matrice de verre devenant de moins en moins conductrice :

$$\sigma(T, C < C_p) \underset{T \rightarrow 0}{\sim} \exp\left(-\frac{B_\sigma}{R^n T}\right) \underset{T \rightarrow 0}{\rightarrow} 0$$

Dans le second cas, même si la matrice de verre conduit de moins en moins, un chemin percolé de particules de platinoïdes persiste et conduit le courant par transport électronique, menant ainsi à une conductivité effective non nulle et pouvant même être très élevée dans le cas de suspensions fortement concentrées :

$$\sigma(T, C > C_p) \underset{T \rightarrow 0}{\rightarrow} \sigma_i \left(\frac{C - C_p}{1 - C_p} \right)^t$$

Des mesures de conductivité électrique par impédancemétrie à quatre électrodes⁵ sur un échantillon de verre de type UOx de fraction volumique en particules de platinoïdes $C = 0,7\%$ (de conductivité électrique considérée égale à $\sigma_i = 10^6$ S/m) ont été réalisées et permettent de proposer les valeurs pour les paramètres de conductivité du verre $A_\sigma = 3,9 \cdot 10^4$ S/m et $B_\sigma = 8,4 \cdot 10^4$ J/mol (cf. figure 4.9). La valeur d'énergie d'activation obtenue correspond à une barrière énergétique de l'ordre de l'électron-volt $B_\sigma/N_A = 0,87$ eV, typique du transport de cations monovalents dans les verres de silice [96].

Forme adimensionnée

Nous définissons une conductivité de référence $\sigma_0 = A_\sigma / f_{\sigma_m}^{max}$, où $f_{\sigma_m}^{max}$ est choisi tel que σ_0 soit raisonnablement proche de la conductivité électrique de la suspension rencontrée dans le procédé ($f_{\sigma_m}^{max} = 10^4$). La loi d'Arrhenius ajoute un paramètre adimensionné au problème, rapport entre la différence de températures du système ΔT et l'énergie d'activation B_σ :

5. Mesures réalisées par le laboratoire CEMTHI UPR3079.

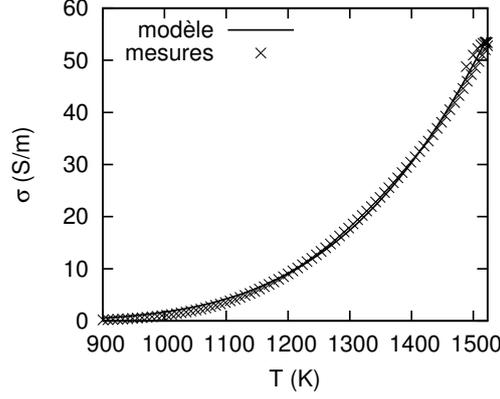


Figure 4.9 – Comparaison entre les mesures de conductivité électrique d’un verre de type UOx obtenues par impédancemétrie à quatre électrodes et les prédictions du modèle de conductivité effective thermo-dépendante pour les paramètres $A_\sigma = 3,9 \cdot 10^4$ S/m et $B_\sigma = 8,4 \cdot 10^4$ J/mol

$$H = \frac{R^n \Delta T}{B_\sigma}$$

En définissant le nombre adimensionné correspondant au zéro absolu $T_0 = \frac{-T_c}{\Delta T}$ (où T_c est exprimée en Kelvins), nous pouvons écrire (avec T la température adimensionnée) :

$$\sigma_m(T) = \sigma_0 f_{\sigma_m}^{max} \exp\left(-\frac{1}{H(T - T_0)}\right)$$

En définissant le rapport de conductivités $R = \sigma_i / \sigma_0$, nous obtenons la conductivité effective sous forme adimensionnée :

$$f_\sigma(T, C) = \frac{\sigma(T, C)}{\sigma_0} = \begin{cases} f_{\sigma_m}^{max} \exp\left(-\frac{1}{H(T - T_0)}\right) \left(\frac{C_p - C + C \left(\frac{R}{f_{\sigma_m}^{max}} \exp\left(\frac{1}{H(T - T_0)}\right)\right)^{-\frac{1}{t+s}}}{C_p}\right)^{-s} & \text{si } C < C_p \\ R \left(\frac{C - C_p + (1 - C) \left(\frac{R}{f_{\sigma_m}^{max}} \exp\left(\frac{1}{H(T - T_0)}\right)\right)^{-\frac{1}{t+s}}}{1 - C_p}\right)^t & \text{si } C > C_p \end{cases}$$

4.3 Pertinence de l’utilisation d’une conductivité électrique effective dans le calcul de la puissance Joule

Nous discutons dans cette section de la pertinence de l’utilisation d’une conductivité électrique effective en lieu et place de l’utilisation d’un champ de conductivité qui prendrait en compte chaque particule, comme réalisé dans les simulations à petite échelle.

Dans le cas stationnaire, par définition de la conductivité effective, nous avons démontré que la puissance Joule dissipée dans le milieu hétérogène était exactement donnée par la puissance Joule dissipée dans le milieu homogène. La discussion se réduit donc au cas

harmonique. Nous sommes dans le cas où l'épaisseur de peau électromagnétique dans les particules δ_i est grande devant leur taille caractéristique ce qui entraîne l'inexistence d'induction propre ou bien mutuelle entre particules voisines (les particules n'influencent pas le champ magnétique imposé). Ce cas vérifie donc une première condition de séparation d'échelle nécessaire au processus d'homogénéisation :

$$\frac{d_p}{\delta_i} \ll 1 \Leftrightarrow \frac{d_p}{L} \ll (RR_\omega)^{-1/2} \quad (4.5)$$

Deux domaines de concentration en particules sont à considérer, à savoir en-dessous et au-delà du seuil de percolation électrique :

- Pour $C \geq C_p$: nous avons montré dans Rognin et al. [97] qu'au-delà du seuil de percolation, des boucles de courants induits se forment à l'échelle macroscopique en suivant les chemins conducteurs formés par les particules. D'un point de vue quantitatif, il a été montré que tout se passait comme si l'induction de puissance Joule avait lieu dans un milieu de conductivité effective évaluée à la concentration en particules C ;
- Pour $C < C_p$: en-dessous du seuil de percolation, les courants induits sont de deux natures. L'une d'elle sont les courants induits dans chaque particule « isolée », l'autre étant constituée des courants induits à l'échelle macroscopique dans la suspension et issus de la conduction électrique alternativement à travers la matrice et les particules. Deux cas sont alors à distinguer dans ce domaine selon l'importance relative de ces deux phénomènes. Si la puissance Joule issue de l'induction dans chaque particule isolée domine, nous avons montré que la puissance Joule injectée dans la suspension est bien évaluée par la somme des puissances induites dans chaque particule [97]. Dans le cas inverse où la puissance Joule injectée à l'échelle macroscopique dans la suspension non percolée domine, tout se passe également comme si l'induction de puissance Joule avait lieu dans un milieu de conductivité effective évaluée à la concentration en particules C , (pareillement au cas $C \geq C_p$).

Nous dérivons ici un critère de choix entre ces deux cas en considérant l'induction électromagnétique dans une suspension, de taille caractéristique L et de fraction volumique $C < C_p$, de particules conductrices de taille caractéristique d_p et de conductivité σ_i , au sein d'une matrice modérément conductrice de conductivité σ_m . Nous considérerons pour simplifier la discussion le cas de faible écrantage pour la matrice et les particules. Dans ce cas, la puissance Joule dissipée dans les particules isolées par unité de volume suit la loi d'échelle [75] :

$$p_{J,i} \propto \sigma_i C (d_p \omega B)^2$$

et la puissance Joule volumique dissipée dans la suspension par les boucles de courants macroscopiques est telle que (en considérant une conductivité effective $\sigma_e \sim \sigma_m$) :

$$p_{J,m} \propto \sigma_m (L \omega B)^2$$

Le rapport de ces deux puissances est donc donné par le nombre sans dimension $CR \left(\frac{d_p}{L}\right)^2$ (qui est maximal pour $C \approx C_p$).

L'utilisation de la conductivité effective pour le calcul de la puissance Joule dans tous les domaines de concentration en particules est donc pertinent dans le cas :

$$C_p R \left(\frac{d_p}{L} \right)^2 \ll 1 \Leftrightarrow \frac{d_p}{L} \ll (RC_p)^{-1/2} \quad (4.6)$$

qui est une deuxième condition de séparation d'échelle. Les situations ne vérifiant pas cette condition nécessitent la prise en compte de l'induction dans chaque particule isolée dans les zones de fractions volumiques inférieures au seuil de percolation.



Figure 4.10 – Représentation schématique des courants électriques dominants dans une suspension de particules plus conductrices que la matrice soumise à induction électromagnétique - de gauche à droite, le cas percolé $C \geq C_p$, le cas non percolé $C < C_p$ où les courants intraparticulaires dominent et le cas non percolé $C < C_p$ où les courants macroscopiques dominent

4.4 Conclusion

Nous avons abordé en profondeur, dans cette étude de l'induction électromagnétique dans une suspension, les méthodes de prise en compte de la nature hétérogène du matériau verre nucléaire dans le problème d'induction selon la démarche suivante :

- Après avoir en particulier justifié le caractère non-polarisable du matériau à l'échelle macroscopique, nous avons développé un modèle de conductivité électrique effective continu basé sur les modèles existants issus de la théorie de la percolation ;
- Des simulations numériques à petite échelle de conduction de courant à travers des échantillons de verre nucléaire tomographiés ont alors permis une calibration fine du modèle, permettant d'obtenir une formule analytique paramétrée de la conductivité effective en fonction du taux de platinoïdes ;
- Comme dans toute étude d'homogénéisation, la question de la détermination du Volume Élémentaire Représentatif a fait l'objet d'un traitement particulier et nous avons proposé une technique originale basée sur la détermination de la longueur d'autocorrélation par analyse spectrale d'images. Cette analyse a également permis de justifier le caractère isotrope des suspensions de particules de platinoïdes rencontrées dans les verres de type UOx ;
- Nous avons également composé la dépendance de la conductivité électrique au taux de platinoïdes avec la dépendance de la conductivité du verre à la température, issue de l'activation du transport ionique à haute température ;
- Enfin, nous avons démontré la pertinence de l'utilisation de la théorie de l'homogénéisation dans le cas de l'induction électromagnétique en explicitant deux critères de séparation d'échelle et en présentant nos travaux publiés sur la question [97].

Les résultats obtenus complètent un pan important de la modélisation multiphysique du procédé d'élaboration en intégrant à l'aide d'une démarche multi-échelle les caractéristiques particulières du matériau. La concentration en particules ne peut en général pas être considérée homogène dans la suspension, entraînant donc en particulier des variations spatiales de conductivité électrique. Le chapitre suivant permet d'aborder des phénomènes clés de transport des particules, redistribuant les particules dans la fonte.

Chapitre 5

Comportement des particules en suspension

5.1	Instabilité de Rayleigh-Taylor	92
5.1.1	Force appliquée par les particules sur le fluide suspendant . . .	92
5.1.2	Analyse de stabilité linéaire temporelle d'une stratification . . .	93
5.1.3	Simulation numérique directe	98
5.2	Sédimentation dans un fluide au repos	101
5.2.1	Sédimentation totale	101
5.2.2	Comparaisons expérimentales	102
5.3	Conclusion	108

La modélisation du champ de particules développée permet de rendre compte de plusieurs phénomènes typiques des suspensions de particules qui jouent un rôle important dans la physique du creuset froid inductif. Nous abordons deux de ces phénomènes de manière qualitative et quantitative, mettant en avant la capacité du modèle développé à en rendre compte. Nous démontrons notamment, grâce à une analyse de stabilité linéaire, que le couplage existant entre transport des particules et équations de Navier-Stokes dû à une masse volumique de la suspension dépendante du taux de platinoïdes est bien capturé grâce à l'approximation de Boussinesq utilisée. Nous montrerons que ce couplage permet d'expliquer le phénomène d'entraînement des particules d'une couche de verre surchargée en particules vers les zones moins concentrées de la fonte. Ce phénomène est en particulier à l'œuvre lors de l'alimentation de déchets surchargés en métalloïdes en surface d'une fonte de verre. Nous abordons dans un second temps le cas de sédimentation des particules dans un fluide statique initialement homogène. Des comparaisons expérimentales permettent alors d'attester de la représentativité du modèle de transport en matière de localisation spatiale des particules lors d'un processus de sédimentation dans un verre au repos.

5.1 Instabilité de Rayleigh-Taylor

Tout comme dans le cas de variations de masse volumique dues à une inhomogénéité du champ de température, la dépendance de la masse volumique de la suspension à la fraction volumique en particules (explicitée dans la formule 2.18) peut entraîner la modification de l'écoulement du fluide voire l'apparition d'instabilités de type Rayleigh-Bénard et Rayleigh-Taylor, parfois dénommées « sédimentation en nuage » [52, 98–101]. Par analogie avec les instabilités associées à une stratification du champ de température, nous savons qu'une stratification du champ de particules, telle que le gradient de concentration est opposé à la gravité, est linéairement instable pour un Grashof particulaire Gr_p suffisamment élevé. Ce type de situation donne lieu au développement et à la propagation de polypes de Rayleigh-Taylor [102] qui entraînent le mélange de la suspension et dans un second temps, son homogénéisation associée à la diffusivité des particules. Ce phénomène a été massivement étudié en raison de sa forte occurrence dans de nombreuses situations naturelles ou applications industrielles mettant en jeu des suspensions de particules. Une revue de littérature exhaustive a été proposée par Chou et al. [103], qui s'intéressent par ailleurs à la simulation numérique de telles instabilités et à l'impact de la sédimentation individuelle des particules. Nous montrons dans cette étude qu'une stratification de concentration pour une suspension de particules relativement diluée s'identifie exactement au cas d'une stratification de deux fluides immiscibles de densités proches dans la limite des grands nombres de Schmidt.

Nous étudions dans cette partie de manière quantitative ce mode de sédimentation dans le cas d'un fluide non agité, notamment à l'aide d'une analyse de stabilité linéaire temporelle. Cette analyse permet d'évaluer l'échelle de temps de ce type de phénomène, comparée par la suite aux échelles de temps de sédimentation individuelle des particules et d'advection par un fluide forcé. Dans un second temps et grâce à des considérations énergétiques, nous proposons une majoration de la vitesse macroscopique du fluide induite par les instabilités de Rayleigh-Taylor.

5.1.1 Force appliquée par les particules sur le fluide suspendant

Lorsqu'un ensemble de particules sédimente sans phénomène d'inertie dans une portion de fluide dV , le fluide exerce sur les particules une traînée de Stokes permettant d'équilibrer leur poids diminué de la poussée d'Archimède. D'après la troisième loi de Newton, l'ensemble de particules considéré applique donc au fluide en contact une force opposée, donnée par :

$$d\mathbf{F} = CdV(\rho_p - \rho_f)g\hat{\mathbf{g}}$$

soit une force volumique :

$$\mathbf{f} = C(\rho_p - \rho_f)g\hat{\mathbf{g}} \approx \rho_0 C\beta_p g\hat{\mathbf{g}}$$

Il s'agit du terme de force volumique ajouté à l'équation de mouvement du fluide dans l'approximation de Boussinesq. Ce terme modélise donc l'impact des particules sédimentant sur le fluide suspendant et l'on parle de couplage bidirectionnel (« two-way coupling »). Cette force est compensée par l'apparition d'une pression supplémentaire au sein du fluide qui, lors d'un déséquilibre, entraîne la mise en mouvement macroscopique

du fluide.

La modélisation de la dépendance de la densité du fluide à la fraction volumique locale en particules peut également être interprétée comme la modélisation de la sédimentation aux grandes échelles. En effet, le terme de sédimentation de l'équation de transport des particules permet de modéliser l'entraînement par la gravité des particules ou agrégats de particules n'étant pas représentés dans le champ macroscopique C . Dès lors que l'inhomogénéité de la distribution de particules est capturée par le champ C (strates ou amas de taille macroscopique), le terme de Boussinesq de l'équation de la quantité de mouvement du fluide permet de modéliser l'entraînement de l'amas par la gravité, associé à un champ de vitesse du fluide macroscopique.

5.1.2 Analyse de stabilité linéaire temporelle d'une stratification

Suivant la démarche de Voltz et al. [104] et Burns et al. [105], nous déterminons dans cette partie le taux de croissance de l'instabilité dans le cas bidimensionnel d'une couche de haute fraction volumique C_h surnageant une couche de relative faible fraction volumique C_l ($\Delta C = C_h - C_l > 0$). Si Burns et al. [105] étudient l'impact de la vitesse de sédimentation individuelle des particules et montrent un ralentissement de l'instabilité de Rayleigh-Taylor, nous nous intéressons au contraire au cas où les particules agissent comme des traceurs parfaits (sans sédimentation ni diffusivité, limite des grands nombres de Schmidt). Nous montrons alors grâce à une analyse de stabilité linéaire que notre cas de suspension diluée suit l'équation de dispersion analytique démontrée par Menikoff et al. [106] dans le cas de deux fluides immiscibles de densités sensiblement différentes. Ce résultat est intimement lié au fait que l'hypothèse de suspension diluée implique un faible nombre d'Atwood :

$$A = \frac{\rho(C_h) - \rho(C_l)}{\rho(C_h) + \rho(C_l)} \ll 1$$

Démonstration. Dans le cas de suspension diluée ($\beta_p \bar{C} \ll 1$), en utilisant le développement de Taylor de la masse volumique de la suspension 2.18, il vient :

$$A = \frac{\beta_p \Delta C}{2(1 + \beta_p \bar{C})} \approx \frac{\beta_p \Delta C}{2}$$

Or,

$$\frac{\beta_p \Delta C}{2} \leq \beta_p \bar{C} \ll 1$$

□

Cas sans terme de viscosité du fluide

La détermination analytique (théorie de l'écoulement potentiel et application de l'équation de Bernoulli) de la relation de dispersion associée aux perturbations de cet état de stratification au repos nous donne une évaluation d'une borne supérieure du taux de croissance de l'instabilité de nombre d'onde k avec approximation de suspension isotherme

suffisamment diluée non visqueuse et de particules non diffusives sans sédimentation individuelle ($Sc \gg \mathcal{N}$ et $Sc \gg 1$) [102] :

$$\sqrt{\frac{\rho(C_h) - \rho(C_l)}{\rho(C_h) + \rho(C_l)} g k} \approx \sqrt{\frac{1}{2} \beta_p g \Delta C k}$$

soit, en valeur adimensionnée :

$$s_{sup} = \sqrt{\frac{k}{2} Gr_p \Delta C} \quad (5.1)$$

Démonstration. Nous démontrons ici que s_{sup} se retrouve analytiquement dans l'étude directe de la stabilité linéaire temporelle des équations d'évolution déterminées auparavant, pour lesquelles une approximation de Boussinesq a été réalisée. Sous les hypothèses mentionnées, on a :

$$\begin{aligned} \nabla \cdot \mathbf{u} &= 0 \\ \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \nabla \mathbf{u} \cdot \mathbf{u} + Gr_p C \mathbf{e}_y &= -\nabla p \\ \frac{\partial C}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla C &= 0 \end{aligned}$$

Dans le formalisme de la fonction de courant ψ , définie telle que $\mathbf{u} = (\partial_y \psi, -\partial_x \psi)$, ce système s'écrit :

$$\begin{aligned} \partial_t \nabla^2 \psi + \partial_y \psi \partial_x \nabla^2 \psi - \partial_x \psi \partial_y \nabla^2 \psi - Gr_p \partial_x C &= 0 \\ \partial_t C + \partial_y \psi \partial_x C - \partial_x \psi \partial_y C &= 0 \end{aligned}$$

L'état de base stratifié considéré s'écrit :

$$\underline{\psi} = 0, \quad \underline{C}(y) = \begin{cases} C_h & \text{si } y \geq 0 \\ C_l & \text{si } y < 0 \end{cases}$$

On considère alors une perturbation de l'état de base (ψ, C) (faible en norme L^2) telle que $(\underline{\psi} + \psi, \underline{C} + C)$ satisfait les équations d'évolution. En développant ces équations et en négligeant les termes du second ordre, nous obtenons le système d'équations linéarisées satisfait par les perturbations de l'état de base suivant (δ désigne ici la distribution de Dirac) :

$$\partial_t \nabla^2 \psi = Gr_p \partial_x C \quad (5.2)$$

$$\partial_t C = \Delta C \delta(y) \partial_x \psi \quad (5.3)$$

complété par la condition aux limites d'instabilité localisée à l'interface pour la fonction de courant $\lim_{y \rightarrow \pm\infty} \psi, \partial_y \psi \dots = 0$ et de Neumann homogène pour la fraction volumique $\lim_{y \rightarrow \pm\infty} \partial_y C = 0$. L'équation 5.2 montre que la présence d'oscillations dans l'interface entre fluide chargé et moins chargé en particules produit de la vorticit  (on rappelle que, dans le formalisme de la fonction de courant, la vorticit  est donn e par $-\nabla^2 \psi$). La diff erentiation en temps de 5.2 et l' limination de la fraction volumique gr ce   5.3 donne :

$$\partial_{tt}^2 \nabla^2 \psi = Gr_p \Delta C \delta(y) \partial_{xx}^2 \psi \quad (5.4)$$

Pour une perturbation de la forme $\psi = \bar{\psi}(y) \exp(st + ikx)$ (le système étudié n'étant pas confiné dans la direction x), 5.4 prend la forme :

$$s^2 \nabla^2 \bar{\psi} = -k^2 Gr_p \Delta C \delta(y) \bar{\psi} \quad (5.5)$$

Or, d'après le théorème de Kelvin, dans chacune des deux phases, l'écoulement reste irrotationnel, entraînant l'équation suivante (compatible avec 5.4 pour $y \neq 0$) :

$$\nabla^2 \psi = 0 \Rightarrow \partial_{yy}^2 \bar{\psi} = k^2 \bar{\psi}$$

Grâce à la condition aux limites pour la fonction de courant, voulue continue en $y = 0$, on obtient :

$$\begin{aligned} \bar{\psi} &= \bar{\psi}(y=0) \exp(-k|y|) \\ \Rightarrow \nabla^2 \bar{\psi} &= \partial_{yy}^2 \bar{\psi} - k^2 \bar{\psi} = -2\bar{\psi}(y=0)k\delta(y) \end{aligned}$$

L'intégration de 5.5 selon y donne alors la relation de dispersion finale :

$$s^2 = \frac{k}{2} Gr_p \Delta C$$

soit le résultat voulu 5.1. □

Cas visqueux

En réalité, on a toujours $s < s_{sup}$ pour tout nombre d'onde, en raison des phénomènes de dissipation visqueuse d'énergie cinétique (mais aussi en raison de la sédimentation individuelle des particules et de la miscibilité associée à leur diffusivité [105]). De plus, ces phénomènes stabilisent les instabilités de haut nombre d'onde k qui présentent de fortes oscillations si bien que le mode dominant (le plus instable, $s = s_{max}$ maximal) est fini ($k_{max} < +\infty$). L'équation de dispersion générale des instabilités de Rayleigh-Taylor dans le cas 2D ou 3D de fluides stratifiés visqueux non miscibles a été déterminée analytiquement par Chandrasekhar [107] et adaptée par Menikoff [106] au cas limite de faible saut de masse volumique (faible nombre d'Atwood) :

$$s^2 + k^2 s \left(1 + \sqrt{1 + \frac{s}{k^2}} \right) - \frac{k}{2} Gr_p \Delta C = 0 \quad (5.6)$$

k_{max} et s_{max} s'obtiennent numériquement à partir de cette équation implicite de dispersion :

$$\begin{aligned} k_{max} &\approx 0,418 (Gr_p \Delta C)^{\frac{1}{3}} \\ s_{max} &\approx 0,282 (Gr_p \Delta C)^{\frac{2}{3}} \approx 1,618 k_{max}^2 \end{aligned} \quad (5.7)$$

Démonstration. k_{max} et s_{max} vérifient à la fois l'équation de dispersion implicite 5.6 ainsi que la condition d'optimalité obtenue en dérivant cette équation de dispersion par rapport au vecteur d'onde et en utilisant $\frac{\partial s}{\partial k} = 0$, soit le système :

$$s^2 + k^2 s \left(1 + \sqrt{1 + \frac{s}{k^2}} \right) - \frac{k}{2} Gr_p \Delta C = 0 \quad (5.8)$$

$$ks \left(1 + \sqrt{1 + \frac{s}{k^2}} - \frac{s}{2k^2 \sqrt{1 + \frac{s}{k^2}}} \right) - \frac{1}{4} Gr_p \Delta C = 0 \quad (5.9)$$

qui admet un couple solution de la forme :

$$k = \alpha (Gr_p \Delta C)^{\frac{1}{3}}, \quad s = \beta (Gr_p \Delta C)^{\frac{2}{3}}$$

avec :

$$\beta^2 + \alpha^2 \beta \left(1 + \sqrt{1 + \frac{\beta}{\alpha^2}} \right) - \frac{\alpha}{2} = 0 \quad (5.10)$$

$$\alpha \beta \left(1 + \sqrt{1 + \frac{\beta}{\alpha^2}} - \frac{\beta}{2\alpha^2 \sqrt{1 + \frac{\beta}{\alpha^2}}} \right) - \frac{1}{4} = 0 \quad (5.11)$$

La résolution numérique de ce système non linéaire donne alors $\alpha \approx 0,418$ et $\beta \approx 0,282$. \square

Nous cherchons donc à montrer que notre cas de stratification d'une suspension diluée, sans sédimentation individuelle ni diffusion de particules suit la même équation de dispersion et présente donc des instabilités se développant avec un taux de croissance s_{max} . La dérivation analytique de l'équation de dispersion par l'étude des équations d'évolution de la fraction volumique et de Navier-Stokes comme réalisée dans le cas non visqueux est également possible dans le cas visqueux en suivant la démarche de Burns et al. [105] mais reste fastidieuse. Nous lui préférons donc une méthode numérique en évaluant la relation de dispersion $s(k)$ sous l'approximation de Boussinesq par analyse de stabilité linéaire temporelle numérique des équations d'évolution puis en comparant les résultats avec 5.6¹.

Dans le cas où la viscosité est prise en compte, le système linéarisé devient (conditions aux limites identiques au cas non visqueux) :

$$\partial_t \nabla^2 \psi = Gr_p \partial_x C + \nabla^4 \psi \quad (5.12)$$

$$\partial_t C = \Delta C \delta(y) \partial_x \psi \quad (5.13)$$

la première équation représentant le processus de production-diffusion de vorticit . Le syst me  tudi  n' tant pas confin  dans la direction x , on consid re les perturbations de la forme $\phi = (\psi, C) = \bar{\phi} \exp(st + ikx)$. Le syst me lin aris  s' crit ainsi sous la forme du probl me aux valeurs propres g n ralis  :

$$(\mathbf{A}_\varepsilon - s\mathbf{B})\bar{\phi} = 0$$

1. Le d veloppement d'une approche de r solution num rique permet  galement d'aborder le cas de profils verticaux de base $\underline{C}(y)$ plus complexes que le saut de concentration et notamment le cas d'interfaces diffuses, non solubles analytiquement.

où, en notant $\mathcal{D} \equiv \partial_y$:

$$\mathbf{A}_\varepsilon = \begin{pmatrix} (\mathcal{D}^2 - k^2)^2 & ikGr_p \\ ik\Delta C f_\varepsilon(y) & 0 \end{pmatrix}$$

$$\mathbf{B} = \begin{pmatrix} \mathcal{D}^2 - k^2 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$$

où $f_\varepsilon(y) = \frac{1 - \tanh^2(y/\varepsilon)}{2\varepsilon}$ est une approximation de $\delta(y)$ pour $\varepsilon \rightarrow 0$.

Le code développé ST-SCI permet une résolution numérique de ce problème pour tout nombre d'onde k . L'écriture d'un tel code se ramène au choix d'un maillage de l'espace 1D ainsi qu'au choix d'une technique de dérivation discrète. Nous optons pour une méthode spectrale [108] qui, à nombre de mailles identique, offre une bien meilleure précision qu'une méthode aux différences finies. Ainsi, $\bar{\phi}$ est approximé par une somme de n polynômes de Chebyshev et évalué aux points de Gauß-Lobatto $y_i = \cos\left(\frac{(i-1)\pi}{n-1}\right)$ (transportés sur $[-\infty; +\infty]$ par $y \mapsto -\frac{y_c y}{\sqrt{2(1-y^2)}}$ qui place la moitié des points du maillage dans l'intervalle entourant le saut de concentration $[-y_c; y_c]$). Avec cette méthode, la matrice de différentiation est donnée par :

$$\mathcal{D}_{1j} = \mathcal{D}_{nj} = 0, \quad 1 \leq j \leq n$$

$$\mathcal{D}_{ii} = \frac{y_i(1 - y_i^2)}{\sqrt{2}y_c(1 + y_i^2)}, \quad 1 < i < n$$

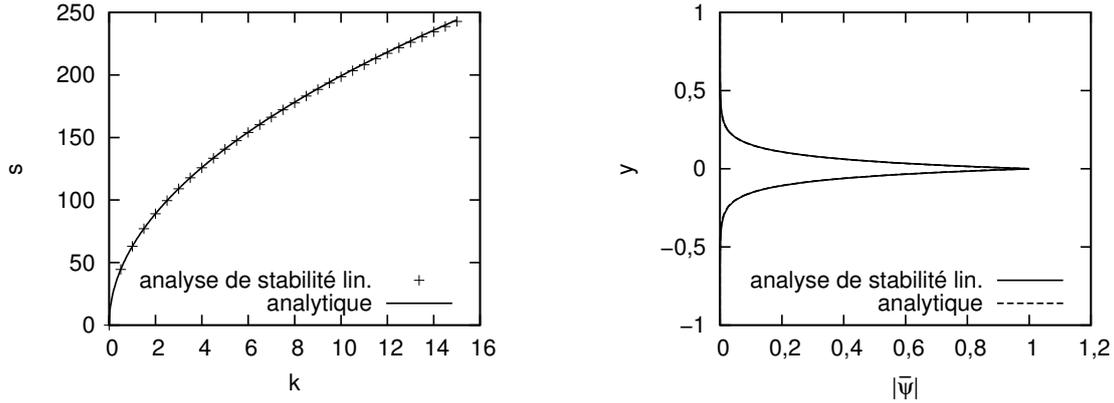
$$\mathcal{D}_{ij} = \frac{\sqrt{2}(-1)^{i+j}(1 - y_i^2)^2}{c_j y_c (y_j - y_i)(1 + y_i^2)}, \quad 1 < i < n \text{ et } j \neq i$$

où $c_j = 1$ sauf $c_1 = c_n = 2$. Les conditions aux limites sont intégrées aux matrices discrétisées \mathbf{A} et \mathbf{B} (méthode Tau [109]). L'intégration des conditions aux limites aux matrices discrétisées entraîne l'apparition de valeurs propres non physiques (« spurious eigenvalues ») dues à l'apparition de lignes de zéros. Afin de détecter et supprimer ces valeurs propres non physiques, la résolution numérique du problème aux valeurs propres généralisé est réalisée pour deux n (nombre de polynômes de Chebyshev utilisés dans la discrétisation) légèrement différents. Les valeurs propres physiques sont celles qui varient le moins dans cette opération tandis que les valeurs propres non physiques, purement numériques, changent drastiquement [110, 111]. Pour chaque vecteur d'onde k prescrit, $s(k)$ est alors le maximum des parties réelles des valeurs propres physiques trouvées.

Afin de valider le code de calcul, nous comparons ses résultats à viscosité nulle² avec les résultats analytiques déjà obtenus. La figure 5.1 montre la comparaison de la relation $s(k)$ et de la fonction de courant du vecteur propre le plus instable (associé au plus grand nombre d'onde considéré $k = 15$) et présente un très bon accord. Les paramètres numériques utilisés sont $n = 145$, $y_c = 2.10^{-2}$ et $\varepsilon = 7.10^{-4}$.

2. En négligeant le terme de viscosité, on a une matrice \mathbf{A}_ε simplifiée, associée au système d'équations linéarisées 5.2-5.3 :

$$\mathbf{A}_\varepsilon = \begin{pmatrix} 0 & ikGr_p \\ ik\Delta C f_\varepsilon(y) & 0 \end{pmatrix}$$


 (a) Comparaison des taux de croissance $s(k)$

 (b) Comparaison de la fonction de courant $\bar{\psi}(y)$ associé au plus grand nombre d'onde considéré $k = 15$ - les courbes ne peuvent pas être distinguées

Figure 5.1 – Comparaison des résultats analytiques et calculés par le code d'analyse de stabilité linéaire temporelle ST-SCI dans le cas non visqueux pour $Gr_p = 1,6 \cdot 10^6$, $\Delta C = 5 \cdot 10^{-3}$ et $k \in [0; 15]$

Lorsque la viscosité est prise en compte, la branche des taux de croissance positifs sous approximation de Boussinesq se confond avec celle donnée par l'équation de dispersion 5.6 (cf. figure 5.2). Les résultats montrent donc une bonne modélisation de l'instabilité de Rayleigh-Taylor avec l'approximation de Boussinesq avec un amortissement des perturbations de haut nombre d'onde. Nous avons également montré que l'équation de dispersion de Chandrasekhar-Menikoff dans le cas de suspensions suffisamment diluées et de grand nombres de Schmidt est pertinente dans notre cas. Pour des valeurs typiques de la fusion de verre de type UOx en creuset froid $Gr_p = 1,6 \cdot 10^6$ et $\Delta C = 5 \cdot 10^{-3}$, nous obtenons en particulier les valeurs :

$$k_{max} \approx 8,4, \quad s_{max} \approx 113$$

cohérentes avec les formules analytiques 5.7.

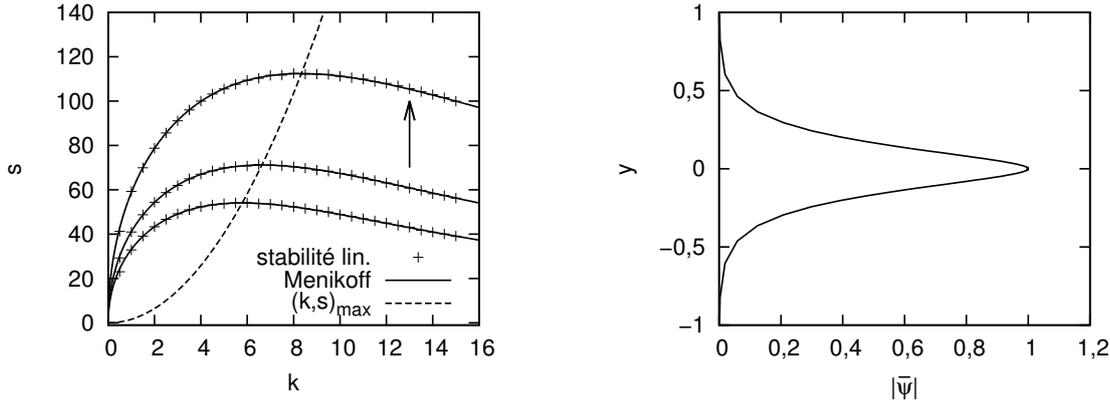
En valeurs dimensionnées, 5.7 s'écrit :

$$k_{max} \approx 0,418 \nu^{-\frac{2}{3}} (\beta_p \Delta C g)^{\frac{1}{3}}, \quad s_{max} \approx 0,282 \nu^{-\frac{1}{3}} (\beta_p \Delta C g)^{\frac{2}{3}} \quad (5.14)$$

En particulier, ces valeurs sont indépendantes de la taille du système. Le temps caractéristique associé aux instabilités de Rayleigh-Taylor est alors donné par $1/s_{max}$. La taille caractéristique des polypes de Rayleigh-Taylor est, dans le cas du creuset froid, de l'ordre de son rayon.

5.1.3 Simulation numérique directe

Nous montrons dans cette section que les taux de croissance obtenus par analyse de stabilité linéaire temporelle se retrouvent lors de la simulation numérique directe des équations de Navier-Stokes et de transport des particules grâce au code de calcul C-OF. Nous nous attachons également à dériver et vérifier numériquement une borne supérieure



(a) Comparaison des taux de croissance $s(k)$ obtenus par analyse de stabilité linéaire numérique et issus de l'équation de dispersion implicite de Chandrasekhar et Menikoff 5.6 pour différentes valeurs du Grashof massique (croissantes dans le sens de la flèche) $Gr_p \in \{5,3 \cdot 10^5; 8 \cdot 10^5; 1,6 \cdot 10^6\}$ - courbe des couples $(k, s)_{max}$ selon 5.7

(b) Fonction de courant $\bar{\psi}(y)$ du mode le plus instable pour $Gr_p = 1,6 \cdot 10^6$

Figure 5.2 – Résultats obtenus avec le code d'analyse de stabilité linéaire temporelle ST-SCI dans le cas visqueux avec approximation de Boussinesq pour $\Delta C = 5 \cdot 10^{-3}$ et $k \in [0; 15]$

de la vitesse atteinte au sein de la suspension lors de la déstabilisation de Rayleigh-Taylor. Nous considérons ici le cas de la cavité carrée fermée bidimensionnelle présentant une stratification de fraction volumique initiale :

$$C(t = 0, y) = \begin{cases} 10^{-2} & \text{si } y \geq 1/2 \\ 5 \cdot 10^{-3} & \text{si } y < 1/2 \end{cases}$$

à laquelle on ajoute un bruit Gaussien de 1% pour favoriser le déclenchement de l'instabilité. Des conditions aux limites de glissement sur les parois latérales de la cavité et de non-glissement sur les parois horizontales sont imposées pour la vitesse ainsi qu'un flux nul pour la fraction volumique en particules. Ces conditions aux limites imposent $k = n \frac{\pi}{L}$ avec $n \in \mathbb{N}^*$ pour des instabilités se développant fortement. Nous étudions un saut de concentration de valeur $\Delta C = 5 \cdot 10^{-3}$ pour différentes valeurs du Grashof particulaire. Les termes de sédimentation et de diffusivité sont ici négligés ($Sc \gg \mathcal{N}$ et $Sc \gg 1$).

La norme L^2 du champ de vitesse $\|\mathbf{u}\|_{L^2(\Omega)}$ est évaluée au cours du temps (cf. figure 5.3) et permet de déterminer le taux de croissance de l'instabilité s par la relation suivante, valable au début du développement de l'instabilité (domaine linéaire) :

$$\|\mathbf{u}\|_{L^2(\Omega)}(t) \propto \exp(st)$$

La sortie du domaine linéaire se traduit par une limitation de la croissance de l'instabilité puis des oscillations liées au phénomène de ballonnement (« sloshing ») de la zone de fluide surchargée en particules. Nous pouvons déterminer une borne supérieure pour $\|\mathbf{u}\|_{L^2(\Omega)}$, basée sur un bilan d'énergie mécanique du fluide. L'énergie potentielle de pesanteur maximale du fluide est celle de l'état initial, tandis que le système possède une énergie potentielle minimale lorsque les deux strates sont inversées. Comme l'énergie mécanique

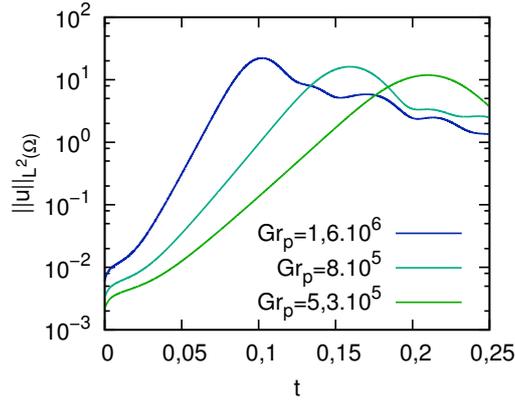


Figure 5.3 – Norme L^2 du champ de vitesse $\|\mathbf{u}\|_{L^2(\Omega)}(t)$ lors de la simulation numérique d'une cavité carrée fermée initialement stratifiée pour différentes valeurs du Grashof particulaire $Gr_p \in \{5,3.10^5; 8.10^5; 1,6.10^6\}$

ne peut que décroître au cours de l'évolution en raison des phénomènes de dissipation visqueuse, l'écart (en valeur absolue) entre ces deux valeurs est une borne supérieure de l'énergie cinétique du fluide :

$$E_c \approx \frac{\rho(C_l) + \rho(C_h)}{4} \|\mathbf{u}\|_{L^2(\Omega)}^2 < |\Delta E_p| = \frac{\Delta \rho g L^3}{4}$$

entraînant l'inégalité adimensionnée :

$$\|\mathbf{u}\|_{L^2(\Omega)} < \|\mathbf{u}\|_{L^2(\Omega),max} = \sqrt{\frac{1}{2} Gr_p \Delta C} \quad (5.15)$$

Pour $Gr_p = 1,6.10^6$, comme le montre la figure 5.4(a), nous observons le développement exponentiel d'un polype (correspondant au mode $n = 2$), ce qui est cohérent avec la valeur de $k_{max}/\pi = 2,7$ obtenue par l'analyse de stabilité linéaire. À titre de comparaison, la figure 5.4(b) est une photographie prise par Klouzek et al. [99] d'un polype de Rayleigh-Taylor observé lors de la sédimentation de cristaux de spinelle dans du verre fondu traité à 950°C pendant 23 h. Les valeurs des taux de croissances obtenues par simulation numérique directe sont reportées dans le tableau 5.1 et montrent un très bon accord avec les valeurs attendues d'après l'analyse et données par la relation 5.7. La légère différence entre ces valeurs est liée a priori au confinement vertical et à l'amortissement par diffusion numérique. Sont également reportées, pour chaque Grashof particulaire, la norme L^2 maximale de la vitesse obtenue au cours de la simulation, qui est bien inférieure à la borne analytique donnée par la relation 5.15.

Tableau 5.1 – Comparaison quantitative entre simulation numérique directe et analyse de stabilité linéaire de la croissance des instabilités de Rayleigh-Taylor dans une suspension de particules diluée et stratifiée

Gr_p	s (simu.)	s_{max}	$\max(\ \mathbf{u}\ _{L^2(\Omega)})$ (simu.)	$\ \mathbf{u}\ _{L^2(\Omega),max}$
$5,3.10^5$	50,9	54,0	11,8	36,4
8.10^5	67,1	71,1	16,1	44,7
$1,6.10^6$	105	113	22,1	63,2

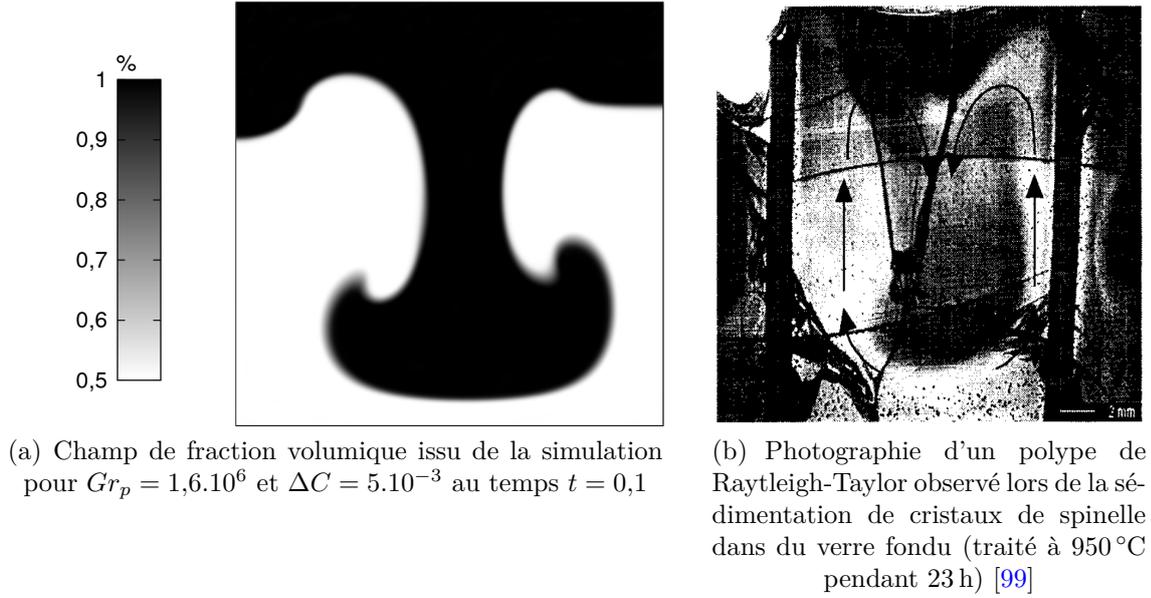


Figure 5.4 – Comparaison des résultats de la simulation de sédimentation en nuage avec des observations expérimentales de cristaux de spinelle dans du verre fondu

5.2 Sédimentation dans un fluide au repos

Si la section précédente s'intéresse au transport de particules dans une situation de stratification initiale, nous nous intéressons dans cette partie à l'étude de la sédimentation des particules dans une suspension initialement homogène présentant donc une tendance à la décantation. Contrairement aux instabilités de Rayleigh-Taylor, ce processus est totalement modélisé par l'équation de transport des particules 2.40 à travers les termes de sédimentation et de diffusion.

5.2.1 Sédimentation totale

Nous dérivons dans cette section une évaluation de la fraction volumique obtenue en fond de domaine après sédimentation totale des particules. La solution d'équilibre est indépendante de la fonction de thermo-dépendance f_ν qui n'agit que sur le régime transitoire du processus. Dans le cas d'un entravement négligeable ($\alpha = 0$), elle est de la forme (après application de la conservation de la quantité totale de particules) :

$$C(t \rightarrow +\infty) = \frac{\mathcal{N}\bar{C} \exp(-\mathcal{N}y)}{1 - \exp(-\mathcal{N})}$$

où \bar{C} est la fraction volumique moyenne de la suspension, qui est égale à la fraction volumique initiale dans le cas d'un état initial uniforme. Quelle que soit la valeur de l'exposant d'entravement $\alpha > 1$, la fraction volumique à la bordure supérieure du domaine ($y = 1$) est minimale. À la bordure inférieure du domaine ($y = 0$), elle est maximale et on montre qu'elle vaut à l'équilibre, pour \mathcal{N} suffisamment grand et \bar{C} suffisamment faible :

$$C_{max} = C_a \left(1 - \left[1 + (\alpha - 1)\mathcal{N} \frac{\bar{C}}{C_a} \right]^{\frac{1}{1-\alpha}} \right) + O(C_{min}) \quad (5.16)$$

qui est une fonction croissante de \mathcal{N} et \bar{C} et décroissante de l'entravement α (cf. figure 5.5). Cette valeur est systématiquement inférieure à C_a tant que $\alpha > 1$, condition également présente dans l'étude de Richardson et Zaki [53]. On rappelle que la valeur admise dans notre cas de faible nombre de Reynolds particulière est $\alpha = 4,65$.

Démonstration. À l'équilibre, le flux est uniformément nul :

$$\begin{aligned} \frac{\partial C}{\partial y} + \mathcal{N}C \left(1 - \frac{C}{C_a}\right)^\alpha &= 0 \\ \Rightarrow \frac{\partial}{\partial y} \left(\frac{\left(1 - \frac{C}{C_a}\right)^{1-\alpha}}{1-\alpha} \right) &= \mathcal{N} \frac{C}{C_a} \end{aligned}$$

En intégrant cette expression sur le domaine puis en considérant $C(y=1) = C_{min}$ négligeable devant C_a , ce qui est valable pour \mathcal{N} suffisamment grand et \bar{C} suffisamment faible, on obtient la relation voulue. \square

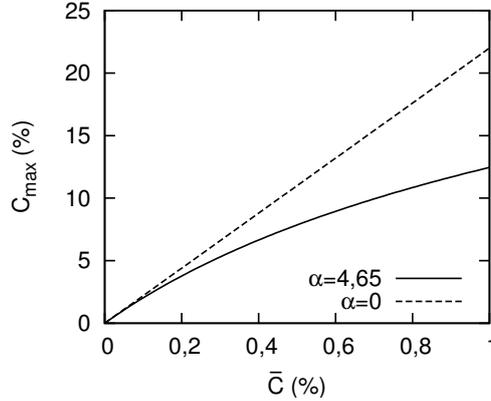


Figure 5.5 – Fraction volumique maximale à l'équilibre en fond de domaine pour $\mathcal{N} = 22$ et $C_a = 0,6$ en fonction de la fraction volumique moyenne

5.2.2 Comparaisons expérimentales

Configuration

Nous proposons de vérifier la consistance du modèle de transport de particules par la comparaison directe entre des champs de fraction volumique expérimentaux obtenus par un processus de sédimentation dans un fluide au repos et les prédictions du modèle. L'ensemble des expériences est mené sur des simulants de verres nucléaires de type UOx chargés en particules de platinoïdes (RuO_2 , Pd-Te, dont la taille micrométrique assure un régime de diffusion hydrodynamique et non brownien) en concentrations différentes. Les mesures rhéologiques réalisées sur le verre sans particules de platinoïdes indiquent que sa viscosité suit une loi VFT (voir formule 2.32) de paramètres $A = 3,38 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$, $B = 3,88 \cdot 10^4 \text{ J/mol}$ et $T_v = 691 \text{ K}$. Pour l'ensemble des quatre expériences menées, le protocole de traitement thermique et d'analyse des échantillons s'est décliné ainsi :

- Dans un premier temps, une masse de verre chargé en platinoïdes connue est introduite dans un creuset cylindrique sous forme de broyat ;

- Le creuset est ensuite placé dans un four de laboratoire permettant le traitement thermique sans agitation (palier de sédimentation d'une durée prescrite suivi d'un palier de recuit autour de la température de transition vitreuse) ;
- Après refroidissement, l'échantillon est coupé verticalement et soumis à une analyse par LIBS où les différents points de mesure sont répartis uniformément sur une verticale de l'échantillon. La fraction volumique en particules est alors mesurée par l'intensité d'une raie d'émission caractéristique de l'élément constitutif (située dans le proche ultraviolet), considérée proportionnelle (le coefficient de proportionnalité est déterminé par la condition de conservation de la fraction volumique moyenne dans l'échantillon). L'incertitude sur la mesure par LIBS est estimée à 5 % relatif sur la fraction volumique et $\pm 0,5$ mm pour la position verticale.

Les caractéristiques de chaque expérience sont regroupées dans le tableau 5.2. Nous avons réalisé trois premières expériences dans des conditions de température uniforme (1200 °C ou 1300 °C). Lors de la quatrième expérience, le verre a au contraire été soumis à un gradient vertical de température uniforme et constant dans la zone de verre non figé (de conductivité thermique approximativement uniforme). La surface du bain a été maintenue à $T_h = 1215$ °C tandis que le bas de l'échantillon est refroidi de telle sorte qu'une température de 839 °C soit relevée à une hauteur de 1,75 cm dans l'échantillon. Bien que les variations de conductivité thermique du verre en-dessous de cette température ne permettent pas l'établissement d'un gradient uniforme de température dans tout l'échantillon, la température est quand même extrapolée linéairement dans cette région froide car elle ne joue plus aucun rôle à court terme puisque la « solidification » du verre à ces températures empêche toute sédimentation. Ainsi, la situation est équivalente à une situation de gradient uniforme dans tout l'échantillon avec une température imposée en bas de $T_c = 592$ °C. Cette configuration permet d'éviter le déclenchement d'instabilités de Rayleigh-Bénard. Des mesures de température ont été menées dans l'échantillon afin de contrôler la distribution de température. Ce type de configuration ne présente pas non plus d'effet de thermophorèse [49].

Tableau 5.2 – Caractéristiques des expériences de sédimentation réalisées sur des verres chargés en particules de platinoïdes - les éléments entre parenthèses sont présents en suspension mais ne sont pas considérés

Expérience	Particules	C %	Hauteur cm	Température °C	Durée h
1	RuO ₂	0,53	2,6	1300	16
2	RuO ₂ (Pd)	0,52	5,0	1200	25 – 101
3	RuO ₂ (Pd)	0,48	4,9	1200	211
4	Pd	0,19	4,5	592 – 1215	65

Analyse de la dispersion des particules

Un des paramètres importants dans les expériences de sédimentation est la granulométrie des particules utilisées et notamment l'écart type relatif σ de leur dispersion de diamètre. Cette valeur entre notamment en jeu dans l'évaluation du coefficient de diffusivité κ donné par la formule 2.42. La détermination expérimentale de la distribution des tailles de particules est une problématique courante dans l'étude des suspensions et des

milieux granulaires. Des méthodes et des algorithmes d'analyse d'image ont été développés pour y répondre. Nous utiliserons ici une technique dite de stéréologie [112] permettant de résoudre le « problème corpusculaire ». Il s'agit d'estimer la distribution des tailles de particules (appelée distribution réelle) à partir de la mesure de la distribution des tailles de particules sur des sections planes du verre (appelée distribution apparente). Ces deux distributions diffèrent en général, notamment pour des raisons géométriques. En effet, une suspension de particules monodisperse donne par exemple une dispersion de diamètres apparents, le plan de coupe ne passant pas systématiquement par le centre des particules. Cette technique présente l'avantage d'être facile à implémenter et très peu coûteuse en capacités de calcul. Elle a été initiée par les travaux de Wicksell [113] et modifiée en particulier par Saltykov [114]. L'estimation la plus simple à mettre en œuvre, utilisée dans nos travaux, présuppose une répartition spatiale homogène de particules de forme sphérique dans l'échantillon analysé. Nous étudierons donc uniquement la dispersion des particules de palladium-tellure dans l'échantillon 2 présenté dans le chapitre précédent. L'objectif est d'obtenir ainsi une première évaluation du paramètre σ .

100 sections carrées de côté $l = 164 \mu\text{m}$ sont extraites des données de microtomographie aux rayons X réalisées et présentées dans le chapitre précédent. Les longueurs seront adimensionnées par la taille de la coupe l . Dans un premier temps, nous évaluons la distribution apparente expérimentale de l'ensemble des coupes. Une technique d'extraction du contour des particules et de leur périmètre implémentée dans le logiciel open source IMAGEJ est utilisée. Elle permet d'obtenir une liste d'environ 2600 rayons observés³. Nous notons $R = 3,7 \cdot 10^{-2}$ le rayon maximal adimensionné et définissons $n = 150$ classes de rayons de largeur $\Delta = R/n$:

$$(|(i-1)\Delta; i\Delta|)_{1 \leq i \leq n}$$

Les sections de particules dont l'aire est inférieure à une valeur seuil ($2,9 \cdot 10^{-5}$) constituant un bruit de mesure potentiel, elles ne sont pas prises en compte dans le calcul de l'histogramme apparent expérimental. Soit Φ^{2D} et Φ^{3D} les vecteurs histogrammes des distributions respectivement apparente et réelle (normalisés au sens de la norme 1). Ainsi, par définition, Φ_i^{3D} est la fraction de particules de rayon compris entre $(i-1)\Delta$ et $i\Delta$ dans l'échantillon. Une analyse géométrique montre alors que, à une normalisation près :

$$\Phi^{2D} = \mathbf{B}\Phi^{3D} \quad (5.17)$$

où la matrice définie positive \mathbf{B} est donnée par :

$$B_{ij} = \begin{cases} \sqrt{j^2 - (i-1)^2} - \sqrt{j^2 - i^2} & \text{si } i \leq j \\ 0 & \text{sinon} \end{cases}$$

La résolution du problème corpusculaire peut donc se faire grâce à l'inversion de \mathbf{B} (« Wicksell unfolding »). Toutefois, cette technique entraîne souvent des valeurs négatives dans le vecteur histogramme de la distribution réelle en raison du bruit de mesure de la distribution apparente expérimentale et de l'absence de comptage des rayons faibles. Nous

3. Les particules de palladium-tellure étant convexes, la détermination des rayons apparents dans les coupes se base sur la mesure du périmètre du contour de la section de particule p . D'après la formule de Barbier, en définissant le rayon apparent comme la moitié de la moyenne des diamètres de Féret dans toutes les directions du plan de coupe, on a la relation $p = 2\pi r$ [112].

utiliserons une méthode alternative inspirée de [115] en présupposant une distribution réelle de type log-normale $\text{Log-}\mathcal{N}(\mu, v)$ soit, à une normalisation près :

$$\Phi_i^{3D} = \frac{1}{i\Delta\sqrt{2\pi v}} \exp\left(-\frac{(\ln(i\Delta) - \mu)^2}{2v}\right)$$

La distribution log-normale est typique des suspensions de particules et des justifications théoriques ont été proposées [116]. Les paramètres μ et v sont alors ajustés afin de maximiser la correspondance entre Φ^{2D} donné par 5.17 et l'histogramme apparent expérimental. L'écart type relatif de la distribution réelle est donné par :

$$\sigma = \sqrt{e^v - 1}$$

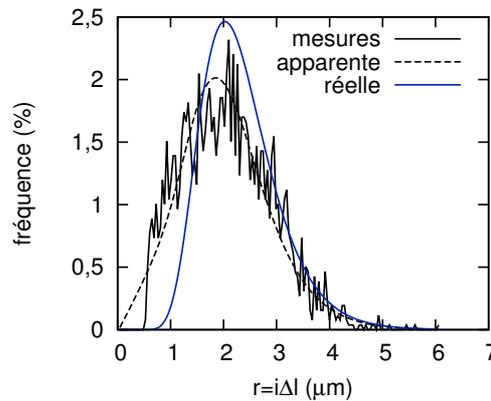


Figure 5.6 – Distributions réelle et apparente des rayons de particules de palladium-tellure dans un échantillon de verre

Les résultats sont présentés sur la figure 5.6. Nous observons clairement que le pic de fréquence dans la distribution apparente se situe à des rayons plus faibles que celui de la distribution réelle. Les sections de particules dans le plan de coupe ont en effet un rayon au plus égal au rayon réel de la particule. Une fréquence plus importante des faibles rayons apparents est observée, également due au processus de coupe. Une valeur $\sigma = 0,3$ est obtenue pour l'échantillon étudié. Nous rappelons que cette valeur constitue seulement une première estimation de l'écart type relatif des suspensions de particules de nos expériences car, entre autres, les particules de dioxyde de ruthénium ne sont pas considérées et les particules de palladium-tellure sont supposées parfaitement sphériques.

Simulation numérique de la sédimentation individuelle

L'ensemble des expériences est simulé à l'aide du code développé C-SCI, en ajustant les paramètres τ_0 , κ_0 et C_a autour des valeurs de références données par les formules analytiques. Dans la configuration présentée, les ordres de grandeur caractéristiques de la suspension de particules sont $d_p \sim 10 \mu\text{m}$, $\eta \sim 4 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ et $\rho_p - \rho_f \sim 6.10^3 \text{ kg/m}^3$, donnant une première évaluation de la vitesse de sédimentation de Stokes :

$$\tau_0 = \frac{d_p^2(\rho_p - \rho_f)g}{18\eta} \approx 10^{-7} \text{ m/s}$$

Le temps de traitement thermique varie, pour les différentes expériences, entre 16 h et plus de 200 h. Pour des temps de sédimentation de cet ordre, la formule analytique

obtenue pour la diffusivité d'origine polydispersive 2.42, évaluée avec un écart-type de polydispersion $\sigma = 0,3$ est :

$$\kappa_0 = 2\sigma^2\tau_0^2t \approx 10^{-10} - 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$$

L'exposant d'entravement utilisé est $\alpha = 4,65$. On vérifie que le nombre de Reynolds particulaire est suffisamment faible pour entrer dans le cadre du modèle développé. En effet, $\|\mathbf{u}_p - \mathbf{u}\| = \|\mathbf{u}_p\| \sim \tau_0$, entraînant :

$$Re_p \sim \frac{d_p\tau_0}{\nu_0} \approx 10^{-9} \ll 1$$

Nous négligerons dans la modélisation l'influence des billes de palladium-tellure sur la sédimentation du dioxyde de ruthénium, ce qui constitue une approximation. En effet, les particules influencent la sédimentation des autres particules à travers le phénomène non linéaire d'entravement, si bien que les espèces ne peuvent pas être traitées séparément (pas de propriété de superposition). Toutefois, aux concentrations rencontrées, faibles devant leur fraction d'agglomération maximale, l'impact des billes de palladium-tellure est en effet limité.

Résultats

Les figures 5.7 et 5.8 rassemblent les profils expérimentaux, comparés aux résultats de simulation. Le tableau 5.3 référence les paramètres de simulation utilisés pour chaque expérience. Dans les cas isothermes, un accord satisfaisant est observé entre modèle et expérience, avec une agglomération des particules en fond de creuset et un appauvrissement quasi-total du verre surnageant en particules. L'écart observé dans la couche sédimentée est attribué à une diminution de la diffusivité des particules dans cette zone ainsi qu'à l'influence par entravement des particules de palladium-tellure. Dans le cas de l'expérience non-isotherme, la décantation a lieu dans la zone de verre fluide tandis que la zone figée ne subit aucune évolution significative. L'écart entre mesures et modèle observé pour $y > 0,7$ est a priori dû à la présence résiduelle de particules de palladium de très petite taille ainsi qu'à la présence systématique de palladium dissout dans le verre ne sédimentant pas et non pris en compte dans le modèle. Un fond homogène de concentration volumique proche de la valeur de la limite de solubilité de l'espèce concernée est alors observé. Les valeurs du paramètre \mathcal{N} sont comparables entre les différentes expériences, avec une tendance des particules de palladium à être plus diffusives. La faible valeur de la fraction volumique d'agglomération maximale pour le dioxyde de ruthénium est en accord avec les valeurs expérimentales reportées dans d'autres études $C_a \approx 6\%$ [117].

Tableau 5.3 – Paramètres du modèle de transport utilisés pour la simulation numérique des expériences de sédimentation réalisées sur des verres chargés en particules de platinoïdes

Expérience	τ_0 $\times 10^{-7} \text{ m/s}$	κ_0 $\times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$	C_a %	\mathcal{N}
1	1,5	0,20	6	19,5
2	3,5	1,0	6	17,5
3	3,5	1,0	6	17,2
4	5,7	3,5	60	7,3

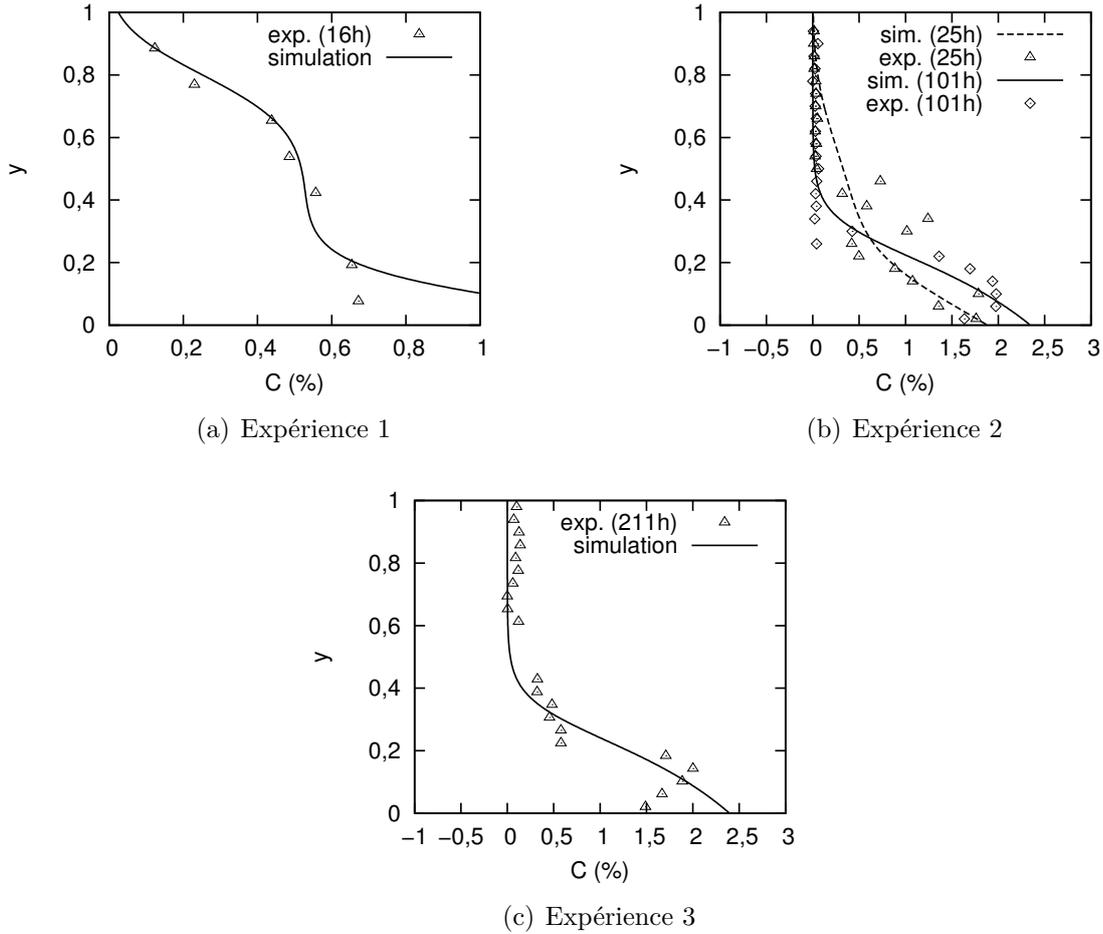


Figure 5.7 – Comparaison des profils expérimentaux et issus de la simulation d’expérience de sédimentation de verres chargés en particules de platinoïdes isothermes - les barres d’erreur ont la taille des symboles

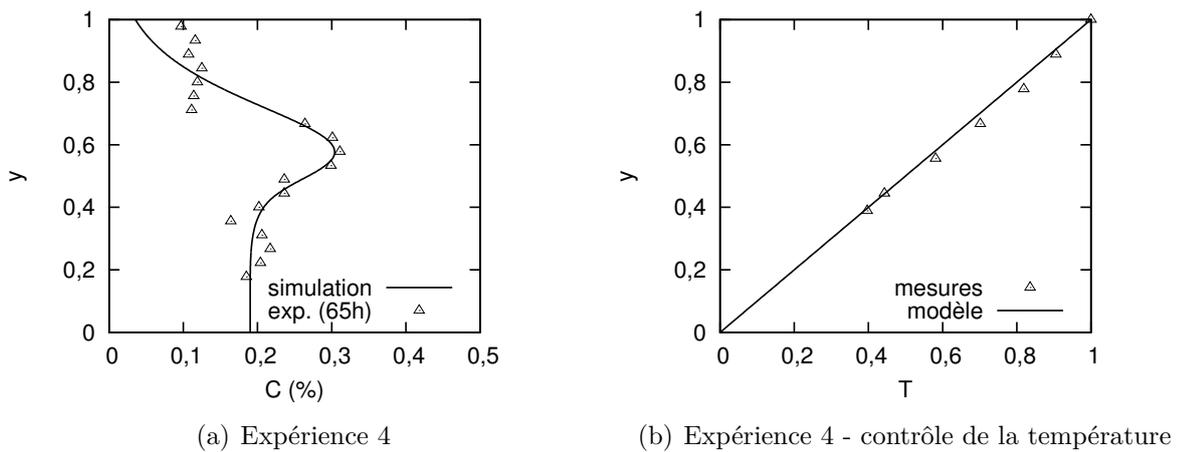


Figure 5.8 – Comparaison du profil expérimental et issu de la simulation d’une expérience de sédimentation de verre chargé en particules de platinoïdes et soumis à un gradient thermique - les barres d’erreur ont la taille des symboles

5.3 Conclusion

Ce chapitre apporte des réponses détaillées à la question du transport des particules de platinoïdes dans un verre élaboré en creuset froid. En particulier, nous avons montré :

- Que l'évolution d'une stratification de concentration de particules de platinoïdes satisfaisait l'équation de dispersion des instabilités de Rayleigh-Taylor dans le cas des faibles nombres d'Atwood ;
- Que la décantation des particules dans un verre au repos pouvait être prédite avec précision grâce à notre approche Eulérienne, et notamment dans le cas de suspensions présentant un gradient de température et donc une solidification partielle du verre. Pour cela, des expériences de sédimentation ont été menées sur des échantillons de verre nucléaire de type UOx et une technique originale d'obtention de profils de concentration par LIBS a été mise en œuvre.

L'étude réalisée permet notamment l'évaluation précise des temps caractéristiques de chaque phénomène de transport des particules identifié, présentés dans le tableau 5.4.

Tableau 5.4 – Temps caractéristiques des différents phénomènes de transport de particules et application numérique au cas de fusion de verre en creuset froid pour des paramètres nominaux de fonctionnement

Phénomène	Temps caractéristique s	Tendance
Advection par le fluide	$LU^{-1} \sim 1$	Homogénéisation par diffusion
Rayleigh-Taylor	$\nu^{\frac{1}{3}} (\beta_p \Delta C g)^{-\frac{2}{3}} \sim 1$	Homogénéisation par diffusion
Sédimentation individuelle	$L\tau^{-1} \sim 10^6$	Séparation

Ainsi, pour une taille de particules nominale $d_p \sim 10 \mu\text{m}$, la comparaison des échelles de temps indique que le phénomène de sédimentation individuelle ne peut pas entraîner l'accumulation de platinoïdes en fond de creuset. Cette tendance ne peut apparaître que lors d'une augmentation considérable de la taille des particules ou bien leur agrégation due à des phénomènes physico-chimiques non abordés dans cette modélisation.

Chapitre 6

Comportement thermique du creuset froid

6.1	Loi d'échelle de flux thermique en régime de convection forcée	110
6.1.1	Principe d'évaluation des transferts thermiques	110
6.1.2	Analyse de couche limite à viscosité constante	111
6.1.3	Impact d'une viscosité fortement thermo-dépendante	113
6.1.4	Détermination d'une température de mélange	117
6.2	Réponse dynamique	118
6.3	Comparaisons expérimentales	120
6.3.1	Configuration	120
6.3.2	Résultats	121
6.4	Conclusion	123

Un des objectifs clé de la modélisation multiphysique est de disposer d'une compréhension fine et d'une évaluation prédictive des transferts thermiques ayant lieu au sein du procédé d'élaboration. Cette section est dédiée à la compréhension du comportement des flux thermiques reçus par les parois refroidies du creuset lorsque la température de chauffe atteinte au sein du verre varie (soit en raison d'oscillations involontaires, soit lors d'un changement de consigne de conduite du procédé). L'analyse des transferts thermiques dans les modélisations thermohydrauliques est un exercice courant, basée sur une analyse de couche limite [118]. Nous montrons que la forte dépendance à la température de la viscosité du fluide en convection entraîne une modification de la loi de corrélation flux-température et nous déterminons la forme de cette nouvelle loi, faisant intervenir les paramètres de viscosité du fluide, dans le régime de convection forcée stationnaire. Nous nous intéresserons dans un second temps à caractériser la réponse dynamique du creuset froid lors d'une modification de la puissance Joule injectée. Enfin, des comparaisons expérimentales avec les mesures recueillies sur creuset froid permettent de vérifier la loi de corrélation proposée.

6.1 Loi d'échelle de flux thermique en régime de convection forcée

6.1.1 Principe d'évaluation des transferts thermiques

Dans une volonté de distinguer les effets physiques, on prendra dans le cadre de cette étude $f_\lambda = f_{c_p} = 1$ et le transport radiatif sera négligé. La condition aux limites thermique est également simplifiée. Sans échanges radiatifs aux parois, la condition aux limites obtenue, dite de Robin, s'écrit :

$$-\frac{\partial T}{\partial n} = Bi(T - T_{ext})$$

où l'on rappelle l'expression du nombre de Biot caractérisant le contact thermique entre le fluide et les surfaces solides $Bi = \frac{h_{ext}L}{\lambda}$. Nous utiliserons deux cas limites courants de cette condition :

- Dans le cas d'un bord associé à l'imposition des températures chaude et froide, on considère un contact thermique parfait, c'est-à-dire le cas des grands nombres de Biot ($Bi \gg 1$), menant à la condition aux limites de Dirichlet :

$$T = T_{ext}$$

T_{ext} prenant la valeur T_h ou T_c ;

- Dans le cas d'une frontière thermiquement isolante (adiabatique) c'est-à-dire le cas des faibles nombres de Biot ($Bi \ll 1$), on obtient la condition aux limites de Neumann homogène :

$$\frac{\partial T}{\partial n} = 0$$

Avec ces simplifications, le flux thermique dimensionné reçu par la paroi froide S_c est donné par :

$$\Phi = \int_{S_c} (-\lambda \nabla T) \cdot \mathbf{n} ds = -\lambda \int_{S_c} \frac{\partial T}{\partial n} ds$$

Le nombre de Nusselt global froid Nu est défini comme le rapport des flux convectif et purement conductif à travers la paroi froide :

$$Nu = \frac{\int_{S_c} \frac{\partial T}{\partial n} ds}{\int_{S_c} \frac{\partial T}{\partial n} ds|_{\nabla^2 T=0}}$$

où $\int_{S_c} \frac{\partial T}{\partial n} ds|_{\nabla^2 T=0}$ est un terme purement géométrique. On rappelle qu'un nombre de Nusselt proche de 1 traduit la domination du transfert thermique par conduction tandis que l'augmentation progressive de ce nombre indique la mise en place et la domination du transfert par convection. Évaluer les déterminants du flux de chaleur revient à déterminer une loi de corrélation pour Nu en fonction des nombres adimensionnés du problème (notés ici X_1, X_2, \dots pour la généralité du discours). Les lois de corrélation entre flux thermique et nombres adimensionnés sont généralement des lois puissances, au moins dans certaines gammes de paramètres. Nous définissons de manière générale l'exposant de transfert thermique local γ , s'apparentant à une élasticité, et permettant d'évaluer la sensibilité du flux thermique au différentiel de température imposé du système ΔT :

$$\gamma = \sum_j \gamma_j$$

où

$$\gamma_j = \frac{X_j}{Nu} \frac{\partial Nu}{\partial X_j}$$

les X_j désignant les paramètres adimensionnés tels que $X_j \propto \Delta T$. Si γ_j est indépendant ou faiblement variable avec X_j , alors on a la relation :

$$Nu \sim X_j^{\gamma_j}$$

Dans cette étude, une loi d'échelle pour le nombre de Nusselt est dérivée de l'analyse des équations adimensionnées et vérifiée par simulation numérique dans le cadre d'une géométrie classique de cavité carrée fermée. Nous nous attachons également à proposer une loi locale affine de type Newton pour l'évaluation pratique des transferts thermiques.

6.1.2 Analyse de couche limite à viscosité constante

Nous considérons le cas de convection forcée où la convection thermique naturelle et solutale sont négligeables ($Ri \ll 1, Ri_p \ll 1$). Tout comme le cas d'une fonte de verre brassée, l'écoulement est laminaire, de faible Reynolds et de Prandtl relativement élevé. Comme présenté sur la figure 6.1, nous considérons un domaine bidimensionnel carré Ω de côté L (dans le plan orthogonal à \mathbf{e}_z par convention) muni d'une paroi chaude verticale (pas d'induction électromagnétique), d'une paroi froide verticale et de deux parois adiabatiques horizontales. La paroi chaude impose une vitesse verticale orientée vers le haut $U\mathbf{e}_y$. Pour la vitesse, nous imposons une condition de non glissement sur les parois chaude et froide de la cavité et de glissement sur les parois adiabatiques.

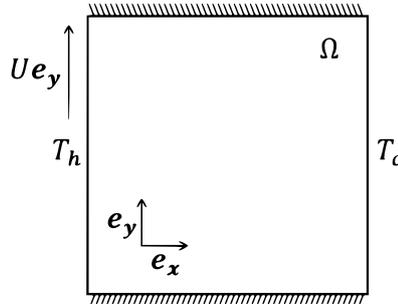


Figure 6.1 – Configuration de la cavité carrée fermée

On rappelle que dans le cas 2D, les « surfaces » possèdent la dimension d'une longueur. La relation entre flux surfacique dimensionné et nombre de Nusselt s'écrit alors :

$$\Phi = -\lambda \int_{S_c} \frac{\partial T}{\partial n} ds = -\lambda Nu \int_{S_c} \frac{\partial T}{\partial n} ds|_{\nabla^2 T=0} = \lambda \Delta T Nu$$

Lorsque la viscosité est indépendante de la température, le système adimensionné à résoudre 2.26-2.27-2.28 est invariant lors d'un changement des températures du système (lorsque les autres paramètres physiques sont constants). Pour cette raison, le nombre de Nusselt ne dépend pas des températures du système. Il vient donc directement la loi affine du flux thermique :

$$\Phi = \lambda \Delta T Nu(Re, Pr) \propto T_h - T_c$$

En particulier, l'exposant thermique γ est systématiquement nul. Dans le régime de conduction (faible Reynolds), $Nu \approx 1$. Dans le régime de convection, la loi de corrélation $Nu(Re, Pr)$ est déterminée par les phénomènes de transfert thermique en présence d'une couche limite dynamique créée par une plaque entraînée. Dans le régime de nombre de Prandtl élevé ($Pr > 1$), la couche limite thermique est systématiquement plus fine que la couche limite dynamique et son épaisseur détermine le flux thermique [119]. Une analyse d'échelle permet d'obtenir la loi de corrélation recherchée :

$$Nu \sim Re^{1/2} Pr^{1/3}$$

Démonstration. La preuve passe par l'évaluation de l'épaisseur de couche limite thermique chaude. Le rapport des épaisseurs des couches limites thermique et dynamique est donné par [120] :

$$\frac{\delta_t}{\delta} \sim Pr^{-1/3}$$

On détermine alors l'épaisseur de la couche limite dynamique par l'analyse des équations adimensionnées 2.26 et 2.27. Tout d'abord, dans cette couche limite d'épaisseur δ , on a :

$$x \sim \delta, \quad y \sim 1, \quad v \sim 1, \quad T \sim 1$$

L'équation de conservation de la masse permet de déterminer l'ordre de grandeur de u :

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} = 0 \Rightarrow u \sim \delta$$

L'équation de conservation de la quantité de mouvement projetée sur l'axe x s'écrit :

$$u \frac{\partial u}{\partial x} + v \frac{\partial u}{\partial y} - \frac{1}{Re} \left(\frac{\partial}{\partial x} \left(f_\nu \frac{\partial u}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(f_\nu \frac{\partial u}{\partial y} \right) + \frac{\partial u}{\partial x} \frac{\partial f_\nu}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial x} \frac{\partial f_\nu}{\partial y} \right) = - \frac{\partial p}{\partial x}$$

Les ordres de grandeur du terme d'inertie et du terme visqueux doivent être égaux dans la couche limite, soit :

$$\delta \sim \frac{1}{Re} \frac{1}{\delta} \Rightarrow \delta \sim Re^{-1/2} \quad (6.1)$$

D'où :

$$\delta_t \sim Re^{-1/2} Pr^{-1/3}$$

Enfin, en régime stationnaire, le flux global chaud est identique au flux global froid, donnant le nombre de Nusselt :

$$Nu = \int_{S_h} \frac{\partial T}{\partial n} ds \sim \left| \frac{\partial T}{\partial x} \right| \sim \frac{1}{\delta_t} \sim Re^{1/2} Pr^{1/3}$$

□

Les résultats de simulation sont présentés sur la figure 6.2. Pour $Pr = 200$, on obtient bien $Nu \approx 1$ dans le régime de conduction et $Nu \sim Re^{1/2}$ dans le régime de convection. Nous avons également vérifié la dépendance au nombre de Prandtl en fixant $Re = 7$. L'exposant $1/3$ est bien obtenu pour un nombre de Prandtl suffisamment élevé. La transition vers le régime de convection est observée pour un nombre de Péclet $Pe = RePr \approx 200$. Si l'exposant du nombre de Prandtl montre une certaine généralité, il n'en est pas de même pour l'exposant du nombre de Reynolds qui varie en général, faiblement, selon le type de géométrie considérée [121].

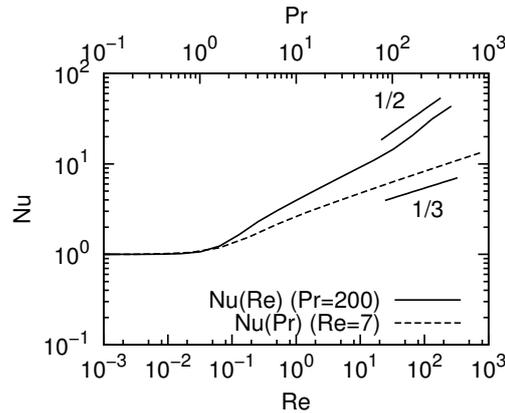


Figure 6.2 – Dépendance du nombre de Nusselt Nu aux paramètres adimensionnés dans le cas d'un fluide de viscosité indépendante de la température - comparaison entre simulation numérique et résultats de l'analyse de couche limite

6.1.3 Impact d'une viscosité fortement thermo-dépendante

L'introduction d'une loi pour la viscosité introduit systématiquement une nouvelle température caractéristique dans le système, non pas due aux conditions expérimentales mais aux caractéristiques intrinsèques du fluide étudié. L'apparition de cette nouvelle température caractéristique appelle à la définition d'un nouveau paramètre adimensionné déterminant dans l'évolution du système thermohydraulique et donc dans l'évaluation du flux thermique [122] et de la stabilité de l'écoulement [123–126]. Dans le cas du modèle VFT, il s'agit de la température de Vogel T_v , présentant une relation directe avec la température de transition vitreuse dans le cas de liquides en surfusion [127]. La présence d'un tel couplage provoque une forte interaction entre couches limites thermiques et dynamiques, notamment lors de la solidification du fluide dans les zones de relative faible température [128]. Cette différence de nature entre zone chaude et froide du système brise les propriétés de symétrie des champs de vitesse et de température rencontrées notamment dans la convection naturelle en cavité fermée [129]. Sieder et Tate [130] semblent avoir été les premiers à proposer l'introduction d'un nouveau paramètre adimensionné dans les lois de corrélation du nombre de Nusselt pour tenir compte de la variation de la viscosité du fluide avec la température. Considérant un changement de viscosité localement affine avec la température, le nombre adimensionné introduit est donné par le rapport $\nu(T_h)/\nu(T_c)$. Toutefois, les lois de corrélation alors proposées sont uniquement valables pour des fluides dont la viscosité ne varie que très faiblement par rapport à un verre proche de sa température de transition vitreuse et ne prennent donc pas en compte un quelconque phénomène de solidification sur les parois recevant le flux thermique. Leur approche est notamment

toujours utilisée pour évaluer les transferts thermiques d'un fluide chaud sous agitation mécanique dans un réservoir cylindrique refroidi, sous la forme de la loi de corrélation de Chilton et al. [131] :

$$Nu \sim Re^{2/3} Pr^{1/3} \left(\frac{\nu(T_h)}{\nu(T_c)} \right)^{0,14}$$

le préfacteur numérique et les exposants pouvant varier légèrement selon la géométrie (notamment la forme de l'agitateur et de la paroi [132]). La détermination de nouvelles lois de corrélation dans le cas d'une viscosité fortement dépendante de la température et de solidification du fluide dans les zones froides a notamment été motivée par l'étude de la convection naturelle des manteaux planétaires [128, 133–136]. D'autres études plus générales ont permis la mise au point de méthodes analytiques et numériques permettant le calcul et la vérification de lois de corrélation du Nusselt [137–139]. L'ensemble de ces travaux proposent chacun une loi de corrélation, dépendante de la loi de viscosité considérée. Mais ils mettent cependant tous en avant un régime de transfert thermique particulier dit de « couche stagnante » (ou de « haut contraste de viscosité ») où une couche de fluide figé ne participant pas à la détermination du flux thermique apparaît. La loi de corrélation du flux thermique est alors obtenue par une étude de couche limite faisant apparaître deux points cruciaux : l'introduction d'un nouveau nombre adimensionné relatif à la dépendance de la viscosité à la température et le choix de la température à laquelle évaluer la viscosité présente dans les nombres adimensionnés classiques. Nous proposons dans cette étude une analyse systématique permettant d'obtenir une loi d'échelle pour le Nusselt dans le cadre de la convection de verres suivant une loi de viscosité de Vogel-Fulcher-Tammann.

La discussion doit donc porter sur l'apparition dans le système de deux nombres adimensionnés relatifs à la loi VFT 2.33, le Pearson Pn et la température de Vogel adimensionnée D . Lorsque le différentiel de température imposé ΔT augmente, le nombre de Pearson augmente et, lorsque $D > 0$ (c'est-à-dire $T_v > T_c$), une portion du fluide est solidifiée au niveau de la paroi froide (et seulement une portion tant que D est suffisamment faible devant 1) tandis que le reste du fluide entre en convection thermique (si le Reynolds Re est suffisamment fort). On a en effet :

$$\lim_{Pn \rightarrow +\infty} f_\nu(T) = \begin{cases} f_\nu^{max} & \text{si } T < D \\ f_\nu^{min} & \text{si } T > D \end{cases}$$

Nous montrons dans cette section la nature très particulière du régime de convection thermique lorsqu'une partie du fluide se « solidifie » au contact de la paroi refroidie. Dans ce type de système semi-fluide, on distingue deux zones, à savoir une zone de thermo-convection et une zone de fluide figé où les transferts thermiques sont d'origine conductive. De manière générale, en régime stationnaire, la présence de deux zones induit la contrainte d'égalité entre le flux thermique traversant la zone fluide et le flux dans la zone de conduction. Cette contrainte du système sous-entend la présence d'un degré de liberté. Dans le cas d'un fluide de viscosité constante au contact d'un solide indéformable conduisant la chaleur (contact supposé suffisamment bon), ce degré de liberté est la température de l'interface fluide-solide. Toutefois, dans le cas d'un fluide se solidifiant, le solide est le fluide figé lui-même et la température de l'interface est donc, par définition, la température de fusion du fluide. Le degré de liberté devient alors l'épaisseur de fluide figé. Le flux traversant la zone fluide ne dépend alors plus du degré de liberté puisqu'il ne dépend que des paramètres du fluide et des conditions aux limites (températures et

forçage imposés) de la zone fluide. Dans ce cas, le flux est donc imposé par la zone en thermo-convection et détermine l'épaisseur de fluide figé par l'équilibrage du flux conductif avec le flux conducto-convectif imposé. La figure 6.3 représente les degrés de liberté dans les deux cas.

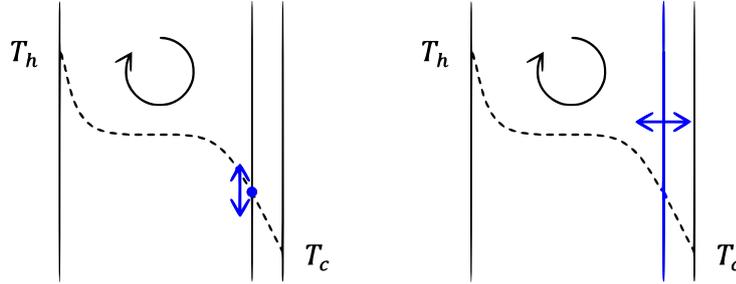


Figure 6.3 – Représentation schématique des degrés de liberté associés au transfert thermique d'une paroi chaude vers une paroi froide dans un système fluide-solide - à gauche le cas d'un solide indéformable, à droite le cas du fluide solidifié au contact de la paroi froide

D'où la dérivation de la loi de corrélation qui suit. Dans le régime de conduction, $Nu \approx 1$ et $\gamma = 0$. Dans le régime de convection (haut Reynolds et haut Pearson), l'introduction de la viscosité thermo-dépendante engendre un couplage entre thermique et hydraulique, inexistant dans le cas de convection forcée comme montré auparavant. Nous faisons alors l'hypothèse que le nombre de Nusselt observé est équivalent au nombre de Nusselt qui serait observé dans un fluide à viscosité constante et égale à la viscosité évaluée à la température moyenne $(T_v + T_h)/2$ soit en valeur adimensionnée $(1 + D)/2$.

$$\begin{aligned} Nu &\sim \left(Re \frac{\nu_0}{\nu(\frac{T_v+T_h}{2})} \right)^{1/2} \left(Pr \frac{\nu(\frac{T_v+T_h}{2})}{\nu_0} \right)^{1/3} \\ &\sim Re^{1/2} Pr^{1/3} f_\nu((1 + D)/2)^{-1/6} \end{aligned}$$

Le troisième facteur contribue à la dépendance du nombre de Nusselt au nombre de Pearson $Pn = \frac{R^n \Delta T}{B}$ à travers la loi de viscosité f_ν . L'exposant de transfert thermique local devient alors non nul :

$$\begin{aligned} \gamma &= \frac{Pn}{Nu} \frac{\partial Nu}{\partial Pn} = Pn f_\nu((1 + D)/2)^{1/6} \frac{\partial f_\nu((1 + D)/2)^{-1/6}}{\partial Pn} \\ &= - \frac{Pn}{6 f_\nu((1 + D)/2)} \frac{\partial f_\nu((1 + D)/2)}{\partial Pn} \\ &= \frac{1}{3 Pn(1 - D)} \end{aligned}$$

qui est lentement variable à haut Pn , entraînant donc une dépendance de la forme $Nu \sim Pn^\gamma$. Nous obtenons en particulier $\gamma > 0$ et $\lim_{Pn \rightarrow +\infty} \gamma = 0$. En valeurs dimensionnées :

$$\gamma = \frac{B}{3 R^n (T_h - T_v)} = \frac{1}{3} \ln \left(\frac{\nu(T_h)}{A} \right)$$

L'exposant thermique obtenu est ainsi fortement dépendant des paramètres dimensionnés de viscosité du verre à savoir son énergie d'activation B et sa température de

Vogel T_v . L'expression montre en particulier que l'exposant thermique non nul en régime de convection est dû à l'écart entre la viscosité du fluide à la température chaude considérée et sa viscosité à très haute température A . Autrement dit, γ traduit le phénomène de fluidification avec l'augmentation de Pn et donc l'augmentation du flux thermique convectif.

Nous déterminons enfin la dépendance en $D = \frac{T_v - T_c}{\Delta T}$ pour $D > 0$. La portion de fluide solidifiée au contact de la paroi froide contient en particulier l'isotherme T_v : tout se passe alors comme si le fluide était au contact d'une paroi froide à la température T_v , et ce indépendamment de la température réelle de cette paroi T_c . Ainsi, le flux thermique doit être égal à celui de la situation où $T_c = T_v$, c'est-à-dire $\Delta T' = \Delta T(1-D)$, $Pn' = Pn(1-D)$ et $D' = 0$. On notera en particulier que γ est invariant dans cette transformation. Soit donc, pour le flux thermique, pour γ faiblement variable :

$$\begin{aligned}\Phi &\approx \lambda \Delta T (1-D) Nu(Re, Pr, Pn(1-D)) \\ &\sim \lambda \Delta T Re^{1/2} Pr^{1/3} Pn^\gamma (1-D)^{1+\gamma}\end{aligned}$$

donnant pour le nombre de Nusselt la loi d'échelle finale :

$$Nu \sim Re^{1/2} Pr^{1/3} Pn^\gamma (1-D)^{1+\gamma} \quad (6.2)$$

Cette loi traduit en particulier le fait que, dans le régime de convection et si $T_v > T_c$, le flux thermique est indépendant de la température de la paroi froide :

$$\Phi \propto (T_h - T_v)^{1+\gamma} \quad (6.3)$$

D'autre part, l'exposant thermique obtenu montre des valeurs bien supérieures aux valeurs typiques des lois de corrélation à viscosité constante (dans le cas de convection thermique naturelle, une analyse de couche limite, non présentée ici, montre que $\gamma = 1/4$) traduisant la possibilité de variations particulièrement fortes du flux thermique lors de modifications de la température chaude.

Cette loi de corrélation du flux thermique en régime de convection forcée est comparée aux résultats de simulations numériques stationnaires (cf. figure 6.4). Pour cela, on fixe les nombres de Prandtl $Pr = 200$ et de Reynolds $Re = 10$, assurant ainsi le régime convectif de transfert thermique (nombre de Péclet $Pe = RePr > 200$). Le problème thermohydraulique est alors résolu pour un ensemble de valeurs des deux nombres adimensionnés introduits par la loi VFT. Dans un premier temps, on fixe la température de Vogel adimensionnée $D = 0,1$. Le nombre de Pearson Pn est augmenté graduellement à partir d'une valeur minimale où une partie du fluide n'est pas solidifiée (simulation incohérente dans le cas d'un forçage si le fluide est totalement solidifié). À partir d'un nombre fini de couples $(Pn^i, Nu^i)_i$ obtenus par simulation numérique et classés par ordre de Pn^i croissant, l'exposant local $\gamma^i = \gamma(Pn^i)$ est évalué numériquement par différences finies centrées :

$$\gamma^i = \frac{\ln(Nu^{i+1}) - \ln(Nu^{i-1})}{\ln(Pn^{i+1}) - \ln(Pn^{i-1})}$$

Dans un second temps, en fixant $Pn = 0,7$, nous montrons que la dépendance en D est également cohérente en prenant la valeur centrale de D pour l'évaluation de l'exposant

$\gamma \approx 0,5$. Les résultats sont présentés sur la figure 6.5, où l'on observe un bon accord avec le modèle développé.

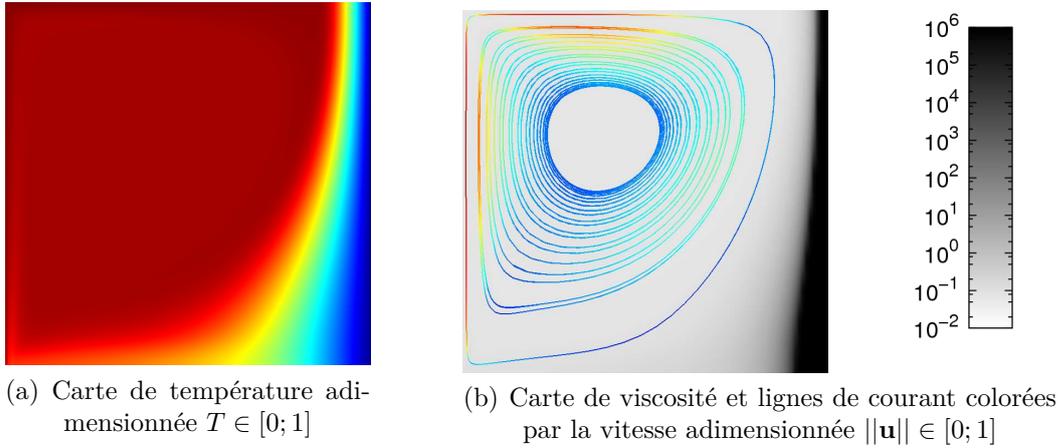


Figure 6.4 – Résultats de simulation numérique de la cavité fermée entraînée avec un fluide à viscosité fortement dépendante de la température pour les paramètres $Pn = 0,6$, $D = 0,1$, $Pr = 200$ et $Re = 10$. Une couche de fluide solidifié est présente le long de la paroi froide

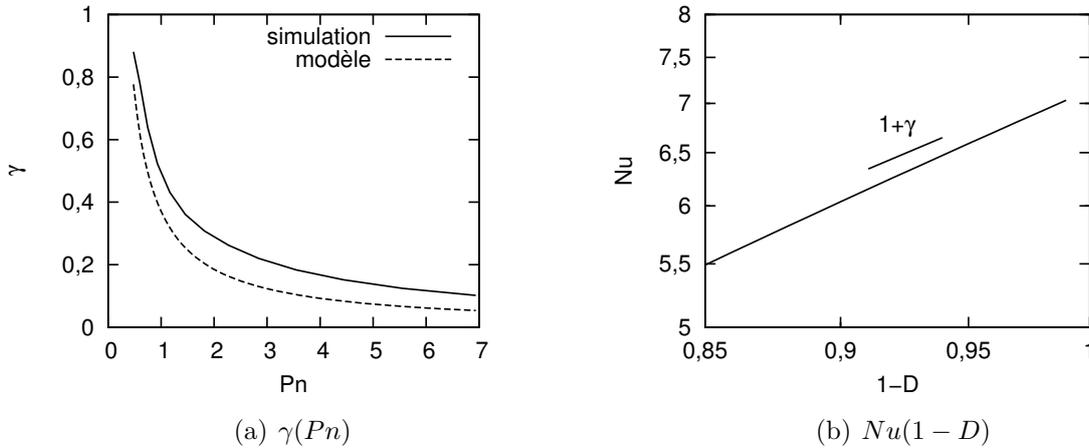


Figure 6.5 – Résultats de simulation numérique de la cavité entraînée permettant d'apprécier l'influence du Pearson Pn et de D sur les transferts thermiques pour un fluide à viscosité dépendante de la température - comparaison avec le modèle analytique proposé

6.1.4 Détermination d'une température de mélange

Il est habituel d'exprimer le flux thermique surfacique sous la forme d'une loi de Newton du type :

$$\frac{\Phi}{S_c} = h(T_h - T_M)$$

où h est un coefficient conducto-convectif¹ indépendant « au moins directement » de la température et T_M la température de mélange [121]. Ce type de loi est par exemple souvent utilisée dans les cas d'écoulements internes en conduite. Toutefois, il est important de relever que, dans le cas d'un couplage fort entre la thermique et la dynamique (convection naturelle ou, dans notre cas, en raison d'une viscosité dépendante de la température), le coefficient de transfert thermique h et la température de mélange T_M sont dépendants des températures du système. Nous proposons ici une telle approximation affine du flux thermique en fonction d'une température chaude T'_h proche d'une température chaude T_h à laquelle est évaluée la température de mélange.

Dans le régime de conduction, on a directement $T_M = T_c$ et on obtient le résultat classique de la conduction où le flux thermique est proportionnel au différentiel de température. Lorsque le système se trouve au contraire en régime de convection thermique, nous utilisons un développement de Taylor à l'ordre 1 autour de T_h . Pour une température chaude $T'_h = T_h + \varepsilon\Delta T$ ($\varepsilon \ll 1$), on a $\Delta T' = \Delta T(1 + \varepsilon)$, entraînant $Pn' = Pn(1 + \varepsilon)$, $D' \approx D(1 - \varepsilon)$ et le flux purement conductif $\lambda\Delta T(1 + \varepsilon)$. D'où, pour le flux surfacique :

$$\begin{aligned} \frac{\Phi}{S_c} &= \frac{\lambda\Delta T(1 + \varepsilon)Nu(Re, Pr, Pn(1 + \varepsilon), D(1 - \varepsilon))}{S_c} \\ &\approx \frac{\lambda\Delta T}{L}(1 + \varepsilon) \left(Nu(Re, Pr, Pn, D) + \frac{\partial Nu}{\partial Pn}\varepsilon Pn - \frac{\partial Nu}{\partial D}\varepsilon D \right) \end{aligned}$$

En utilisant 6.2, pour γ faiblement variable, il vient la loi affine :

$$\frac{\Phi(T'_h)}{S_c} = h(T'_h - T_M) \quad (6.4)$$

où h est un coefficient ne dépendant pas de T'_h et la température de mélange est :

$$T_M = T_h - \frac{T_h - T_v}{1 + \gamma}$$

La température de mélange est en particulier indépendante de la température froide et de l'intensité du forçage mécanique. Elle ne dépend que de la température de travail T_h et des paramètres de viscosité VFT B et T_v .

6.2 Réponse dynamique

Après nous être intéressés à la loi de corrélation entre flux thermique et température chaude imposée, nous nous intéressons dans cette section à la réponse dynamique du creuset froid. Considérons un fluide à viscosité thermo-dépendante dans un domaine 3D indéformable Ω de taille caractéristique L et de masse m , chauffé par induction électromagnétique directe agissant comme une source thermique $\xi = \frac{pJ}{\rho c_p}$ de valeur moyenne $\bar{\xi}$ dans Ω . Le système est refroidi par sa surface S_c maintenue à la température froide T_c qui absorbe un flux thermique global noté Φ . Le fluide est brassé par un agitateur mécanique de vitesse de rotation ω . On suppose que le système est en régime de convection forcée

1. On évitera la confusion entre h et h_{ext} . Le premier coefficient correspond au transport thermique global au sein du fluide tandis que le deuxième correspond au contact entre fluide et parois (considéré dans ce cas modèle soit nul, soit infini).

suffisamment intense pour considérer que la température en dehors des couches limites est homogène et proche de la température chaude maximale T_h . Nous démontrons dans cette section que ce système modèle de creuset froid peut être considéré comme un système linéaire invariant du premier ordre pour les faibles perturbations d'un état thermique stationnaire. Nous nous attacherons à donner une formule analytique pour la constante de temps. On considère d'autre part que cette constante de temps est suffisamment grande devant le temps caractéristique d'évolution des champs thermohydrauliques (de l'ordre de $1/\omega$) et la condition $\tau\omega \gg 1$ devra donc être vérifiée a posteriori. Ainsi la loi de flux thermique 6.4 obtenue dans la section précédente est considérée valable à tout instant.

En travaillant en valeurs dimensionnées, l'équation de la thermique s'écrit :

$$\frac{\partial T}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla T = a \nabla^2 T + \xi$$

En intégrant cette équation sur Ω et en divisant par le volume de fluide, sous les hypothèses mentionnées, nous obtenons :

$$\frac{\partial T_h}{\partial t} + \frac{\Phi}{c_p m} = \bar{\xi} \quad (6.5)$$

Considérons alors un faible changement de forçage thermique massique autour d'une solution stationnaire du problème $(T_h, \bar{\xi} = \frac{\Phi(T_h)}{c_p m})$. L'équation linéarisée pour la perturbation s'écrit alors, en utilisant la relation 6.4 :

$$\frac{\partial \delta T_h}{\partial t} + \frac{1}{\tau} \delta T_h = \delta \bar{\xi} \quad (6.6)$$

On obtient donc bien un système dynamique linéaire invariant du premier ordre de constante de temps :

$$\tau = \frac{c_p m (T_h - T_M)}{\Phi(T_h)}$$

Démonstration. Soit un état perturbé solution de 6.5 :

$$\begin{aligned} T'_h &= T_h + \delta T_h \\ \bar{\xi}' &= \bar{\xi} + \delta \bar{\xi} \end{aligned}$$

En injectant ces expressions dans l'équation d'évolution 6.5 et comme $(T_h, \bar{\xi} = \frac{\Phi(T_h)}{c_p m})$ est solution du problème stationnaire, nous obtenons :

$$\frac{\partial \delta T_h}{\partial t} + \frac{\Phi(T'_h) - \Phi(T_h)}{c_p m} = \delta \bar{\xi}$$

Or, d'après 6.4 :

$$\Phi(T'_h) = h S_c (T'_h - T_M)$$

En particulier, pour $\delta T_h = 0$:

$$\Phi(T_h) = h S_c (T_h - T_M) \Rightarrow h S_c = \frac{\Phi(T_h)}{T_h - T_M}$$

menant à :

$$\Phi(T'_h) = \Phi(T_h + \delta T_h) = \Phi(T_h) + hS_c \delta T_h = \Phi(T_h) + \frac{\Phi(T_h)}{T_h - T_M} \delta T_h$$

D'où :

$$\frac{\partial \delta T_h}{\partial t} + \frac{\Phi(T_h)}{c_p m (T_h - T_M)} \delta T_h = \delta \bar{\xi}$$

□

Dans le cas d'un fluide de viscosité constante en convection forcée, la valeur de τ s'obtient pour $T_M = T_c$, menant au résultat classique $\tau \Phi = c_p m \Delta T$. Pour le cas de forte dépendance de la viscosité à la température, τ dépend explicitement de la température de mélange et donc des paramètres de viscosité VFT du verre.

6.3 Comparaisons expérimentales

6.3.1 Configuration

Cette section est dédiée à la vérification de la loi de corrélation de flux thermique dérivée analytiquement. Nous avons considéré la puissance thermique reçue par l'agitateur mécanique du creuset froid, en rotation à la vitesse angulaire ω de l'ordre de plusieurs tours par minute. Différents verres sont testés avec différentes températures chaudes, quantités et vitesses de rotation de l'agitateur. Dans ce type de procédé, le bilan de flux thermique passant du verre vers un élément refroidi est réalisé grâce à la mesure de l'échauffement de l'eau de refroidissement (de température moyenne $T_c \approx 340$ K) après son passage dans les circuits internes. Il est donc possible de tracer une courbe de flux thermique en fonction d'une température chaude imposée sous condition de forçage (vitesse de rotation de l'agitateur) constant ou bien en fonction du forçage à température de chauffe constante. Afin d'éliminer la possible contribution de la variation de la qualité du contact thermique entre la fonte et les parois refroidies aux variations de flux thermique (augmentation irréversible de h_{ext} liée à la coalescence des grains de fritte), nous choisissons de réaliser des paliers de température et de vitesse d'agitation décroissantes. L'incertitude sur les puissances considérées est évaluée à 6 %, ± 5 K sur les températures de bain de verre et $\pm 5,2 \cdot 10^{-2}$ rad/s pour la vitesse de rotation de l'agitateur.

Dans les conditions opératoires, la convection thermique naturelle est négligeable. En effet, le creuset possédant une taille caractéristique $L \approx 0,3$ m, et en notant $U \approx 1$ m/s la vitesse caractéristique de l'agitateur dans le verre :

$$Ri = \frac{\beta g L \Delta T}{U^2} \approx 0,1 \ll 1$$

Lorsque les mesures sont réalisées, les verres chargés en platinoïdes utilisés sont suffisamment homogènes pour négliger également la convection solutale. Enfin, la chaleur générée par dissipation visqueuse est négligeable :

$$Br = \frac{\rho_0 \nu_0 U^2}{\lambda_0 \Delta T} \approx 10^{-3} \ll 1$$

Tableau 6.1 – Paramètres VFT des différents verres utilisés

Verre	A m ² /s	B J/mol	T_v K
a	$9,9 \cdot 10^{-7}$	$5,1 \cdot 10^4$	651
b	$2,1 \cdot 10^{-7}$	$7,7 \cdot 10^4$	487
c	$4,3 \cdot 10^{-6}$	$3,3 \cdot 10^4$	859
d	$8,1 \cdot 10^{-7}$	$5,6 \cdot 10^4$	556
e	$7,4 \cdot 10^{-6}$	$3,4 \cdot 10^4$	717

Cinq verres borosilicates différents ont été utilisés, dont le verre de type UOx (noté ici e). Pour chaque verre, les paramètres VFT ont été mesurés et sont présentés dans le tableau 6.1.

Afin de déterminer le temps typique de stabilisation des échanges thermiques, nous évaluons la constante de temps du creuset froid utilisé. Comme montré par la suite, la masse de verre utilisée est $m \approx 290$ kg, sa capacité thermique massique à haute température $c_p \approx 1,6 \cdot 10^3$ J/kg/K et la température imposée vaut $T_h \approx 1500$ K. Dans ces conditions, la puissance thermique passant du verre à l'ensemble des éléments refroidis est $\Phi \approx 150$ kW. D'où, pour les paramètres VFT considérés, une constante de temps :

$$\tau = \frac{c_p m (T_h - T_M)}{\Phi} \approx 8 \cdot 10^2 \text{ s} \gg \frac{1}{\omega}$$

Le temps de réponse (stabilisation à 99%) pour la réalisation des mesures sera alors pris au moins égal à $5\tau \approx 1$ h pour l'ensemble des verres et situations opératoires.

6.3.2 Résultats

Les résultats des différentes situations opératoires sont ici présentés. Nous avons reporté sur la figure 6.6, pour chaque expérience, la courbe $\Phi(T'_h)$ issue de la stabilisation du système à plusieurs températures chaudes de consigne proches, à vitesse d'agitation constante. Une courbe de tendance de type loi de Newton est ajustée pour chaque expérience :

$$\Phi(T'_h) = hS_c (T'_h - T_M)$$

où le préfacteur hS_c et la température de mélange T_M sont ajustés. Nous obtenons un bon accord avec la valeur théorique de T_M , où T_h est choisie comme la température centrale de l'échantillon de données (moyenne arithmétique des températures extrêmes), comme présenté dans le tableau 6.2. Cette température de mélange ainsi calculée varie modérément selon les verres étudiés. La dépendance de la viscosité à la température entraîne une modification profonde de la température de mélange, qui, dans le cas du creuset froid, vaudrait $T_M = T_c \approx 340$ K si cette dépendance n'était pas prise en compte ($\gamma = 0$).

Les verres b et c sont ensuite testés avec des vitesses de rotation de l'agitateur différentes pour des températures chaudes imposées fixes. De l'analyse précédente, on déduit une loi puissance pour la valeur du flux thermique en fonction de la vitesse angulaire de l'agitateur ω :

$$Nu \sim Re^{1/2} \Rightarrow \Phi \sim \omega^{1/2}$$

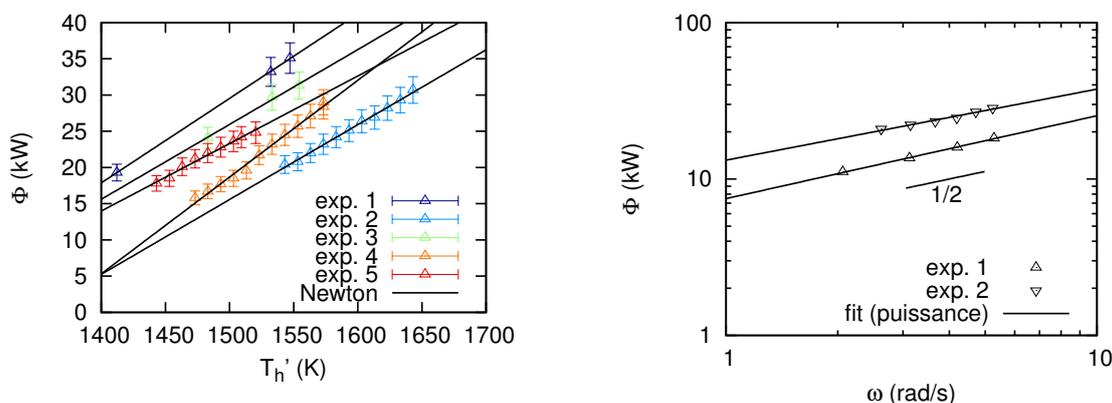
Tableau 6.2 – Comparaison entre valeurs théoriques et expérimentales de la température de mélange pour les différentes expériences

Expérience	Verre	Masse kg	ω rad/s	T_h K	T_M (exp.) K	T_M (th.) K
1	<i>a</i>	281	4,4	1480	1247	1240
2	<i>b</i>	280	5,2	1593	1349	1301
3	<i>d</i>	300	5,2	1519	1249	1230
4	<i>c</i>	294	5,2	1523	1360	1302
5	<i>e</i>	281	6,3	1482	1250	1206

Sur la figure 6.6 sont tracées les courbes de flux thermique reçu par l'agitateur $\Phi(\omega)$ issues de la stabilisation du système à plusieurs vitesses de rotation. Pour chaque courbe, on calcule l'exposant de loi puissance expérimental, à comparer avec la valeur théorique de $\frac{1}{2}$. Un accord satisfaisant est observé, comme présenté dans le tableau 6.3 avec un exposant de loi puissance expérimental moyen de $0,49 \approx \frac{1}{2}$.

Tableau 6.3 – Valeurs expérimentales de l'exposant de loi puissance du flux thermique en fonction de la vitesse de rotation de l'agitateur

Expérience	Verre	Masse kg	T_h K	Exposant
1	<i>b</i>	251	1523	0,53
2	<i>c</i>	294	1573	0,45



(a) $\Phi(T_h')$ - les barres d'erreur de température ont la taille des symboles
 (b) $\Phi(\omega)$ - les barres d'erreur ont la taille des symboles

Figure 6.6 – Variations du flux thermique reçu par l'agitateur lors de la fusion de verre en creuset froid

Les variations observées expérimentalement montrent toute l'utilité pratique de l'approximation de Newton développée. Les gammes de paramètres couvertes sont en effet trop étroites pour distinguer une quelconque courbure avec la précision des mesures : en plus de sa compacité, l'utilisation d'une loi affine se montre suffisamment prédictive.

6.4 Conclusion

L'approche de modélisation du procédé d'élaboration de verre en creuset froid permet entre autres d'apporter des réponses aux phénomènes observés sur les procédés en opération. Parmi ceux-ci, la variation du flux thermique reçu par les éléments refroidis du creuset particulièrement importante lors d'un changement de température de consigne. Nous avons montré dans ce chapitre, grâce à une analyse des équations de transport, que ce phénomène caractéristique était lié à la forte dépendance de la viscosité du verre à sa température. Nous avons opté pour la méthodologie suivante :

- Dans un premier temps, une analyse de couche limite prenant en compte l'impact de la loi de viscosité de Vogel-Fulcher-Tammann a permis de proposer une loi de corrélation originale pour le nombre de Nusselt, validée par simulation numérique d'un cas modèle de cavité entraînée ;
- Cette loi de corrélation a ensuite permis de dériver une loi de Newton en proposant une formule analytique pour la température de mélange, directement dépendante des paramètres VFT propres à chaque verre ;
- Des comparaisons entre températures de mélange prédites par l'analyse et observées sur creuset froid lors de la fusion de différents verres a alors permis la validation de l'approche.

En plus des capacités prédictives des lois proposées, nous avons calculé la constante de temps liée à la réponse temporelle du creuset froid lors d'un changement de puissance Joule globalement injectée dans la charge. Ce résultat permettra entre autres le paramétrage d'une solution de régulation prédictive de la température atteinte au sein du verre lors du fonctionnement du creuset froid.

Chapitre 7

Simulation numérique couplée appliquée au procédé de creuset froid

7.1	Cas 0 - Test de couplage sur géométrie simplifiée	127
7.1.1	Configuration physique	127
7.1.2	Résultats	128
7.2	Cas 1 - Creuset froid en régime nominal	131
7.2.1	Configuration physique et intensité des phénomènes	131
7.2.2	Paramètres numériques et stratégie de convergence	133
7.2.3	Étude qualitative des résultats de simulation couplée	134
7.2.4	Bilan d'énergie global	137
7.2.5	Couche pariétale de fritte de verre	141
7.3	Cas 2 - Creuset froid avec sédimentation des platinoïdes . . .	143
7.3.1	Sédimentation des platinoïdes	143
7.3.2	Modification de la réponse à l'induction électromagnétique et des flux thermiques	145
7.3.3	Performances de la simulation numérique	146
7.4	Cas 3 - Creuset froid avec mesure spécifique de flux ther- mique surfacique	148
7.4.1	Conception d'un outil de mesure spécifique	148
7.4.2	Comparaisons quantitatives de flux thermique	151
7.5	Conclusion	153

Cette dernière section a pour but de présenter les applications directes de l'ensemble des développements théoriques, analytiques et numériques à la simulation couplée de situations physiques typiques du procédé de creuset froid. Nous nous attacherons à détailler l'ensemble des phénomènes physiques observés et reproduits dans les simulations. Différentes campagnes de mesures expérimentales ont permis des comparaisons quantitatives précises sur de nombreux points, tant thermiques que mécaniques.

Quatre cas ont été considérés dans notre étude :

- Cas 0 - Test de couplage sur géométrie simplifiée ;
- Cas 1 - Creuset froid en régime nominal ;
- Cas 2 - Creuset froid avec sédimentation des platinoïdes ;

— Cas 3 - Creuset froid avec mesure spécifique de flux thermique surfacique.

Les cas étudiés ont été choisis pour entrer dans la démarche de soutien industriel de l'exploitant dans le cadre du lancement prochain du projet de vitrification des effluents issus du retraitement des combustibles usés des Réacteurs à Eau Pressurisée civils en creuset froid. À ce titre, le verre considéré dans cette section sera de type UO_x, dont les propriétés ont déjà été présentées par ailleurs dans ces travaux. Les valeurs de certains paramètres communes à l'ensemble des simulations présentées sont regroupées dans le tableau 7.1.

Tableau 7.1 – Valeurs de certains paramètres physico-chimiques utilisées pour les simulations numériques couplées appliquées au procédé de creuset froid

Paramètre physico-chimique	Notation	Valeur
Masse volumique de référence	ρ_0	$2,7 \cdot 10^3 \text{ kg/m}^3$
Paramètre VFT	A	$7,4 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$
Paramètre VFT	B	$3,4 \cdot 10^4 \text{ J/mol}$
Température de Vogel	T_v	717 K
Coefficient de dilatation thermique	β	$8,2 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$
Coefficient de masse volumique particulaire	β_p	2,1
Pulsation électromagnétique	ω	$1,8 \cdot 10^6 \text{ rad/s}$
Paramètre de conductivité électrique	A_σ	$3,9 \cdot 10^2 \text{ S/m}$
Paramètre de conductivité électrique	B_σ	$8,4 \cdot 10^4 \text{ J/mol}$
Conductivité électrique des particules	σ_i	$1 \cdot 10^6 \text{ S/m}$
Seuil de percolation	C_p	5,5 %
Exposant critique	s	0,63
Exposant critique	t	2,0

Il est nécessaire de vérifier la validité des deux conditions de séparation d'échelles 4.5 et 4.6 afin de s'assurer que le modèle de conductivité électrique effective est valide dans les configurations considérées. Les plus petites structures macroscopiques observées sont de l'ordre de la taille de l'amas de particules considéré dans le cas 0, $d_a = 1 \text{ cm}$. Pour des particules de platinoïdes de taille caractéristique $d_p \sim 10 \mu\text{m}$, on a bien :

$$\frac{d_p}{\delta_i} = 1,1 \cdot 10^{-2} \ll 1 \text{ et } \left(\frac{d_p}{d_a}\right)^2 RC_p = 1,4 \cdot 10^{-2} \ll 1$$

Nous utiliserons les codes de calcul thermohydraulique liés soit à la bibliothèque OPEN-FOAM® (cas 0) soit au logiciel ANSYS FLUENT® (cas 1, 2 et 3), tous deux augmentés des codes développés respectifs AV-OF, C-OF et AV-AF, C-AF.

7.1 Cas 0 - Test de couplage sur géométrie simplifiée

Nous nous intéressons dans cette section au comportement d'un amas de platinoïdes dans un verre chauffé par induction. L'amas est défini comme une zone spatiale restreinte de verre présentant une concentration en particules de platinoïdes bien supérieure à celle du verre avoisinant. De tels amas ont déjà été observés dans les procédés de vitrification lors d'expériences en modes de fonctionnement dégradés et peuvent présenter des concentrations supérieures à la fraction volumique d'agglomération maximale C_a observée lors d'expériences de sédimentation sans agitation.

7.1.1 Configuration physique

La portion de verre simulée est un cylindre de révolution de rayon et hauteur L chauffé par induction de courants via l'imposition d'un champ magnétique externe harmonique vertical et refroidi par sa base maintenue à la température froide T_c . L'amas présente initialement une forme sphérique de diamètre d_a et est centré dans le domaine. La sédimentation individuelle et la diffusion des particules sera négligée. Le contact thermique à la paroi froide sera considéré parfait et les échanges radiatifs seront négligés, de même que la dépendance à la température de la conductivité thermique et de la capacité thermique massique du verre. Le tableau 7.2 regroupe les valeurs des paramètres physico-chimiques utilisés, typiques d'une fonte verrière de type UOx en creuset froid (sauf l'intensité du champ magnétique imposé qui est nettement supérieure) tandis que le tableau 7.3 explicite la valeur des paramètres adimensionnés correspondants utilisés dans le code de simulation.

Tableau 7.2 – Valeurs des paramètres utilisées pour la simulation couplée d'un amas de platinoïdes dans du verre chauffé par induction

Paramètre physico-chimique	Notation	Valeur
Rayon du domaine	L	2,5 cm
Diamètre de l'amas	d_a	1 cm
Fraction volumique en particules dans le verre	\bar{C}	1 %
Fraction volumique en particules dans l'amas	C_{amas}	25 %
Température froide imposée	T_c	340 K
Température chaude de référence	T_h	1473 K
Conductivité thermique	λ	4 W/m/K
Capacité thermique	c_p	$1,6 \cdot 10^3$ J/kg/K
Différence de potentiel magnétique	ΔA	$1,35 \cdot 10^{-3}$ T·m

Le temps caractéristique de dissipation visqueuse $L^2/\nu_0 \sim 1$ s sera utilisé comme référence. Étant donnée la symétrie axiale du problème, nous optons pour une simulation bidimensionnelle axisymétrique en supposant la solution du problème invariante dans une rotation autour de l'axe du cylindre. Le domaine de simulation se réduit alors à une demi-section verticale centrée. Le maillage du domaine est régulier, contient 200×300 mailles et le pas de temps est pris égal à $\Delta t = 2 \cdot 10^{-2}$, permettant le respect de la condition CFL (utilisation d'un schéma de discrétisation temporelle de type Euler explicite). Une condition de non-glissement est imposée sur la base du domaine et de glissement sur les autres frontières. Des conditions de flux nul sont imposées sur toutes les frontières pour la température et la fraction volumique en particules hormis sur la base où une condition

Tableau 7.3 – Valeurs des nombres adimensionnés déterminants

Paramètre adimensionné	Notation	Valeur
Diamètre adimensionnée de l'amas	d_a	0,4
Nombre de Grashof	Gr	26
Grashof particulaire	Gr_p	$5,9 \cdot 10^2$
Nombre de Prandtl	Pr	$8 \cdot 10^2$
Nombre de Pearson	Pn	0,28
Température de Vogel adimensionnée	D	0,33
Paramètre de chauffage Joule	In	3,2
Paramètre d'écran	R_ω	$5,5 \cdot 10^{-3}$
–	H	0,11
Rapport de conductivité	R	$2,6 \cdot 10^5$
Zéro absolu adimensionné	T_0	-0,30

de Dirichlet est imposée pour la température. Le champ magnétique externe variable harmonique est modélisé grâce aux conditions aux limites sur les potentiels.

L'état initial est obtenu par une première résolution du problème stationnaire en imposant $\mathbf{u} = 0$ dans tout le domaine. Cet état est donc équilibré du point de vue thermique, le flux thermique à travers la base compensant exactement la puissance Joule induite dans le domaine. Plus précisément, si Φ désigne le flux thermique adimensionné à travers la surface froide, alors, dans un état thermique stationnaire, l'intégration de 2.31 sur l'ensemble du domaine donne $\Phi = InP_J$. Cette relation est valable dans l'état initial mais également lorsque l'évolution de l'amas se stabilise à long terme.

7.1.2 Résultats

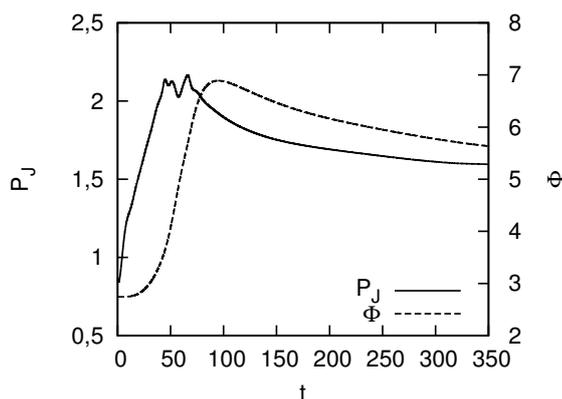


Figure 7.1 – Évolution des grandeurs thermiques intégrées au cours du temps : puissance Joule totale et flux thermique à travers la base refroidie - les pics de puissance Joule courts et de faible intensité correspondent à l'apparition des polypes de Rayleigh-Taylor

Les résultats de simulation instationnaire sont représentés sur les figures 7.1 et 7.2. L'induction électromagnétique dans l'amas, plus conducteur électrique que le verre moins chargé en particules, entraîne une augmentation de sa température et du verre environnant par conduction. L'amas se trouve donc au milieu d'une poche de verre fluide et

commence à chuter en raison de sa densité également plus élevée que le verre environnant. La chute de l'amas est associée à son étalement lié à l'impact sur un verre plus froid et au développement d'instabilités de Rayleigh-Taylor. Ces instabilités entraînent le mélange de l'amas avec du verre moins chargé et donc une certaine dilution. On notera que la concentration maximale ne dépasse pas la concentration initiale de l'amas de particules. L'étalement de l'amas augmente l'intensité des courants induits car la surface soumise au flux magnétique augmente. Cette augmentation d'intensité cause une élévation de la puissance Joule induite, accompagnée, avec un certain retard, de l'augmentation du flux thermique traversant la base refroidie.

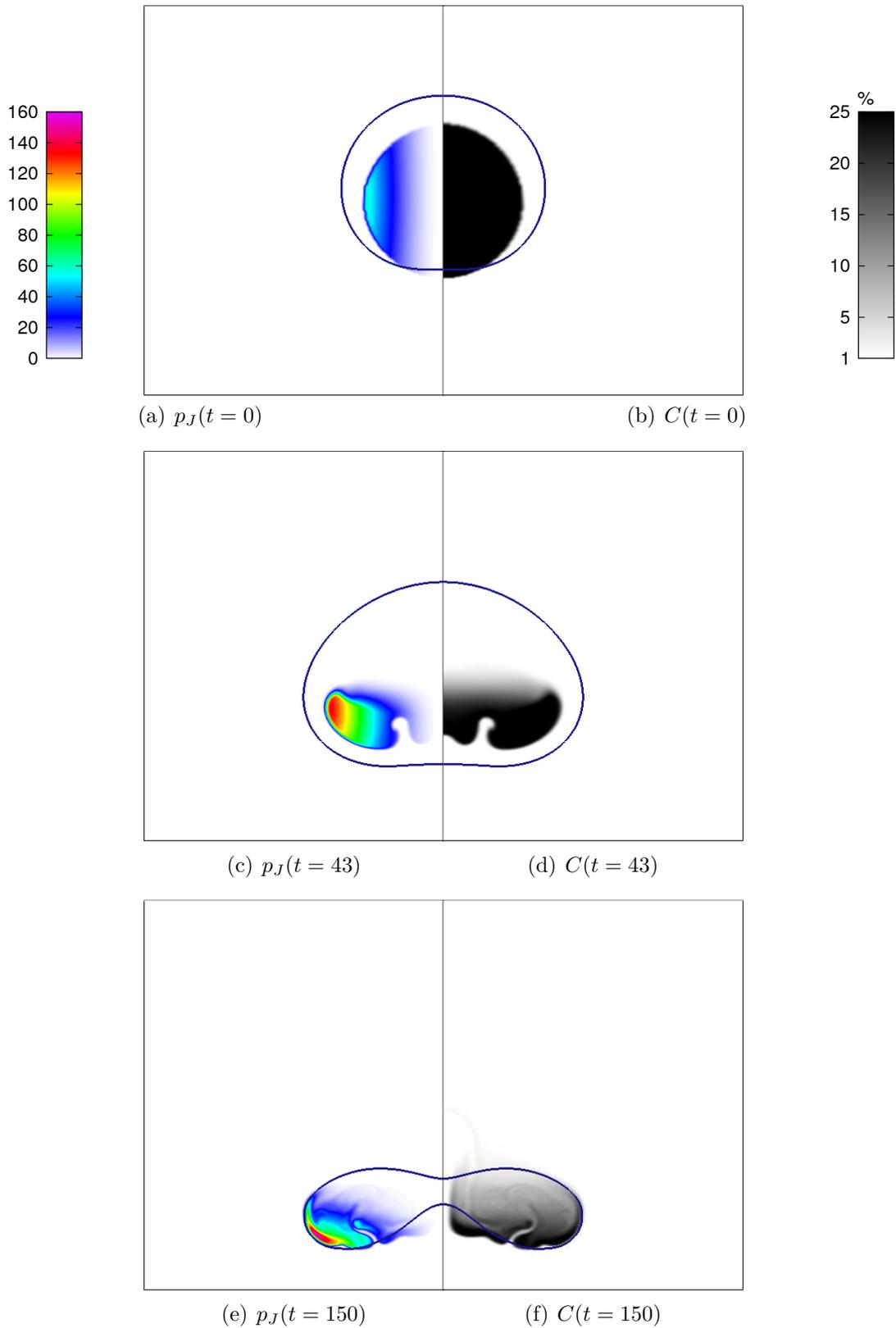


Figure 7.2 – Champ de fraction volumique en particules (droite) et densité de puissance dissipée par effet Joule (gauche) à différents instants - iso-contour bleue de viscosité $f_\nu = 10$ dessinant la poche de verre fluide ($\eta < 20 \text{ Pa}\cdot\text{s}$)

7.2 Cas 1 - Creuset froid en régime nominal

7.2.1 Configuration physique et intensité des phénomènes

Configuration du creuset froid pour les verres de type UOx

Le creuset froid utilisé, dit Creuset Froid Nucléarisé, a été présenté dans la section 1.2.1. À cette géométrie s'ajoute un élément actif appelé « canne de recalage ». Il s'agit d'une canne refroidie par eau plongeant de quelques centimètres dans la fonte de verre et y injectant de l'air au niveau d'un orifice placé à son extrémité inférieure. Ajoutant un brassage supplémentaire, la mesure de la pression de l'air injecté permet également de déduire le niveau du bain de verre (hauteur de la surface libre dans le creuset) lors du fonctionnement. Le régime nominal considéré dans ces travaux est caractérisé par :

- Une température mesurée au niveau des embouts des cannes de température $T_h = 1473 \text{ K}$;
- Un niveau de verre constant de 450 mm (pas d'alimentation de matière) correspondant à un volume de verre $V(\Omega) = 0,147 \text{ m}^3$;
- Une vitesse de rotation de l'agitateur mécanique $\omega = 6,28 \text{ rad/s}$ (soit 1 révolution par seconde) ;
- Une fraction volumique en particules de platinoïdes homogène $\bar{C} = 0,7 \%$;
- Un débit d'injection d'air de 5 mmol/s pour chacun des 4 injecteurs.

La figure 7.3 présente la géométrie utilisée pour les simulations numériques des cas 1 et 2.

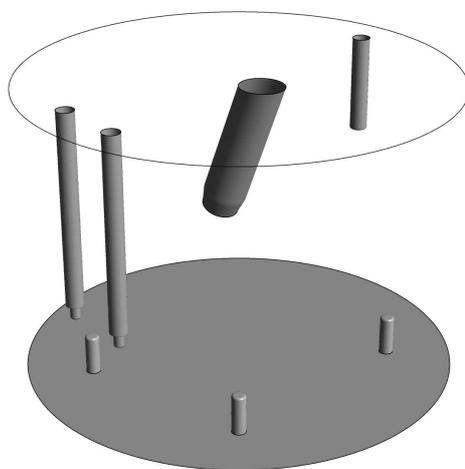


Figure 7.3 – Géométrie du creuset froid simulé - deux cannes de température à gauche, 3 injecteurs d'air sur la sole, arbre de l'agitateur centré et canne de recalage à droite - les pales de l'agitateur mécanique ainsi que les doigts de gant des thermocouples ont été volontairement dissimulés pour raison de confidentialité

La masse pour le potentiel électrique est imposée sur les embouts des cannes de température. La dépendance à la température de la tension superficielle de l'interface air/verre est fixée à $\frac{d\gamma}{dT} = -10^{-4} \text{ N/m/K}$ [13]. Les paramètres associés aux conditions aux limites thermiques sont regroupés dans le tableau 7.4. La température extérieure lors d'un contact avec un élément refroidi du creuset froid est fixée à une valeur de 340 K, proche de la tem-

pérature de l'eau de refroidissement, bien que cette valeur ne soit qu'une estimation, pour différentes raisons :

- La température de l'eau de refroidissement varie au sein de l'ensemble des éléments du creuset froid, de 300 K à 360 K ;
- La conduction-convection de chaleur à travers la couche limite d'eau de refroidissement turbulente et l'acier inoxydable séparant la charge de cette eau entraîne un différentiel de température $\delta T \approx 40$ K ;
- La présence de courants de Foucault dans les éléments du creuset froid peut causer un échauffement local des parties métalliques.

Quant à la porosité de la fritte de verre n , une première évaluation a été déterminée à partir de la mesure à froid de la densité apparente $d_{fritte} \approx 1,3$ d'un volume important de fritte grâce à la relation :

$$n = \frac{d_{verre} - d_{fritte}}{d_{verre} - d_{air}} \approx 1 - \frac{d_{fritte}}{d_{verre}} \approx 0,5$$

Cette valeur est à considérer pour les parois présentant une couche granulaire relativement épaisse, typiquement les parois du creuset froid (sole et virole). Sur les autres parois, celles des internes immergés dans la fonte, cette valeur est fortement diminuée pour attester des observations des couches granulaires. Un ajustement de ces valeurs de porosité a été réalisé afin d'améliorer la prédictibilité des flux thermiques surfaciques.

Tableau 7.4 – Valeurs des paramètres dimensionnés déterminants les conditions aux limites thermiques utilisées lors de la simulation d'une fonte de verre en creuset froid

Frontière	ε_{ext}	T_{ext} K	h_{ext} W/m ² /K	λ_f W/m/K	T_f K	n
Surface libre [14]	0,4	550	15	—	—	—
Sole et virole	0,34	340	—	1,0	820	0,45
Autres frontières	0,34	340	—	1,0	820	0,13

Intensité de quelques phénomènes modélisés

Cette section est dédiée à l'évaluation numérique de plusieurs nombres adimensionnés permettant de quantifier l'intensité respective de certains phénomènes en jeu, non évaluée jusqu'à présent dans notre étude. Le tableau 7.5 rassemble ces évaluations, desquelles nous pouvons déduire les faits respectifs suivants :

- Le flux thermique aux parois est très dépendant de la qualité du contact thermique entre verre et structures du creuset ;
- C'est l'agitation mécanique et non la convection thermo-capillaire qui gouverne le mouvement tangentiel de la surface libre ;
- Le saut de température aux frontières (dans l'approximation de Rosseland) est faible ;
- La distribution des particules est plus impactée par l'agitation mécanique que par la sédimentation en nuage ;
- L'agitation mécanique assure une très bonne mise en suspension des particules de taille nominale non agrégées.

Tableau 7.5 – Valeurs de quelques nombres adimensionnés déterminant l’intensité des phénomènes en régime nominal de fonctionnement du creuset froid - les paramètres déjà évalués plus tôt dans l’étude ne sont pas reportés

Nombre	Valeur
Biot Bi	10
Mg/Pe	10^{-2}
Stark N^+	10
$Ri_p \bar{C}$	4.10^{-2}
$\mathcal{N}/(ReSc)$	10^{-7}

La remise en suspension des particules étant assurée en régime nominal, l’équation de transport des particules ne sera pas résolue dans le cas 1 considéré dans cette section et un champ homogène de fraction volumique \bar{C} sera donc imposé.

7.2.2 Paramètres numériques et stratégie de convergence

La géométrie est maillée grâce à l’outil ANSYS MESHING®. Toutes les parois présentent un maillage de couche limite fin permettant la résolution précise des gradients de champ dans ces zones. Le maillage est divisé en deux zones en contact non conforme. La première est une zone englobant la partie de l’agitateur mécanique non invariante par rotation autour de son axe, la deuxième zone comprenant le reste du maillage. Cette division du maillage permet de résoudre la rotation de l’agitateur grâce, soit à un modèle de référentiels multiples (MRF, pour « Multiple Reference Frame ») soit à un modèle de maillage glissant (SMM, pour « Sliding Mesh Model ») décrits dans [140–142]. Le maillage résultant atteint un nombre de mailles $N_c \approx 4,5.10^6$.

La stratégie de convergence utilisée est la suivante. Le problème stationnaire est d’abord résolu selon la méthode présentée dans la section 3.4. Hormis le champ de température et le champ de fraction volumique en particules initialisés à une valeur uniforme respectivement de 1473 K et 0,7 %, tous les champs sont initialisés à une valeur uniformément nulle (y compris une source volumique de quantité de mouvement liée au bullage initialement nulle $\mathbf{S} = 0$). L’intensité du champ magnétique imposée est ajustée de manière dynamique au cours des itérations externes afin de stabiliser la température (échantillonnée à la surface des embouts contenant les thermocouples) à la température de consigne chaude désirée. En pratique, cet ajustement est réalisé grâce à une modification de la valeur du potentiel vecteur magnétique orthoradial appliqué comme condition aux limites de Dirichlet sur la paroi latérale de la charge. De plus, toutes les 50 itérations externes, \mathbf{S} est recalculée grâce à la méthode de suivi Lagrangien de particules présentée dans les travaux de E. Sauvage [14], et ce jusqu’à convergence globale du problème stationnaire. Cet état stationnaire obtenu par la méthode MRF n’est toutefois pas une solution physique du problème puisque la géométrie est maintenue invariante dans le calcul, ce qui n’est pas le cas en réalité (même dans un éventuel référentiel tournant). L’unique solution physique du problème est un état instationnaire périodique, qui peut être obtenue grâce à un calcul instationnaire utilisant la méthode SMM. La simulation instationnaire est donc lancée après convergence du calcul stationnaire, selon la méthode présentée dans la section 3.4, jusqu’à obtention d’un régime périodique. Pour chaque pas de temps, 20 itérations externes sont effectuées, assurant ainsi la convergence. L’état périodique est repéré grâce à

la mise en place d'une évolution temporelle périodique des grandeurs intégrées (puissance Joule globale, moment des forces fluides sur l'agitateur...).

Afin d'atteindre des temps physiques de l'ordre de la minute en un temps de calcul raisonnable (quelques jours), la résolution du problème couplé est parallélisée sur 20 cœurs de calcul et le pas de temps est pris égal à $\Delta t = 2.10^{-2}$ s pour la résolution du problème instationnaire. Ce pas de temps est relativement grand par rapport au temps mis par le fluide de vitesse caractéristique U pour traverser une maille de taille caractéristique Δx :

$$\frac{\Delta x}{U} \sim \frac{1}{U} \sqrt[3]{\frac{V(\Omega)}{N_c}} \sim 3.10^{-3} \text{ s} \ll \Delta t$$

empêchant tout respect de la condition CFL. Nous optons donc pour une méthode de discrétisation temporelle de type Euler implicite, inconditionnellement stable. L'ensemble des champs (température, vitesse, fraction volumique en particules...) est stabilisé après environ 30 s de temps physique simulé.

7.2.3 Étude qualitative des résultats de simulation couplée

Réponse à l'induction électromagnétique

Le potentiel vecteur magnétique imposé nécessaire pour maintenir une température nominale du verre est $A_\theta = 2,1.10^{-4}$ T·m ce qui correspond à un champ magnétique externe imposé d'amplitude $B = 2A_\theta/L = 1,29$ mT ($L = 32,5$ cm désignant le rayon du creuset). La mesure in situ de cette valeur de champ étant indisponible, seule la pertinence de l'ordre de grandeur du champ magnétique peut être contrôlée. La valeur obtenue est bien cohérente avec la valeur du champ magnétique créé par l'inducteur utilisé, de diamètre $D \sim 1$ m et traversé par un courant d'intensité $I \sim 2.10^3$ A :

$$B \sim \frac{\mu_0 I}{D} \sim 2 \text{ mT}$$

La valeur de l'épaisseur de peau électromagnétique évaluée à la température nominale est $\delta = 14$ cm, qui satisfait la condition de chauffage optimal 3.4. Nous avons enfin vérifié que la condition de jauge de Coulomb était en effet respectée dans nos simulations, puisque :

$$\frac{\|\nabla \cdot \underline{\mathbf{A}}\|_{L^2}}{\|\nabla \wedge \underline{\mathbf{A}}\|_{L^2}} \sim \frac{\|\nabla \cdot \underline{\mathbf{A}}\|_{L^2}}{B\sqrt{V(\Omega)}} \sim 3.10^{-2} \ll 1$$

L'induction électromagnétique crée une première génération de courants de Foucault en quadrature de phase avec le champ magnétique externe imposé. Comme attendu d'après la valeur de l'épaisseur de peau, cette première génération de courants induits produit à son tour un champ magnétique modérateur en quadrature de phase avec le champ magnétique imposé. La figure 7.4 présente les normes des composantes réelle et imaginaire du potentiel vecteur magnétique (normalisées par A_θ) sur un rayon du creuset en fonction de la distance à l'axe r (normalisée par le rayon). Nous distinguons bien une modération du champ en phase, avec un éloignement de la composante réelle de sa valeur qui serait observée dans un domaine vide.

La figure 7.5 est une représentation de la densité de puissance Joule dissipée dans le verre. Comme attendu, la majeure partie de la puissance dissipée est localisée aux

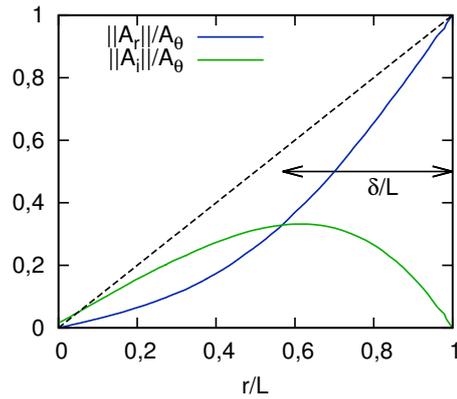


Figure 7.4 – Observation du phénomène de modulation du champ magnétique dans la charge de verre en fusion - normes des composantes réelle et imaginaire du potentiel vecteur magnétique (normalisées par A_θ) sur un rayon du creuset en fonction de la distance à l'axe r (normalisée par le rayon)

extrémités latérales de la charge, où les courants induits sont intenses. Au contact du creuset, elle est toutefois restreinte en raison de la relative basse température du verre et la diminution de conductivité électrique associée. Des excès de puissance dissipée près des éléments immergés sont également observés, dus à la déviation des courants induits à ce niveau (on rappelle que les éléments du creuset sont isolés électriquement de la charge en raison de la couche de fritte de verre infondue présente à leur surface). La figure 7.6 est une vue du potentiel électrique induit en quadrature de phase V_i dans un plan de coupe horizontal. Nous pouvons observer l'apparition d'une différence de potentiel (force électromotrice) de l'ordre de la dizaine de Volts autour des cannes, associée à ce phénomène.

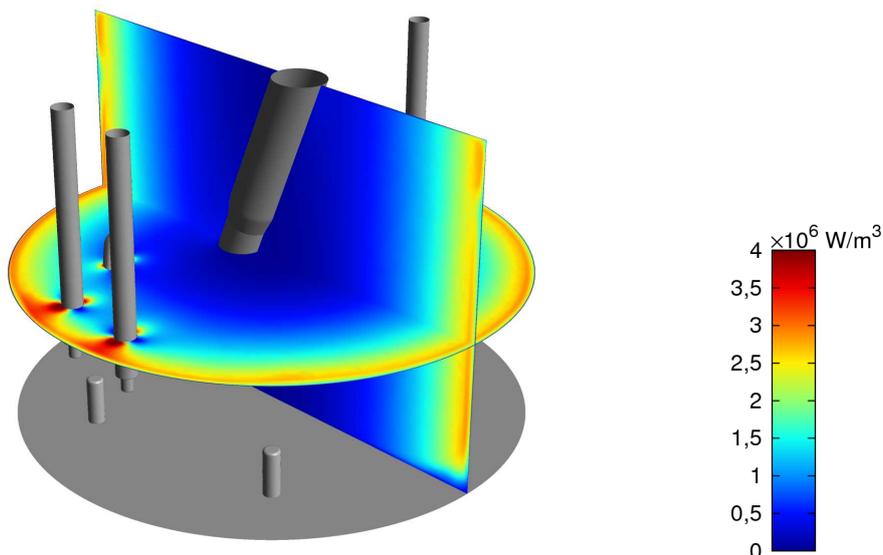


Figure 7.5 – Puissance dissipée par effet Joule dans la charge de verre p_J lors de la simulation numérique du creuset froid en régime nominal de fonctionnement

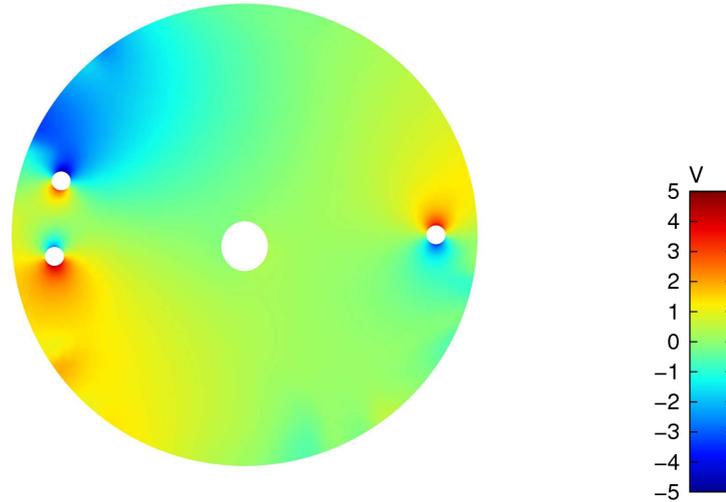


Figure 7.6 – Potentiel scalaire électrique en quadrature de phase avec le champ magnétique imposé V_i lors de la simulation numérique du creuset froid en régime nominal de fonctionnement - vue d'un plan de coupe horizontal

Champs de température et de vitesse dans la fonte

La figure 7.7 présente les iso-contours de source volumique de quantité de mouvement verticale liée au bullage $\mathbf{S} \cdot \mathbf{e}_z = 500 \text{ N/m}^3$, dessinant le contour des trains de bulles injectées dans la fonte. Nous pouvons observer la déformation de ces trains liée à l'agitation mécanique. La figure 7.8 présente quant à elle le champ de vitesse du fluide U . La vitesse maximale, d'environ 1 m/s est observée aux extrémités des pales de l'agitateur mécanique et les trains de bulles induisent une vitesse du fluide de l'ordre de 0,5 m/s.

Le champ de température du verre est représenté sur la figure 7.9, où nous observons en particulier la très bonne homogénéité thermique de la fonte assurée par l'ensemble des phénomènes de convection. À champ de température donné, le champ de masse volumique du verre peut être évalué grâce à la formule 2.18 et son intégration sur le volume de fluide permet d'obtenir la masse de verre présente dans le creuset selon :

$$m = \int_{\Omega} \rho(T, C) dv = m_0 \left(1 - \frac{\beta}{V(\Omega)} \int_{\Omega} (T - T_c) dv + \beta_p \bar{C} \right)$$

où la masse de référence du verre froid sans platinoïdes est définie par $m_0 = \rho_0 V(\Omega) = 397 \text{ kg}$. En raison de l'hypothèse de surface libre indéformable, la masse de verre calculée peut varier très légèrement lors de simulations instationnaires si la température moyenne varie. Dans la pratique, les grandeurs thermiques intégrées telles que la température moyenne du verre et les flux thermiques du verre vers le creuset froid varient imperceptiblement et elles seront donc calculées à un instant quelconque du régime périodique établi. Le calcul de la masse donne $m \approx 369 \text{ kg}$, comparable à la valeur mesurée expérimentalement sur procédé de 354 kg.

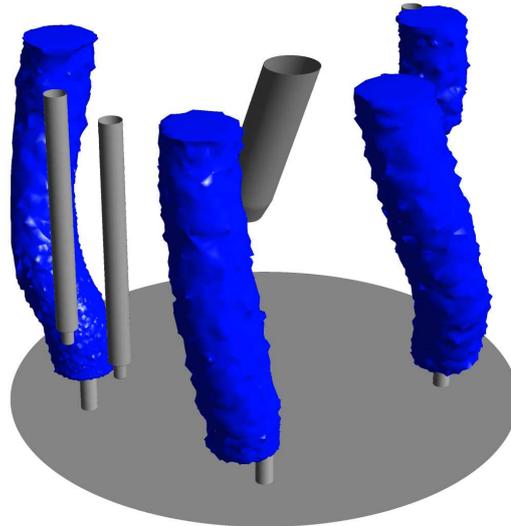


Figure 7.7 – Iso-contours de source volumique de quantité de mouvement verticale liée au bullage $\mathbf{S} \cdot \mathbf{e}_z = 500 \text{ N/m}^3$ lors de la simulation numérique du creuset froid en régime nominal de fonctionnement - observation de trois colonnes de bullage liées aux injecteurs de la sole et une colonne liée à l'injection d'air à l'extrémité de la canne de recalage

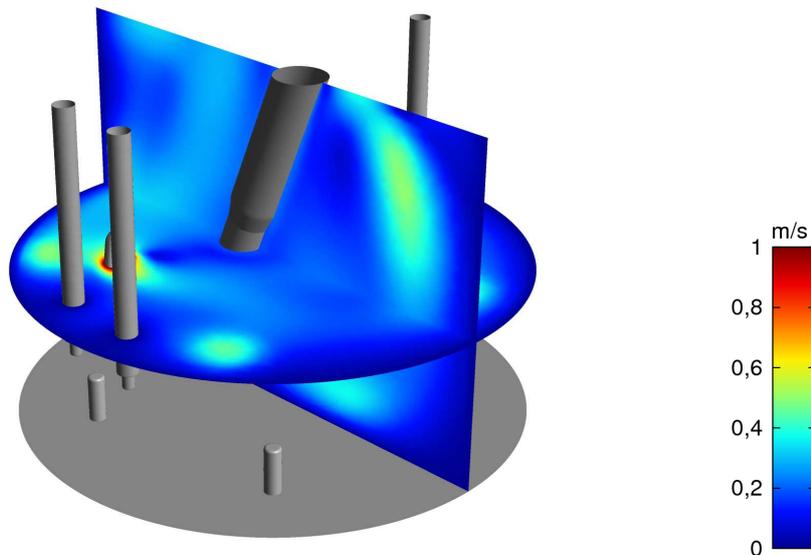


Figure 7.8 – Champ de vitesse du fluide $\|\mathbf{u}\|$ lors de la simulation numérique du creuset froid en régime nominal de fonctionnement

7.2.4 Bilan d'énergie global

Bilan thermique

Une large part des travaux de modélisation et simulation numérique présentés a pour but de disposer d'un code de simulation présentant une évaluation prédictive des transferts thermiques de la charge de verre vers les différents éléments du creuset. L'analyse

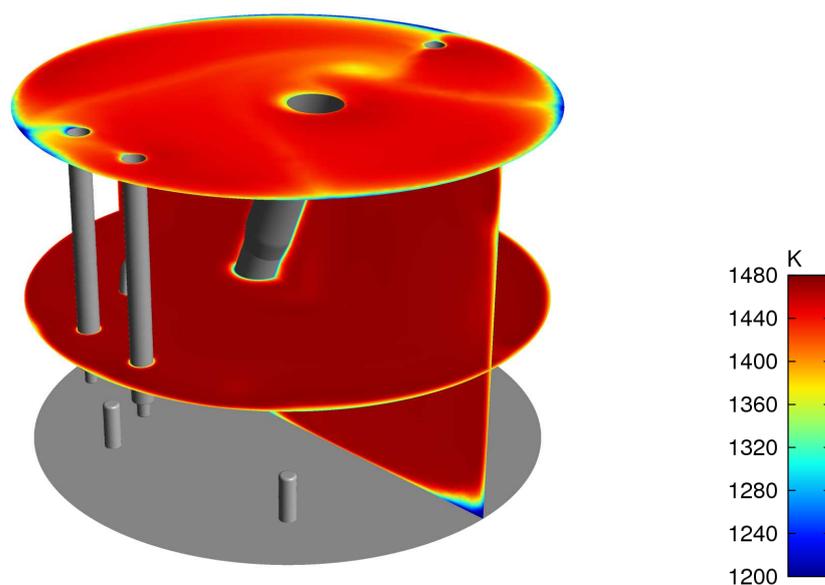


Figure 7.9 – Champ de température du verre T lors de la simulation numérique du creuset froid en régime nominal de fonctionnement

du contact thermique aux frontières présentant une couche de fritte de verre granulaire est l'une des contributions majeures à la réduction de l'écart observé dans les études précédentes entre les flux thermiques obtenus par simulation et ceux effectivement mesurés sur le creuset froid mis en œuvre au CEA [14]. Cette section est dédiée à la comparaison quantitative des flux thermiques échangés nouvellement calculés avec leur valeur nominale obtenue classiquement sur le procédé¹.

Dans le creuset froid nucléarisé, le flux thermique sortant de la surface libre de la fonte de verre est transféré aux éléments du creuset en regard de cette surface c'est-à-dire majoritairement son dôme et la partie émergée de la virole. Ces transferts sont liés à la convection turbulente de l'air surnageant la fonte et, dans une bien plus grande mesure, au rayonnement de la surface libre. L'étude de E. Sauvage [14] a permis l'estimation de la part relative de flux issu de la surface libre reçue par le dôme et la partie émergée de la virole (la part minoritaire reçue par les parties émergées des cannes de température, de recalage et de l'agitateur n'étant pas prise en compte). Ces travaux montrent que, dans le cas de notre géométrie de creuset froid en régime nominal et des émissivités rencontrées, environ deux tiers du flux thermique sortant de la surface de la fonte est absorbé par la partie émergée de la virole, la part restante étant absorbée par le dôme. Le flux reçu par la partie immergée de la virole issu de la simulation se verra donc ajouter la quantité $\frac{2}{3}\Phi_s$ (où Φ_s désigne ici le flux thermique sortant de la surface de la fonte) afin d'obtenir une estimation du flux total reçu par la virole. Quant au flux thermique reçu par le dôme, non simulé, il sera estimé par la quantité $\frac{1}{3}\Phi_s$. Cette méthode, simple à mettre en œuvre, reste approximative, en raison des hypothèses liées à son utilisation, notamment de surface libre isotherme.

Dans le procédé, l'énergie thermique transmise à l'eau de refroidissement à deux ori-

1. A. LEDOUX et H. NONNET : H15UOX29CV06, CE, SCDV.320, 2016, référence interne CEA

gines distinctes :

- Le flux thermique transmis par le verre aux parois ;
- La dissipation d'énergie électromagnétique dans les parois métalliques par induction et effet Joule.

La modélisation telle qu'abordée dans ces travaux permet de calculer la première contribution, majoritaire. La comparaison quantitative de flux thermique en provenance du verre nécessite donc la mise en place d'une méthodologie expérimentale afin de séparer les deux contributions. Pour ce faire, deux phases successives sont mises en place lors d'un « essai » sur procédé. Une première phase, dite « essai à vide », consiste en l'application d'une tension nominale aux bornes de l'inducteur sans verre à l'intérieur du creuset. Nous mesurons alors d'une part la puissance électrique active débitée par le générateur et, d'autre part, la puissance thermique dissipée dans les différentes structures du creuset par effet Joule grâce à la mesure de l'échauffement des eaux de refroidissement. Cette dernière puissance de perte Joule est loin d'être négligeable et atteint par exemple pour la virole environ 40 kW. La deuxième phase est l'expérience à proprement parlé, où le creuset contient la charge de verre en fusion. Les mêmes mesures que lors de la première phase sont alors réalisées en temps réel. En faisant l'hypothèse que la contribution par perte Joule dans les parois métalliques est inchangée entre les deux situations, les flux thermiques transmis par le verre aux structures sont évalués en soustrayant aux mesures de la deuxième phase celle de l'essai à vide.

Les valeurs de flux thermique sont reportées dans le tableau 7.6 où un bon accord est observé, en termes de flux thermique total mais également de répartition sur les différents éléments refroidis. Une erreur relative importante est toutefois observée pour la sole du creuset. À ce jour, aucune explication ne peut être proposée pour justifier un tel écart, d'autant plus que, comme nous le verrons par la suite, des relevés d'épaisseur de matériau granulaire infondu au contact de la sole montrent un très bon accord avec la simulation. D'autre part, la puissance électrique moyenne fournie par le générateur au verre est définie comme la valeur de la puissance électrique active débitée par le générateur mesurée lors de la deuxième phase, diminuée de la puissance électrique active débitée dans le cas d'un creuset froid vide. Aux erreurs expérimentales près et si aucun changement d'état physique ni aucune réaction chimique exothermique ou endothermique ne se produisent au sein de la fonte, la somme des flux thermiques mesurés dans chaque structure et cette puissance électrique moyenne fournie au verre doivent être égales. Dans le cas présenté, un très bon accord est obtenu entre ces deux valeurs expérimentales, la valeur de puissance électrique transmise étant évaluée à 16 7,9 kW.

Bilan mécanique

Le bilan d'énergie mécanique globale E_m permet d'évaluer l'intensité des sources et puits d'énergie mécanique. Il permet entre autres de quantifier précisément l'efficacité de l'agitation mécanique dans le creuset en évaluant numériquement la puissance mécanique transmise par l'agitateur au verre. L'écriture de ce bilan est obtenue à partir des équations de Navier-Stokes. Dans le cas du creuset froid, considéré comme système fermé, il s'écrit [25] :

$$\frac{dE_m}{dt} = C\omega - E_v + W_b \quad (7.1)$$

Tableau 7.6 – Comparaison quantitative entre expérience et simulation numérique de flux thermiques reçus par les différents éléments refroidis du creuset en régime nominal de fonctionnement - incertitude relative expérimentale de 6 %

Élément	Flux expérimental kW	Flux simulé kW	Erreur relative %
Agitateur	23,9	26,2	9,6
Virole	95,5	99,9	4,6
Sole	16,6	26,1	57,2
Dôme	12,5	13,5	8,0
Cannes et injecteurs	19,0	15,6	17,9
Total	167,5	181,3	8,2

où l'on définit respectivement la puissance de dissipation visqueuse E_v et la puissance mécanique apportée au fluide par les trains de bulles W_b par :

$$E_v = \int_{\Omega} 2\eta \mathbf{d} : \mathbf{d} dv$$

$$W_b = \int_{\Omega} \mathbf{S} \cdot \mathbf{u} dv$$

et où \mathcal{C} est le moment par rapport à l'axe de rotation de l'agitateur des forces exercées par le fluide sur l'agitateur² défini par :

$$\mathcal{C} = \int_{\mathcal{S}} \mathbf{r} \wedge (\boldsymbol{\tau} \cdot \mathbf{n}) ds \cdot \hat{\boldsymbol{\omega}} = \int_{\mathcal{S}} \det(\mathbf{r}, \boldsymbol{\tau} \cdot \mathbf{n}, \hat{\boldsymbol{\omega}}) ds$$

\mathcal{S} désignant la surface de l'agitateur, \mathbf{n} sa normale sortante, \mathbf{r} le vecteur reliant le point de pivot choisi sur l'axe de rotation aux points de la surface de l'agitateur et $\hat{\boldsymbol{\omega}}$ le vecteur directeur unitaire de l'axe de rotation de l'agitateur. En supposant que le système a atteint un état périodique, l'équation de bilan d'énergie mécanique 7.1 permet de calculer le couple moyen de l'agitateur ($\langle \cdot \rangle_t$ désignant la moyenne temporelle) :

$$\langle \mathcal{C} \rangle_t = \frac{1}{\omega} \langle E_v - W_b \rangle_t$$

Dans la pratique, cette dernière expression s'avère plus précise que la formule définissant le couple, nécessitant l'évaluation des contraintes visqueuses à la surface, que la présence d'une couche de verre figée rend imprécise (très faibles taux de déformation et viscosité décuplée). La figure 7.10 représente les variations temporelles de $E_v - W_b$ lors de deux tours complets de l'agitateur à la vitesse $\omega = 6,28$ rad/s, obtenues par simulation numérique instationnaire. Nous obtenons alors une valeur moyenne du couple agitateur $\langle \mathcal{C} \rangle_t = 3,5$ N·m. Cette valeur est à comparer avec la valeur expérimentale typique mesurée sur creuset froid lors de l'agitation de verre de type UOx à la même vitesse $\langle \mathcal{C} \rangle_t \approx 2$ N·m. La simulation nous permet ici d'obtenir la valeur du nombre de Newton caractérisant l'efficacité du système d'agitation mécanique :

$$N_p = \frac{8\pi^3 \langle \mathcal{C} \rangle_t}{\rho d^5 \omega^2} = 1,1$$

2. Que l'on appellera abusivement couple de l'agitateur, bien que la résultante des forces fluides soit en général non nulle et compensée par le système de fixation de l'arbre et le poids de l'agitateur.

où d désigne le diamètre de l'agitateur et ρ la masse volumique moyenne du verre chargé en particules. Cette valeur est typique des agitateurs simples dans une cuve de mélange sans déflecteurs et pour le nombre de Reynolds rencontré dans notre configuration [143].

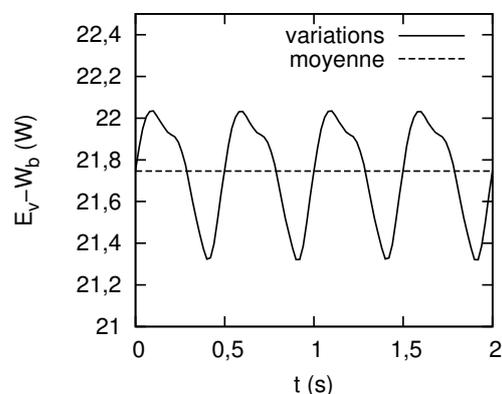


Figure 7.10 – Évolution temporelle de la puissance de dissipation visqueuse totale diminuée de la puissance mécanique transmise au verre par les trains de bulles $E_v - W_b$ lors de deux tours complets de l'agitateur à la vitesse $\omega = 6,28$ rad/s en régime périodique établi

7.2.5 Couche pariétale de fritte de verre

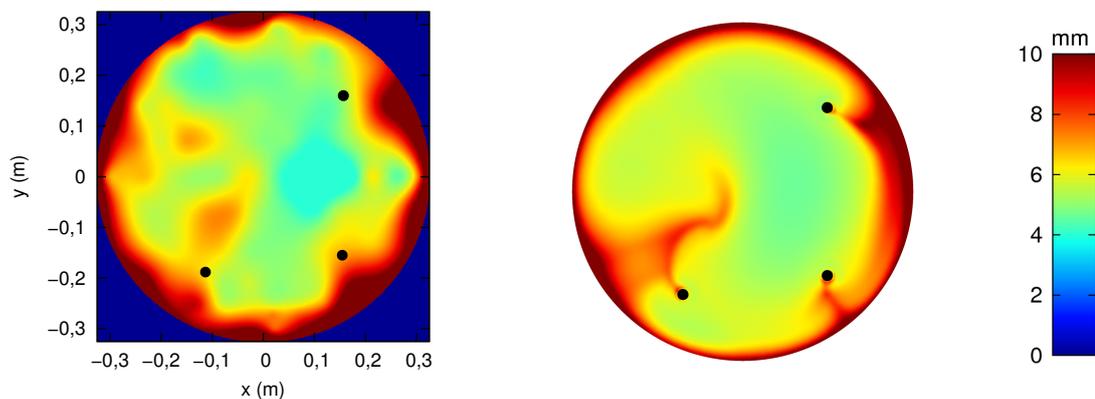
Après vidange totale du four de fusion, une partie du verre ne s'écoule pas par l'orifice de coulée et reste au fond du creuset. Il s'agit d'une couche de verre figée sur la sole appelée reliquat. Après démontage du four (séparation de la virole de la sole) et retrait de cette couche de verre, la part de fritte de verre qui n'a pas subi de fusion, située entre la charge fondue et la sole est observable (cf. figure 7.11). 112 relevés d'épaisseur de cette couche de fritte infondue ont été réalisés grâce à un pied à coulisse avec jauge de profondeur. Dans la pratique, une part de fritte de verre reste fixée au reliquat de verre fondu lors du retrait de ce dernier et, pour en tenir compte, une épaisseur constante de l'ordre de la taille des grains de fritte (environ 4 mm) est systématiquement ajoutée à la mesure. Après interpolation par splines, nous obtenons une carte d'épaisseur de fritte infondue e sur la sole du creuset. Ce résultat expérimental est directement comparable aux résultats de simulation (cf. figure 7.12 et 7.13), pour lesquels l'épaisseur s'obtient numériquement grâce à l'inversion de 2.34 :

$$e = \frac{\lambda_e}{h_{ext}}$$

Cette épaisseur est inversement proportionnelle au flux thermique surfacique local q (démonstré dans la section 2.2.7). Les cartes présentées sont donc une image de la répartition du flux thermique sur la sole du creuset, où les zones de relative faible épaisseur sont révélatrices de flux thermiques locaux relativement élevés et donc de sollicitations thermiques importantes.

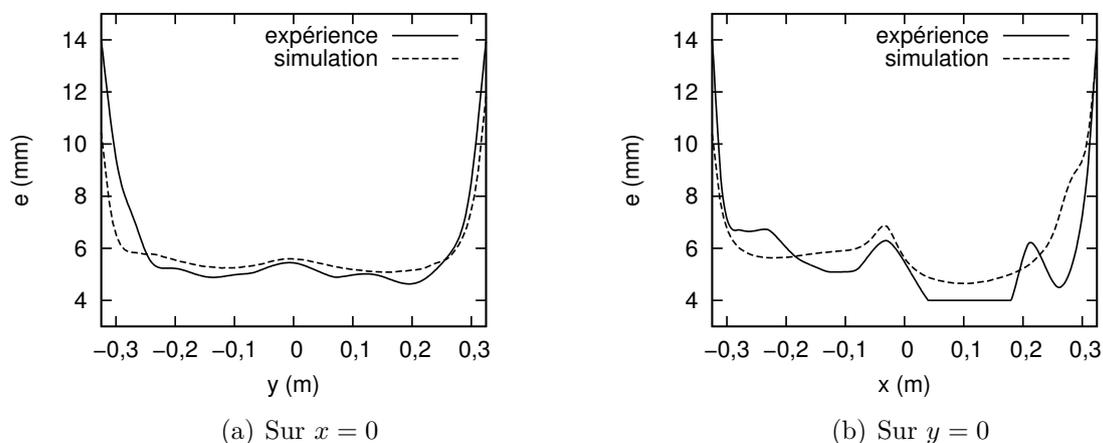


Figure 7.11 – Reliquat de verre présent sur la sole du creuset après vidange totale (en cours de retrait) - couche de fritte de verre restante après retrait du reliquat de verre coalescé



(a) Résultats expérimentaux obtenus sur creuset froid (b) Carte obtenue par simulation numérique

Figure 7.12 – Épaisseur de fritte de verre infondue sur la sole du creuset e



(a) Sur $x = 0$

(b) Sur $y = 0$

Figure 7.13 – Comparaison quantitative entre simulation et expérience de l'épaisseur de fritte de verre infondue sur la sole du creuset e

7.3 Cas 2 - Creuset froid avec sédimentation des platinoïdes

Comme nous l'avons décrit précédemment, le régime nominal du creuset froid est caractérisé par des paramètres de fonctionnement bien définis (agitation mécanique, débits d'injection d'air, température atteinte sur les cannes de mesure de température...). Lorsque des conditions de fonctionnement largement en dehors du régime nominal sont atteintes lors de phases de test du creuset froid, certaines zones de verre peuvent se trouver à des températures et des taux de cisaillement en dehors d'une gamme acceptable assurant la stabilité thermodynamique et l'homogénéité du verre. Ces écarts sont à l'origine de l'agrégation des particules de platinoïdes pouvant être observée lors de tels régimes de fonctionnement. Le cas 2 discuté ici permet d'aborder la situation de sédimentation des particules de platinoïdes lorsque ces dernières présentent une forte agrégation ou une taille bien supérieure à leur taille nominale. Les valeurs des paramètres du modèle de transport sont choisies en accord avec les expériences de sédimentation réalisées : vitesse terminale de Stokes $\tau_0 = 3,5 \cdot 10^{-7}$ m/s, diffusivité $\kappa_0 = 1,0 \cdot 10^{-9}$ m²/s et fraction compacte $C_a = 10\%$. Nous utiliserons, comme présenté dans la section 3.3.2, une accélération de sédimentation $\chi = 10^5$, qui correspond à une forte agrégation de particules pour laquelle la convection forcée n'assure plus une remise en suspension suffisante ($\mathcal{N}/(ReSc) \sim 10^{-2}$).

7.3.1 Sédimentation des platinoïdes

Au début du calcul stationnaire, un champ uniforme de fraction volumique de valeur $\bar{C} = 0,7\%$ est prescrit. La figure 7.14 représente le champ de fraction volumique en particules dans le creuset après obtention du régime périodique établi. On observe un appauvrissement du verre en convection au détriment d'une accumulation en fond de creuset, en raison d'une remise en suspension insuffisante par l'agitation mécanique et les injecteurs d'air.

L'obtention de cartes expérimentales précises de sédimentation de platinoïdes sur la sole du pilote industriel étant complexe, nous comparons les résultats de simulation numérique avec les résultats obtenus par Riva et al.³ lors d'expériences en similitude hydraulique (cf. figure 7.15). L'expérience a été réalisée à température ambiante dans une cuve transparente à l'image du creuset froid nucléarisé en vraie grandeur. Une similitude hydraulique approchée avec le régime nominal est assurée par l'utilisation d'un volume de 147 litres d'huile méthylpolysiloxane de viscosité cinématique adaptée ainsi que la reproduction des systèmes d'agitation (agitateur mécanique et injecteurs d'air, d'intensité adaptée), des cannes de température et de recalage. Les particules utilisées sont des billes de céramique (ZrO_2-SiO_2) à la fraction volumique moyenne de 0,18%. Les paramètres expérimentaux sont reportés dans le tableau 7.7 et permettent l'évaluation de la vitesse de sédimentation de Stokes dans l'huile utilisée :

$$\tau = \frac{d_p^2(\rho_p - \rho_f)g}{18\eta} \approx 2 \cdot 10^{-5} \text{ m/s}$$

La similitude concernant la dynamique de remise en suspension n'est donc pas assurée avec nos simulations puisque cette valeur de vitesse de Stokes entraîne :

3. Travaux de R. RIVA et al. (DEN/DTCD/SE2T/LTGD/2008-011)

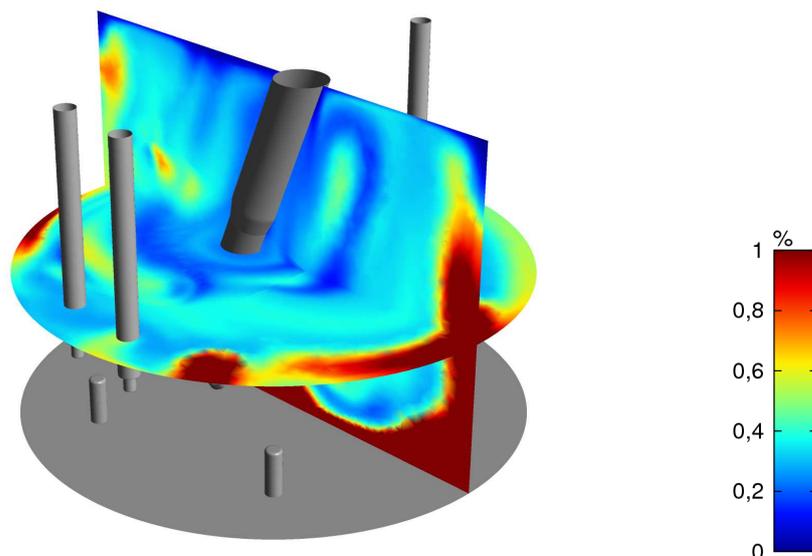


Figure 7.14 – Champ de fraction volumique en particules de platinoïdes dans le verre C lors de la simulation numérique du creuset froid en régime de sédimentation (forte agrégation de particules)

$$\frac{\mathcal{N}}{ReSc} = \frac{\tau}{U} \sim 10^{-5} \ll 10^{-2}$$

Ceci est toutefois compensé par une plus grande fraction compacte des particules utilisées dans la similitude, dont la forme sphérique implique une valeur de l'ordre de 60 %. En effet, la concentration maximale atteinte en fond de creuset étant une fonction croissante de la fraction compacte (voir équation 5.16), une telle valeur permet d'atteindre des concentrations en particules suffisamment importantes sur la sole pour être observées. Enfin, hormis le phénomène de décantation et de diffusion, les particules utilisées se comportent bien comme des traceurs ($St \sim 10^{-5} \ll 1$).

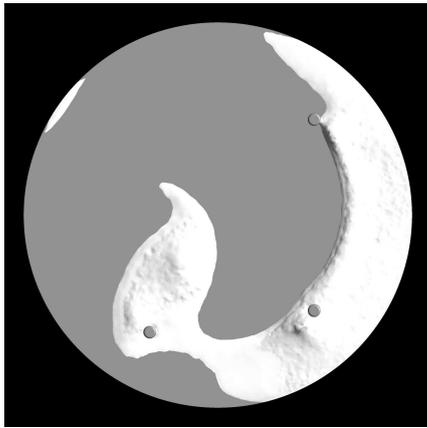
Tableau 7.7 – Paramètres expérimentaux de l'expérience de sédimentation en similitude hydraulique approchée réalisée par Riva et al.

Paramètre	Valeur
Diamètre des particules	200 – 400 μm
Masse volumique des particules	3850 kg/m^3
Masse volumique de l'huile	970 kg/m^3
Viscosité cinématique de l'huile	8,9.10 ⁻³ m^2/s

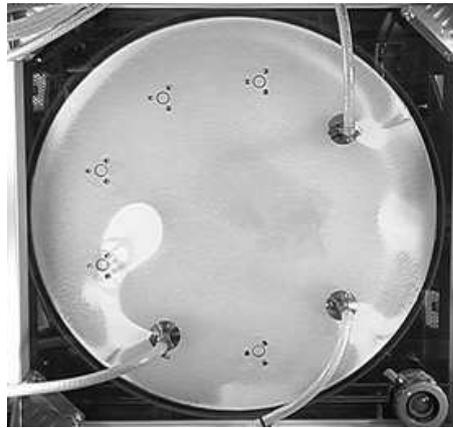
Une bonne concordance est observée, avec une agglomération de particules sous l'agitateur mécanique ainsi que des amas au niveau des injecteurs d'air. L'agglomération de particules sous l'agitateur mécanique est typique des suspensions de particules en rotation. On observe en effet dans les fluides centrifugés par agitation mécanique (agitateur en rotation au centre d'un réservoir) la mise en place d'un écoulement cellulaire secondaire. Cet écoulement est dû au déséquilibre entre gradient de pression et forces d'inertie près du fond du réservoir [144], dans la couche limite d'Ekman d'épaisseur donnée par 6.1 :

$$\delta \sim \sqrt{\frac{\nu}{\omega}} \approx 1,5 \text{ cm}$$

En général, l'écoulement secondaire présente une cellule de convection où le fluide s'éloigne du centre au niveau de l'agitateur, s'enfonce dans le réservoir puis migre à nouveau vers le centre au fond du réservoir pour remonter sous forme de colonne ascendante centrale. Lorsque des particules sédimentantes sont présentes, cet écoulement tend à concentrer les particules sédimentées sous l'agitateur alors qu'intuitivement, les forces inertielles telles que la force centrifuge (négligeables dans notre cas) auraient tendance à repousser les particules vers la périphérie du réservoir. Ce phénomène porte le nom de « paradoxe des feuilles de thé » et a été en particulier décrit et expliqué par A. Einstein [144].



(a) Carte obtenue par simulation numérique - iso-contour blanche de fraction volumique en particules 5,3%



(b) Résultats obtenus en similitude hydraulique par Riva et al. après un brassage de 4 h

Figure 7.15 – Zones de sédimentation préférentielle des particules de platinoïdes sur la sole du creuset

Dans les zones de sédimentation, la fraction volumique en particules simulée dépasse le seuil de percolation $C_p = 5,5 \%$ et atteint environ 6% . De telles concentrations impactent donc l'induction électromagnétique et le comportement thermique de la fonte.

7.3.2 Modification de la réponse à l'induction électromagnétique et des flux thermiques

En raison de l'augmentation locale significative de conductivité électrique, l'accumulation de platinoïdes en fond de creuset entraîne une concentration des courants induits dans ces zones, dissipant une forte puissance Joule, comme le montre la figure 7.16. Afin de maintenir une température nominale de 1473 K , le champ magnétique imposé doit alors être diminué à $B = 1,26 \text{ mT}$, soit une diminution de $2,4 \%$ par rapport à sa valeur nominale.

Le tableau 7.8 reporte les impacts de la sédimentation des particules de platinoïdes sur les flux thermiques reçus par les éléments du creuset en provenance du verre, évalués par simulation numérique. Le phénomène de sédimentation tend à redistribuer les flux thermiques. Ainsi, malgré la diminution du champ magnétique imposé, la sole du creuset

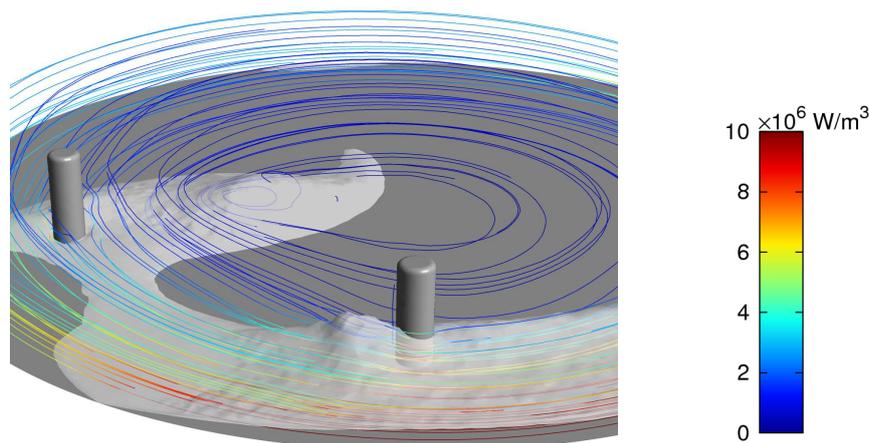


Figure 7.16 – Déviation des lignes de courants induits en quadrature de phase \mathbf{j}_i vers les zones de sédimentation des platinoïdes, colorées par la puissance Joule locale

subit par exemple une augmentation significative du flux thermique en provenance du verre.

Tableau 7.8 – Comparaison quantitative de flux thermiques reçus par les différents éléments refroidis du creuset entre un régime nominal de fonctionnement et un régime de sédimentation des platinoïdes.

Élément	Flux simulé kW	Évolution relative %
Agitateur	26,0	-0,4
Virole	101,4	+1,5
Sole	27,9	+6,9
Dôme	11,5	-14,8
Cannes et injecteurs	16,0	+2,6
Total	182,8	+0,8

7.3.3 Performances de la simulation numérique

La résolution numérique du cas 2 fait usage de l'ensemble du modèle, transport des particules compris. Ce cas est donc particulièrement intéressant pour l'étude des performances globales de la simulation numérique proposée dans nos travaux. Les processeurs utilisés sont des Intel® Xeon® E5 – 2670 v2.

Accélération en latence

La plupart des développements réalisés permettent de paralléliser de manière efficace les calculs menés dans le cadre du creuset froid industriel. Nous étudions ici l'accélération en latence de la simulation magnéto-thermo-hydraulique basée sur le logiciel ANSYS FLUENT® augmenté des codes développés dans le cadre de ces travaux AV-AF et C-AF. Cette étude permet notamment d'évaluer la fraction parallélisée p du code de calcul

complet, c'est-à-dire la fraction exécutée de manière simultanée par l'ensemble des cœurs alloués pour la simulation, qui constitue un estimateur quantitatif de l'efficacité de la résolution du problème multiphysique. Différentes simulations numériques ont ainsi été lancées avec un nombre de cœurs différents sur une architecture à mémoire partagée. La tâche de calcul a consisté en 30 itérations externes d'un cas stationnaire. L'évaluation de l'accélération en latence se base sur la mesure du temps nécessaire au code parallélisé sur N cœurs pour exécuter cette tâche $T(N)$ et la comparaison au temps pris par le code non parallélisé pour exécuter cette même tâche $T(1)$. En considérant la parallélisation optimale (équilibre des charges de calcul, temps de communication courts...), l'accélération en latence en fonction du nombre de cœurs utilisé N est donné par la loi d'Amdahl [145] :

$$S_{latence}(N) = \frac{T(1)}{T(N)} = \frac{1}{1 - p + \frac{p}{N}}$$

La figure 7.17 présente les résultats obtenus ainsi que la loi d'Amdahl se rapprochant le plus des accélérations observées, obtenue pour une valeur de fraction parallélisée $p = 97,2\%$. Une telle valeur révèle une très bonne efficacité de la résolution du couplage magnéto-thermo-hydraulique et permet, sur un grand nombre de cœurs de calcul, d'atteindre une accélération en latence maximale :

$$S_{latence}(N \rightarrow +\infty) = \frac{1}{1 - p} \approx 36$$

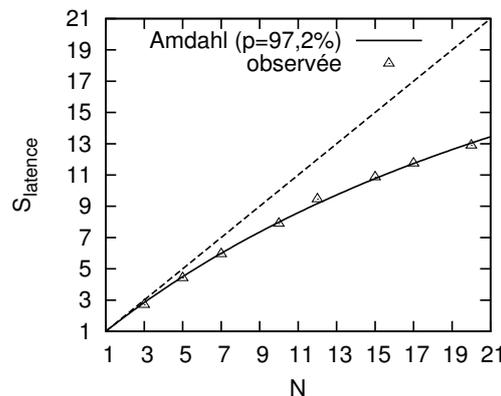


Figure 7.17 – Accélération en latence observée lors de la simulation numérique du creuset froid - comparaison à la loi d'Amdahl pour une valeur de fraction parallélisée $p = 97,2\%$

Temps caractéristiques de calcul

De manière générale, une itération externe de résolution de l'ensemble des physiques dure environ 30 s lorsque le calcul est parallélisé sur 20 cœurs. Les temps de convergence pour l'obtention d'un régime périodique établi dans le cas 2 sont donc les suivants :

- Calcul stationnaire MRF : 200 itérations externes en 100 min de temps de calcul ;
- Calcul instationnaire SMM : 1500 pas de temps soit un temps physique de 30 s en 250 h de temps de calcul.

7.4 Cas 3 - Creuset froid avec mesure spécifique de flux thermique surfacique

7.4.1 Conception d'un outil de mesure spécifique

Nous nous sommes attachés à concevoir un instrument de mesure spécifique capable d'évaluer précisément le flux thermique qu'il reçoit en provenance de la charge de verre dans laquelle il est plongé, afin de permettre des comparaisons expérimentales encore plus précises entre simulation numérique et mesures sur procédé. Sur le procédé, cet instrument est installé au détriment de la canne de recalage. Afin d'augmenter la précision de mesure, l'instrument devait notamment vérifier deux critères clés, qu'aucune structure du creuset froid ne satisfaisait :

- Une zone de mesure totalement immergée dans la fonte de verre ;
- Une géométrie limitant la dissipation de puissance Joule dans les structures métalliques le composant.

La première condition permet d'éliminer la contribution du rayonnement de la surface de verre au flux thermique mesuré, en général non négligeable lorsqu'une partie de l'élément considéré présente une partie émergée. La deuxième condition se traduit essentiellement par une condition de faible rayon, limitant ainsi le flux magnétique à travers le composant.

Principe de mesure

Considérons un cylindre de rayon R et hauteur l immergé dans le fluide en convection, refroidi par une circulation interne d'eau pressurisée. L'eau descend avec un débit volumique Q à l'intérieur d'une veine centrale et remonte dans l'espace annulaire extérieur comme représenté sur la figure 7.18. \mathbf{q} dénote le vecteur flux thermique surfacique en provenance du verre et \mathbf{n} la normale sortante du domaine de verre. $T_e(z)$ et $T_s(z)$ dénotent respectivement la température de l'eau (hors des couches limites) à l'altitude z dans la veine intérieure et extérieure. Nous cherchons à mesurer le flux thermique surfacique moyen reçu par le cylindre :

$$\bar{q} = \frac{1}{2\pi l} \int_0^{2\pi} \int_0^l \mathbf{q} \cdot \mathbf{n} dz d\theta$$

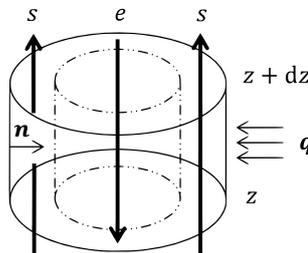


Figure 7.18 – Géométrie du cylindre de mesure de flux thermique

Le cylindre est instrumenté avec $n \geq 2$ couples de thermocouples (l'un dans la veine centrale et l'autre dans l'espace annulaire extérieur) régulièrement espacés d'une altitude $\Delta z = l/(n - 1)$, fournissant une série de n mesures du différentiel $(T_s - T_e)(z)$ notée $(\Delta T_i)_{1 \leq i \leq n}$. Lorsque $\mathbf{q} = 0$, nous mesurons une série d'offsets $(\Delta T_{0i})_{1 \leq i \leq n} \neq 0$ en raison de l'erreur systématique de chaque thermocouple que l'on considérera constante sur la

plage de températures d'eau considérée. Les mesures de température collectées lors de l'expérimentation permettent alors de déterminer le flux thermique selon :

$$\bar{q} = \frac{6\rho_{eau}c_{p,eau}Q}{\Delta z(n-1)n(n+1)\pi R} \sum_{i=1}^n \left((\Delta T_i - \Delta T_{0i}) \left(i - \frac{n+1}{2} \right) \right) \quad (7.2)$$

Démonstration. En considérant les propriétés thermodynamiques de l'eau constante dans la gamme de températures considérée, le bilan énergétique sur une portion du cylindre située entre z et $z + dz$ s'écrit :

$$\begin{aligned} \int_0^{2\pi} \mathbf{q} \cdot \mathbf{n} R d\theta dz &= \rho_{eau} c_{p,eau} Q (T_e(z) + T_s(z + dz) - T_e(z + dz) - T_s(z)) \\ \Rightarrow \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \mathbf{q} \cdot \mathbf{n} d\theta &= \frac{\rho_{eau} c_{p,eau} Q}{2\pi R} \frac{dT_s - T_e}{dz} \end{aligned}$$

Le différentiel thermique $(T_s - T_e)(z)$ est alors approximé par une régression linéaire par méthode des moindres carrés :

$$(T_s - T_e)(z) \approx \alpha z + \beta$$

où :

$$\alpha = \frac{12}{\Delta z(n-1)n(n+1)} \sum_{i=1}^n \left((\Delta T_i - \Delta T_{0i}) \left(i - \frac{n+1}{2} \right) \right) \approx \frac{dT_s - T_e}{dz}$$

D'où le résultat. □

On définit l'erreur d'interpolation par $err = 1 - r^2$, où r est le coefficient de corrélation linéaire. L'utilisation de la régression linéaire permet la prise en compte de l'ensemble des mesures $(\Delta T_i)_{1 \leq i \leq n}$. La sensibilité de l'évaluation du flux thermique à la mesure ΔT_i est donnée par (C désignant une constante positive) :

$$\left| \frac{\partial \bar{q}}{\partial \Delta T_i} \right| = \frac{2C \left| i - \frac{n+1}{2} \right|}{\Delta z(n-1)n(n+1)} \leq \frac{C}{ln} \sim \frac{1}{n}$$

Ainsi, l'augmentation du nombre de couples de thermocouples permet de diminuer l'influence du bruit de mesure de chaque couple. On notera que l'utilisation d'un nombre impair de couples est peu judicieuse car la mesure $\Delta T_{\frac{n+1}{2}}$ aurait un poids nul dans l'évaluation du flux thermique.

Choix de la géométrie de la veine extérieure

Le calcul précédent est valable seulement si les températures mesurées sont indépendantes de la position angulaire des thermocouples θ . Dans la pratique, où le flux surfacique peut être très inhomogène le long de la circonférence du cylindre de mesure, la veine de remontée d'eau est « enroulée » autour de la veine centrale pour que la condition d'indépendance soit respectée. Le circuit extérieur est donc un hélicoïde de pas p comme présenté sur la figure 7.19. Cette configuration permet également (et surtout) d'améliorer la précision de la mesure grâce à une augmentation du coefficient d'échange thermique dans la couche limite turbulente d'eau de la paroi externe. Ce phénomène a deux causes :

- La première est géométrique. En effet, le coefficient d'échange thermique dans la couche turbulente d'eau de la paroi externe est une fonction croissante du nombre de Reynolds basé sur le diamètre hydraulique de la veine extérieure :

$$Re_{D_h} = \frac{UD_h}{\nu_{eau}}$$

où $U = Q/A$ est la vitesse de l'eau, avec A l'aire de la section de passage de la veine extérieure, qui est un rectangle de longueur a et de hauteur b . En notant $P = 2(a + b)$ le périmètre de la section de passage de la veine extérieure :

$$Re_{D_h} = \frac{4Q}{P\nu_{eau}} \propto \frac{Q}{P}$$

Or, le périmètre mouillé d'une section annulaire est minoré par $2\pi R$ tandis que le périmètre mouillé d'une section d'hélicoïde $2(a + b)$ peut être pris aussi petit que voulu en augmentant le diamètre de la veine intérieure (diminuant ainsi b) et en réduisant le pas p (diminuant ainsi a). Ainsi, la diminution du pas de l'hélicoïde (augmentation du nombre de tours) permet une augmentation du coefficient d'échange thermique. Dans la pratique, l'apparition de fortes pertes de charges régulières lorsque le pas de l'hélicoïde est trop faible impose un pas minimum. Xing et al. [146] ont montré que les configurations avec des rapports d'aspect a/b faibles permettaient de diminuer les pertes de charges régulières sans altérer le coefficient d'échange thermique ;

- La seconde est l'apparition d'un écoulement radial secondaire dans la veine hélicoïdale, augmentant le transfert thermique convectif vers l'eau de refroidissement [146].

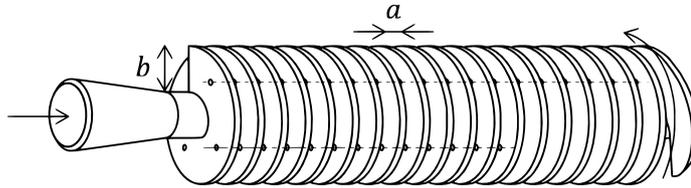


Figure 7.19 – Géométrie interne du cylindre de mesure de flux thermique - les flèches indiquent le sens de circulation de l'eau de refroidissement

Dans les deux cas mentionnés, l'augmentation du coefficient d'échange thermique permet une diminution du débit d'eau Q tout en maintenant un refroidissement suffisant de la paroi externe pour éviter de dépasser la température d'ébullition de l'eau. La diminution de Q permet, à flux surfacique donné, d'augmenter l'échauffement de l'eau de refroidissement et donc la précision relative de la mesure.

Instrumentation et implantation sur le creuset froid inductif

L'eau de refroidissement est maintenue à une température de 300 K en entrée du circuit interne grâce à un échangeur thermique muni d'un régulateur PID. Le débit d'eau est mesuré grâce à un débitmètre à ailette en ligne et ajusté grâce à une vanne à pointeau manuelle, placés en aval du circuit interne. La zone cylindrique de mesure est munie de 8 thermocouples compensés de type K (4 couples de 2) régulièrement espacés en altitude,

et fixée au bout d'une canne support refroidie fixée et isolée électriquement du creuset (cf. figure 7.20). L'ensemble des structures immergées sont en acier inoxydable.

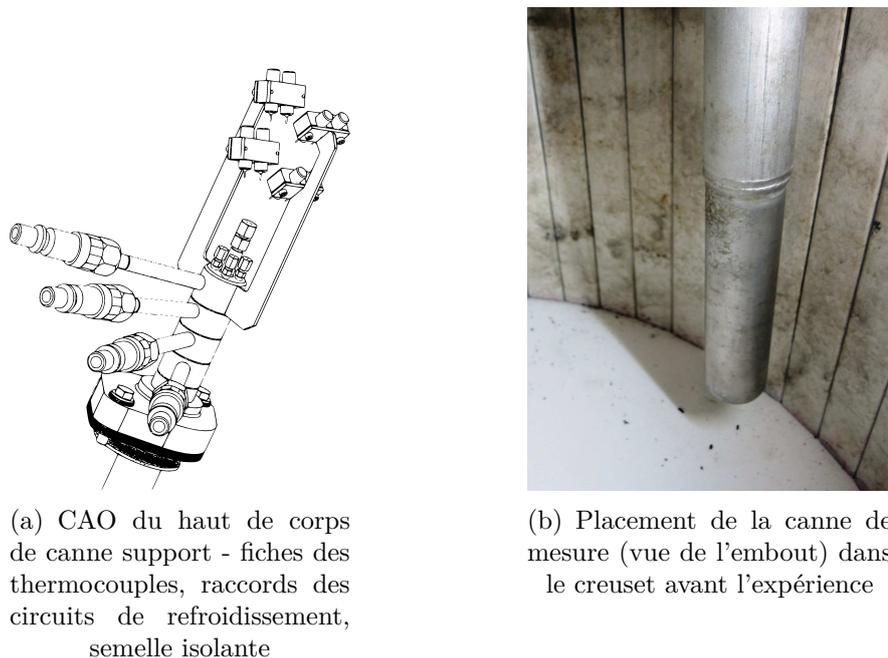


Figure 7.20 – Canne de mesure de flux implantée sur le creuset froid nucléarisé

7.4.2 Comparaisons quantitatives de flux thermique

Nous présentons les résultats obtenus lors d'une campagne de fusion de verre de type UOx en creuset froid⁴. L'essai a comporté trois phases de mesures :

- Sans aucune induction électromagnétique et circuits de refroidissement en marche, les offsets $(\Delta T_{0i})_{1 \leq i \leq 4}$ à flux thermique nul ont été mesurés et sont reportés dans le tableau 7.9 ;
- À vide de verre et inducteur alimenté, la puissance dissipée par effet Joule dans les internes de mesure s'est avérée négligeable, de l'ordre de 100 W ;
- Lors de la fusion d'une masse $m \approx 281$ kg de verre de type UOx.

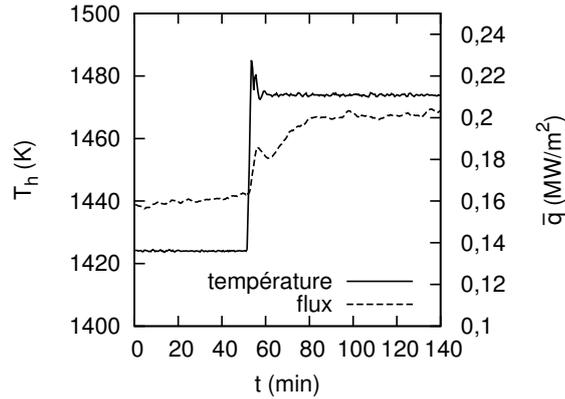
Le rayon de l'embout de mesure de flux est $R = 20$ mm et sa hauteur efficace $l = 129$ mm. Le débit d'eau de refroidissement circulant dans ses internes était de $Q \approx 350$ dm³/h, assurant ainsi l'absence de points d'ébullition dans l'interne de mesure. La figure 7.21 présente l'évolution au cours du temps de la température chaude de consigne T_h et du flux thermique surfacique moyen \bar{q} reçu par l'embout de mesure lors de deux paliers de stabilisation à différentes températures de consigne. Sur la période représentée, l'erreur d'interpolation était stable, variant entre 1,5 % et 4,0 % avec une valeur moyenne de 2,7 %, ce qui démontre à la fois la précision et la stabilité importantes de la mesure de flux thermique ainsi que son homogénéité le long du cylindre de mesure.

Le cas est par ailleurs résolu par simulation numérique instationnaire (méthode SMM) selon la stratégie déjà présentée. Le niveau de verre prescrit est de 340 mm et les températures de 1423 K et 1473 K sont maintenues en utilisant un champ magnétique de 1,42 mT.

4. E. SAUVAGE : C15UOX30RE16, CE, SCDV.314, 2016, référence interne CEA

Tableau 7.9 – Série d'offsets $(\Delta T_{0i})_{1 \leq i \leq 4}$ mesurés à flux thermique nul

Couple	ΔT_0 K
1	0,7
2	0,1
3	0,0
4	0,8


 Figure 7.21 – Évolution au cours du temps de la température chaude de consigne T_h et du flux thermique surfacique moyen \bar{q} reçu par l'embout de mesure lors de paliers de stabilisation à différentes températures de consigne

Le fait que la même valeur du champ magnétique soit nécessaire au maintien des deux températures est dû à la chute de conductivité électrique pour la plus faible température, entraînant une dissipation de puissance Joule par induction électromagnétique moins puissante que pour la température nominale, à champ imposé identique. Par contre, la valeur du champ magnétique doit être plus élevée que dans le cas nominal (cas 1) en raison de la différence de niveau de verre h :

$$B \sim \sqrt{1 + \frac{L}{h}}$$

Démonstration. En considérant que la charge est un cylindre de hauteur h variable et de rayon L fixé, pour un régime stationnaire, la puissance Joule globale $P_J \sim B^2 V(\Omega) \sim B^2 L^2 h$ doit compenser le flux thermique échangé aux frontières $\Phi \sim S_c \sim (Lh + L^2)$. D'où :

$$B^2 L^2 h \sim (Lh + L^2)$$

et donc la relation proposée. \square

La figure 7.22 présente la répartition du flux thermique surfacique sur l'embout de mesure obtenue par simulation, pour une température de consigne de 1473 K. Nous observons une forte inhomogénéité radiale (et non axiale), avec un maximum de flux thermique en regard de l'agitateur. Les comparaisons quantitatives entre les flux thermiques surfaciques stabilisés expérimentaux et les résultats de simulation sont présentées dans le tableau 7.10. Un bon accord est observé. Sont également reportées dans ce tableau les valeurs moyennes

du coefficient d'échange thermique h_{ext} donnée par 2.36 à la surface de l'instrument de mesure et du coefficient d'échange thermique global H donné par 2.23. Ces valeurs montrent en particulier qu'une part non négligeable du flux thermique est échangée sous forme radiative et sont cohérentes avec la valeur proposée récemment par Chen et al. [17] lors de l'étude d'une fonte d'oxyde en creuset froid, de $300 \text{ W/m}^2/\text{K}$. Le modèle de coefficient d'échange capture bien l'amélioration du contact thermique lors d'une augmentation de température, due à la diminution de l'épaisseur de couche granulaire séparant la charge des surfaces refroidies.

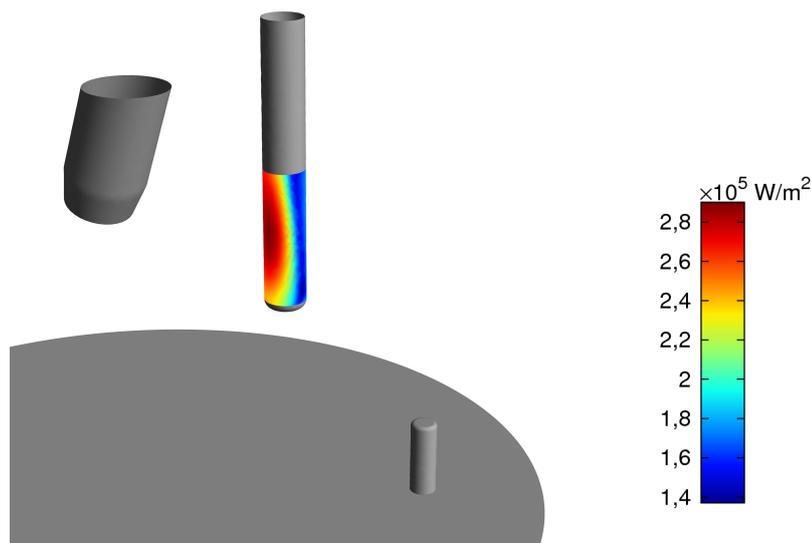


Figure 7.22 – Répartition du flux thermique surfacique sur l'embout de mesure obtenue par simulation numérique instationnaire, pour une température de consigne de 1473 K

Tableau 7.10 – Comparaisons quantitatives de flux thermique surfacique sur un instrument de mesure dédié

T_h K	\bar{q} (exp.) $\times 10^5 \text{ W/m}^2$	\bar{q} (simu.) $\times 10^5 \text{ W/m}^2$	Erreur relative %	h_{ext} $\text{W/m}^2/\text{K}$	H $\text{W/m}^2/\text{K}$
1423	1,58	1,78	12,7	121	181
1473	2,02	2,22	9,9	153	217

7.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons appliqué l'ensemble des développements mathématiques et numériques à quatre cas représentatifs des conditions expérimentales du creuset froid inductif dédié à la vitrification des déchets issus des réacteurs à usage civil. Si le premier cas étudié a permis de valider l'efficacité de l'approche multiphysique et multi-échelle mise en place grâce à l'analyse d'une configuration simple, il montre également l'importance des phénomènes dus au couplage des différentes physiques et leur impact sur des grandeurs intégrées telles que puissance électromagnétique dissipée et flux thermiques.

Nous nous sommes par la suite intéressés à la simulation numérique de trois cas sur géométrie réelle. Les paramètres numériques optimaux ont été détaillés étant donnés les capacités et les temps de calcul disponibles. Le cas 1 correspond notamment à la simulation la plus précise et la plus complète à l'heure actuelle d'une élaboration de verre de type UOx en creuset froid et constitue à ce jour une référence au même titre que les campagnes expérimentales de qualification du procédé de creuset froid réalisées au CEA. L'étude qualitative et quantitative des résultats numériques ainsi que leur comparaison à plusieurs résultats expérimentaux obtenus sur procédé a mis en exergue la capacité de notre modélisation à rendre compte précisément des transferts d'énergie et de l'état de la fonte lors d'un régime périodique établi. Nous obtenons en particulier une bonne prédictibilité des valeurs de flux thermiques reçus par les éléments refroidis du creuset et une cartographie précise des zones les plus sollicitées électriquement et thermiquement. Le cas 2 constitue une étude du phénomène de sédimentation des particules de platinoïdes dans le cas où ce phénomène est observé c'est-à-dire en régime de fonctionnement dégradé ayant entraîné une forte agrégation ou augmentation de la taille des particules et accélérant ainsi leur sédimentation. Les zones de sédimentation préférentielles sur la sole du creuset ont été comparées aux résultats obtenus lors de travaux en similitude hydraulique, montrant une correspondance très satisfaisante. L'impact d'une telle accumulation sur l'induction électromagnétique et la thermique a alors été étudié. Le cas 3 s'intéresse plus précisément à la comparaison quantitative de flux thermique reçu par un instrument de mesure spécialement conçu pour cette étude, totalement immergé dans la fonte de verre et muni d'un dispositif de mesure ayant montré des performances très satisfaisantes en termes de précision et de stabilité. Des valeurs numériques ont alors été données pour le coefficient d'échange thermique global et s'avèrent comparables à la littérature récente.

Enfin, nous avons mené une étude des performances de la simulation numérique en termes d'accélération en latence et temps total de calcul lors de la parallélisation sur plusieurs cœurs de calcul sur une architecture à mémoire partagée de 20 cœurs. Grâce à l'ensemble des développements réalisés au cours de nos travaux, la valeur de la fraction parallélisée atteint plus de 97% pour la résolution de l'ensemble des physiques couplées.

Chapitre 8

Conclusions et perspectives

8.1	Conclusions	156
8.1.1	Modélisation thermohydraulique	156
8.1.2	Modélisation des particules et de l'induction	156
8.1.3	Simulation numérique	157
8.2	Perspectives	157

Nous résumons dans cette dernière partie les principales avancées issues des travaux présentés, où un ensemble de phénomènes magnéto-thermo-hydrauliques a été étudié, caractérisé, modélisé puis simulé à l'échelle industrielle. Les limites de notre approche et les perspectives d'amélioration associées sont également abordées.

8.1 Conclusions

8.1.1 Modélisation thermohydraulique

Amélioration de la modélisation du transport d'énergie. Cette étude a proposé une prise en compte du rayonnement à la fois au sein de la fonte verrière opaque mais également aux frontières du domaine fluide, grâce à une écriture précise des conditions aux limites thermiques. La présence d'une couche de fritte de verre au contact des parois refroidies a nécessité le développement d'un modèle de résistance de contact thermo-dépendante permettant d'améliorer le bilan thermique simulé. Nous avons démontré que notre modèle s'approchait de la condition de Dirichlet généralement utilisée dans la limite des faibles porosités de couche granulaire.

Étude analytique de l'impact d'une viscosité du verre fortement dépendante de la température sur les flux thermiques. Une analyse de couche limite a permis de proposer une nouvelle loi de corrélation entre flux thermique et paramètres du problème (température de chauffe, intensité d'agitation, paramètres VFT...). Cette loi explique en particulier les fortes variations de flux thermique observées sur le procédé de creuset froid lors d'une variation de la température de consigne et prédit avec une grande précision les variations attendues en fonction de paramètres rhéologiques du verre mesurables en laboratoire. Elle permet également de détecter de possibles dérives de températures mesurée ou de composition chimique du verre lorsque ses prédictions sont mises en défaut.

Instrumentation pour la mesure précise de flux thermique. Un instrument de mesure de flux thermique sur creuset froid a été conçu, dimensionné, fabriqué et mis en service sur les prototypes du laboratoire. Cet instrument, refroidi et immergé dans le bain de verre, a pour but de mesurer précisément le flux thermique surfacique moyen qu'il reçoit en provenance du verre, pour différents points de fonctionnement du procédé. Le principe a démontré une grande robustesse ainsi qu'une grande précision de mesure, permettant des comparaisons quantitatives directes à l'échelle du pilote avec les résultats de simulation numérique globale du procédé. Il a entre autres mené à la validation du modèle de contact thermique entre fonte et parois refroidies et donc à l'évaluation précise du coefficient d'échange thermique moyen lié à la présence d'une couche de fritte de verre infondue.

8.1.2 Modélisation des particules et de l'induction

Modélisation d'une phase de particules conductrices. Une grande partie de l'étude a été dédiée à la prise en compte de la présence de particules de platinoïdes dans les verres de type UOx. Nous avons ainsi proposé une modélisation de leur transport au sein du verre, agité ou non, soutenue par des résultats expérimentaux. Une approche Eulérienne a été choisie, en décrivant les particules sous la forme d'un champ de concentration volumique variable dans le temps et l'espace. Cette formulation nous a permis de prendre en compte des phénomènes de transport des particules comme leur sédimentation entravée ou encore leur diffusivité de polydispersion.

Étude du comportement des particules en suspension. La modélisation du transport des particules de platinoïdes a permis d'appréhender et de quantifier leur com-

portement dans une fonte verrière. Plusieurs phénomènes ont été abordés, comme la sédimentation individuelle ou « en nuage » et l'agglomération sous écoulement secondaire. L'étude précise de la croissance des instabilités de Rayleigh-Taylor dans le cas d'une couche de verre chargée en platinoïdes surnageant une zone moins concentrée constitue un pas en avant vers l'étude de l'alimentation du creuset froid en matière durant son fonctionnement.

Étude de l'induction dans une suspension de particules. Après avoir démontré la pertinence de l'utilisation d'une conductivité électrique effective, nous avons appliqué nos codes de simulation à l'échelle microscopique en résolvant le passage de courants électriques à travers des échantillons de verres tomographiés. Nous avons ainsi été en mesure de démontrer l'apparition d'un phénomène de percolation et de déterminer une loi de conductivité effective dépendante de la fraction volumique en particules, pouvant être intégrée directement à la simulation électromagnétique macroscopique pour la résolution de l'induction. Cette approche multi-échelle a entre autres permis de quantifier l'impact de la présence d'amas de platinoïdes près de la sole du creuset froid, en ce qui concerne le flux thermique reçu par le creuset et la répartition des courants induits.

8.1.3 Simulation numérique

Développement d'un code de simulation numérique multiphysique. Nous nous sommes attachés à développer des codes de calcul précis et stables s'appuyant sur la méthode des volumes finis pour l'ensemble des physiques du problème, permettant ainsi la résolution complète du problème couplé tel que défini par les étapes de modélisation. Un soin particulier a été apporté à la fois aux méthodes de résolution des différents couplages qu'aux méthodes de discrétisation spatiale et temporelle, facilitant et accélérant ainsi la convergence vers une solution précise. Un bénéfice décisif a pu être tiré du choix de modélisation de l'induction électromagnétique, permettant la résolution des équations de Maxwell uniquement dans la charge de verre et ce dans le logiciel ANSYS FLUENT®. Ce choix permet entre autres de bénéficier d'un code de calcul unique, d'une résolution des couplages efficace et des outils puissants du logiciel tel que la méthode de maillage glissant (SMM).

Analyse du cas d'application. L'application à l'échelle pilote de la simulation numérique au cas de la fusion de verre de type UOx en creuset froid dans des conditions nominales du procédé tel que conçu au CEA a permis de caractériser précisément les phénomènes magnéto-thermo-hydrauliques avec une description des différents champs physiques et des évaluations quantitatives des bilans d'énergie thermique et mécanique. Des points de comparaisons expérimentaux ont été mis en avant et révèlent une bonne prédictibilité du modèle.

8.2 Perspectives

Les résultats des travaux réalisés et présentés ont de nombreuses applications directes à l'élaboration de verre en creuset froid dans le cadre du conditionnement des déchets nucléaires. La modélisation proposée offre une compréhension poussée des phénomènes observés expérimentalement. L'amélioration simultanée des mesures de flux thermique sur creuset, des bilans thermiques obtenus par simulation numérique et des lois de corrélations analytiques, permettent une optimisation du dimensionnement des équipements et

l'émission de recommandations de conduite du procédé. Fort des analyses présentées dans ces travaux, le CEA proposera à court terme [147] une méthode indirecte de mesure de la température du verre grâce à l'alliance d'une mesure de flux thermique précise en temps réel et de mesures rhéologiques du verre réalisées en amont. Enfin, l'évaluation numérique de la constante de temps liée à la réponse dynamique du creuset froid à un changement de puissance injectée permet d'entrevoir la réalisation de mécanismes de régulation prédictive calibrés pour le contrôle de la température de la charge.

Lors d'une campagne de vitrification type menée à l'usine de la Hague, les cycles d'alimentation, d'élaboration et de coulée en conteneur métallique se succèdent continuellement, si bien que le creuset froid ne se trouve que très rarement en régime stationnaire sans alimentation ni vidange de matière et sans réaction chimique ou changement d'état. Dans nos travaux, l'analyse de cet état, considéré comme nominal, nous a permis une étude comparative poussée. Si la phase de vidange du creuset a été traitée dans les travaux de M. Lima da Silva [148], la modélisation et la simulation du procédé doit maintenant s'intéresser à la phase d'alimentation du creuset en matière. Cette démarche devra se décomposer en plusieurs études permettant l'augmentation de la modélisation :

- L'élaboration chimique du verre, c'est-à-dire le mélange et la réaction de la solution calcinée de produits de fissions et d'actinides mineurs avec la fritte de verre, impacte le procédé à la fois sur le bilan thermique global mais également sur le plan de la morphologie des particules de platinoïdes. La prise en compte de ces phénomènes nécessite entre autres l'étude de la cinétique des réactions chimiques d'élaboration ;
- L'ajout de matière entraîne un changement de volume de la fonte et nécessite, pour sa modélisation, le relâchement de l'hypothèse de surface libre indéformable et immobile.

La modélisation de cette phase d'alimentation et des phénomènes chimiques associés constituerait un pas en avant vers la compréhension et la prédiction du procédé d'élaboration, laissant notamment entrevoir la possible augmentation des capacités d'alimentation du four.

Enfin, les modèles développés et les approches de simulation numérique associées peuvent être appliqués à d'autres utilisations de la technologie de creuset froid comme le retraitement de déchets nucléaires composés de verre et de métaux formant deux phases continues distinctes ou le recyclage des verres plombés composant les tubes cathodiques des anciens téléviseurs. Nos travaux sont compatibles avec des modèles de turbulence ou d'écoulement diphasique nécessaires à l'extension de leurs applications.

Bibliographie

- [1] Thierry ADVOCAT, Jean-Luc DUSSOSSOY et Valérie PETITJEAN : Vitrification des déchets radioactifs. Rapport technique, Techniques de l'Ingénieur, 2008.
- [2] L. JACOUTOT, Y. FAUTRELLE, A. GAGNOUD, P. BRUN et J. LACOMBE : Numerical modeling of coupled phenomena in a mechanically stirred molten-glass bath heated by induction. *Chemical Engineering Science*, 63:2391–2401, 2008.
- [3] Rachel PFLIEGER, Leila LEFEBVRE, Mohammed MALKI, Mathieu ALLIX et Agnès GRANDJEAN : Behaviour of ruthenium dioxide particles in borosilicate glasses and melts. *Journal of Nuclear Materials*, 389:450–457, 2009.
- [4] Kazuyoshi URUGA, Tsuyoshi USAMI, Takeshi TSUKADA, Satoshi KOMAMINE et Eiji OCHI : Viscoplasticity of simulated high-level radioactive waste glass containing platinum group metal particles. *Journal of Nuclear Materials*, 452:419–424, 2014.
- [5] Claire SIMONNET et Agnès GRANDJEAN : Mixed ionic and electronic conductivity of RuO₂-glass composites from molten state to glassy state. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 351:1611–1618, 2005.
- [6] Toru OGAWA : Percolation in radioactive-waste glass melt with RuO₂. *American Ceramic Society*, 93:2487–2490, 2010.
- [7] Jean PUIG, Caroline HANOTIN, Muriel NEYRET et Philippe MARCHAL : High temperature rheological study of borosilicate glasses containing platinum group metal particles by means of a mixer-type rheometer. *Journal of Nuclear Materials*, 469:112–119, 2016.
- [8] Caroline HANOTIN et Jean PUIG : Platinum group metal particles aggregation in nuclear glass melts under the effect of temperature. *Journal of Nuclear Materials*, 477:102–109, 2016.
- [9] G. CHATTOPADHYAY, Y. J. BHATT et S. K. KHERA : Phase diagram of the Pd-Te system. *Journal of the Less-Common Metals*, 123:251–266, 1986.
- [10] L. GALOISY, G. CALAS, G. MORIN, S. PUGNET et C. FILLET : Structure of Pd-Te precipitates in a simulated high-level nuclear waste glass. *Journal of Materials Research*, 13:1124–1127, 1998.
- [11] S. GOSSÉ et C. GUÉNEAU : Thermodynamic assessment of the palladium-tellurium (Pd-Te) system. *Intermetallics*, 19:621–629, 2011.
- [12] F. VARENNE et M. SILBERSTEIN : *Modéliser & simuler*. Editions Matériologiques, 2013.
- [13] Laetitia JACOUTOT : *Modélisation numérique de phénomènes couplés dans des bains de verre brassés mécaniquement et élaborés en creuset froid inductif*. Thèse de doctorat, Grenoble INP, 2006.

- [14] Emilien SAUVAGE : *Modélisation numérique thermo-hydrodynamique et inductive d'une fonte verrière élaborée en creuset froid inductif*. Thèse de doctorat, Grenoble INP, 2009.
- [15] S. GOPALAKRISHNAN et A. THESS : A simplified mathematical model of glass melt convection in a cold crucible induction melter. *International Journal of Thermal Sciences*, 60:142–152, 2012.
- [16] B. NACKE, V. KICHIGIN, V. GEZA et I. POZNYAK : Continuous melting and pouring of an aluminium oxide based melt with cold crucible. *Proceedings of the 8th International Congress on Electromagnetic Processing of Materials*, 1:11–14, 2015.
- [17] R. CHEN, Y. YANG, H. FANG, Y. YANG, Q. WANG, J. GUO, H. DING, Y. SU et H. FU : Glass melting inside electromagnetic cold crucible using induction skull melting technology. *Applied Thermal Engineering*, 121:146–152, 2017.
- [18] R. A. CRANE et R. I. VACHON : A prediction of the bounds on the effective thermal conductivity of granular materials. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 20:711–723, 1977.
- [19] S. SPITANS, A. JAKOVICS, E. BAAKE et B. NACKE : Numerical modeling of free surface dynamics of melt in an alternate electromagnetic field : part I. implementation and verification of model. *Metallurgical and Materials Transactions B*, 44(3):593–605, 2013.
- [20] *Guide d'utilisation Flux® 11.2 - Volume 3 - Les applications physiques : magnétiques, électriques, thermiques*.
- [21] Pascal BECKSTEIN, Vladimir GALINDO et Vuko VUKCEVIC : Efficient solution of 3D electromagnetic eddy-current problems within the finite volume framework of OpenFOAM. *Journal of Computational Physics*, 344:623–646, 2017.
- [22] Z. BADICS : Transient eddy current field of current forced three-dimensional conductors. *IEEE Transactions on magnetics*, 28:1232–1234, 1992.
- [23] Oszkar BIRO et Kurt PREIS : On the use of the magnetic vector potential in the finite element analysis of three-dimensional eddy currents. *IEEE Transactions on magnetics*, 25:3145–3159, 1989.
- [24] Pascal BECKSTEIN, Vladimir GALINDO et Gunter GERBETH : Free-surface dynamics in the ribbon growth on substrate (rgs) process. *International Journal of Applied Electromagnetics and Mechanics*, 53:43–51, 2017.
- [25] R. BYRON BIRD, Warren E. STEWART et Edwin N. LIGHTFOOT : *Transport Phenomena*. John Wiley & Sons, 2007.
- [26] Horst SCHOLZE : *Le verre : nature, structure et propriétés*. Institut du verre, 1980.
- [27] K.-B. CHEONG, K.-M. MOON et T.-H. SONG : Treatment of radiative transfer in glass melts : validity of Rosseland and P-1 approximations. *Physics and Chemistry of Glasses*, 40:26–33, 1999.
- [28] Marvin GOLDSTEIN et John R. HOWELL : Boundary conditions for the diffusion solution of coupled conduction-radiation problems. Rapport technique, NASA, 1968.
- [29] John R. HOWELL, Robert SIEGEL et M. Pinar MENGÜÇ : *Thermal Radiation Heat Transfer*. CRC Press, 2010.
- [30] Donald D. GRAY et Aldo GIORGINI : The validity of the Boussinesq approximation for liquids and gases. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 19:545–551, 1976.

-
- [31] Y.-N. YOUNG, H. TUFO, A. DUBEY et R. ROSNER : On the miscible Rayleigh-Taylor instability : two and three dimensions. *Journal of Fluid Mechanics*, 447:377–408, 2001.
- [32] Stephen WHITAKER : *Fundamentals Principles of Heat Transfer*. Pergamon Press Inc., 1977.
- [33] Denis SAUMABÈRE : *Modélisation numérique magnéto-thermique avec prise en compte du transfert radiatif dans les procédés d’élaboration des verres par induction en creuset froid*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, 1994.
- [34] V. K. SCHIFF : Mathematical modeling of the complex heat exchange of a glass melt in a cylindrical induction furnace. *Journal of Optical Technology*, 67(9), 2000.
- [35] M. VYNNYCKY : On the role of radiative heat transfer in air gaps in vertical continuous casting. *Applied Mathematical Modelling*, 37:2178–2188, 2013.
- [36] Michael I. OJOVAN et W. E. LEE : *New Developments in Glassy Nuclear Waste-forms*. Nova Science Publishers, Inc., 2007.
- [37] Thomas SALEZ, Justin SALEZ, Kari DALNOKI-VERESS, Elie RAPHAËL et James A. FORREST : Cooperative strings and glassy interfaces. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 112(27):8227–8231, 2015.
- [38] Pierre-Jean RIBEYRON : *Développement d’un procédé de solidification continu du silicium multicristallin en creuset froid inductif*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, 1998.
- [39] Marc ANDERHUBER : *Modélisation numérique du procédé d’élaboration en continu de silicium photovoltaïque en creuset froid inductif*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, 1995.
- [40] Dag MORTENSEN : A mathematical model of the heat and fluid flows in direct-chill casting of aluminium sheet ingots and billets. *Metallurgical and Materials Transactions B*, 30:119–133, 1999.
- [41] Mohammed M’HAMDI, Sylvain GOUTTERBROZE et Hallvard G. FJAER : Thermo-mechanical analysis of the ingot-crucible contact during multi-crysalline silicon ingot casting. *Journal of Crystal Growth*, 318:269–274, 2011.
- [42] G. J. KYNCH : A theory of sedimentation. *Transactions of the Faraday Society*, 48:166–176, 1952.
- [43] Raimund BÜRGER et Wolfgang L. WENDLAND : Sedimentation and suspension flows : Historical perspective and some recent developments. *Journal of Engineering Mathematics*, 41:101–116, 2001.
- [44] M. I. CANTERO, S. BALACHANDAR, A. CANTELLI, C. PIRMEZ et G. PARKER : Turbidity current with a roof : Direct numerical simulation of self-stratified turbulent channel flow driven by suspended sediment. *Journal of Geophysical Research*, 114:C03008, 2009.
- [45] Yoshiyuki ISO, Shinsuke MATSUNO, Hiroyuki UCHIDA, Isamu OONO, Toshiki FUKUI et Takaaki Ooba : Numerical simulation of platinum group metal particles behavior in a Joule-heated glass melter. *Journal of Power and Energy Systems*, 2:815–825, 2008.
- [46] P. SCHILL, W. LUTZE, W. GONG et I. L. PEGG : Testing and modelling the behaviour of platinoids during vitrification of high level radioactive waste. Part

2. *Glass Technology : European Journal of Glass Science and Technology Part A*, 48:276–289, 2007.
- [47] Jean-Philippe GUILLEMIN : Mécanismes de regroupement de particules de RuO₂ dans un silicate fondu. Rapport technique, CEA, 2011.
- [48] S. LEE, Y. JANG, C. CHOI et T. LEE : Combined effect of sedimentation velocity fluctuation and self-sharpening on interface broadening. *Physics of Fluids A : Fluid Dynamics*, 4:2601–2606, 1992.
- [49] Olivier DELATTRE : *Cristallisation de fontes verrières d'intérêt nucléaire en présence d'un gradient thermique : application aux auto-creusets produits en creuset froid*. Thèse de doctorat, Université d'Orléans, 2014.
- [50] J. HADAMARD : Mouvement permanent lent d'une sphere liquide et visqueuse dans un liquide visqueux. *Comptes Rendus de l'Académie des sciences*, 152:1735–1738, 1911.
- [51] W. RYBCZYNSKI : Über die fortschreitende Bewegung einer flüssigen Kugel in einem zähen Medium. *Bulletin international de l'académie des sciences de Cracovie A*, pages 40–46, 1911.
- [52] François BLANCHETTE et John W. M. BUSH : Particle concentration evolution and sedimentation-induced instabilities in a stably stratified environment. *Physics of Fluids*, 17:073302, 2005.
- [53] J. F. RICHARDSON et W. N. ZAKI : The sedimentation of a suspension of uniform spheres under conditions of viscous flow. *Chemical Engineering Science*, 3:65–73, 1954.
- [54] M. MOONEY : The viscosity of a concentrated suspension of spherical particles. *Journal of Colloid Science*, 6:162–170, 1951.
- [55] Irvin M. KRIEGER et Thomas J. DOUGHERTY : A mechanism for non-Newtonian flow in suspensions of rigid spheres. *Journal of Rheology*, 3:137–152, 1959.
- [56] A. S. MICHAELS et J. C. BOLGER : Settling rates and sediment volumes of flocculated kaolin suspensions. *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals*, 1:24–33, 1962.
- [57] Albert EINSTEIN : *Investigations on the theory of the brownian movement*. Dover Publications, inc., 1956.
- [58] P. J. MUCHA et M. P. BRENNER : Diffusivities and front propagation in sedimentation. *Physics of Fluids*, 15:1305–1313, 2003.
- [59] Eugene C. ECKSTEIN, Douglas G. BAILEY et Ascher H. SHAPIRO : Self-diffusion of particles in shear flow of suspension. *Journal of Fluid Mechanics*, 79:191–208, 1977.
- [60] David LEIGHTON et Andreas ACRIVOS : Measurement of shear-induced self-diffusion in concentrated suspensions of spheres. *Journal of Fluid Mechanics*, 177:109–131, 1987.
- [61] A. ACRIVOS, G. K. BATCHELOR, E. J. HINCH, D. L. KOCH et R. MAURI : Longitudinal shear-induced diffusion of spheres in a dilute suspension. *Journal of Fluid Mechanics*, 240:651–657, 1992.
- [62] D. CHANG, T. LEE, Y. JANG, M. KIM et S. LEE : Non-colloidal sedimentation compared with Kynch theory. *Powder Technology*, 92:81–87, 1997.

- [63] Laurence BERGOUNOUX, Sebastian GHICINI et Elisabeth GUAZZELLI : Spreading fronts and fluctuations in sedimentation. *Physics of Fluids*, 15:1875–1887, 2003.
- [64] Daniel Chehata GOMEZ, Laurence BERGOUNOUX, Elisabeth GUAZZELLI et John HINCH : Spreading fronts in sedimentation of dilute suspension of spheres. *Physics of Fluids*, 20:023302, 2008.
- [65] P. R. HRMA : Impact of particle size and agglomeration on settling of solids in continuous melters processing radioactive waste glass. *Journal of Nuclear Materials*, 2008.
- [66] Clifford P. JOHNSON, Xiaoyan LI et Bruce E. LOGAN : Settling velocities of fractal aggregates. *Environmental Science and Technology*, 30:1911–1918, 1996.
- [67] J. MATYAS, M. SCHAIBLE et J. D. VIENNA : Determination of Stokes shape factor for single particles and agglomerates. *Ceramic Transactions*, 227:195–203, 2011.
- [68] Philippe COUSSOT et Christophe ANCEY : *Rhéophysique des pâtes et des suspensions*. EDP Sciences, 1999.
- [69] U. LÜDTKE, S. SOUBEIH et B. HALBEDEL : Improving glass quality and production efficiency in glass melting tanks using additionally generated Lorentz forces. *Proceedings of the XVIII international UIE-Congress*, 1:170–175, 2017.
- [70] Ana-Maria BIANCHI, Yves FAUTRELLE et Jacqueline ETAY : *Transferts thermiques*. Presses polytechniques et universitaires romandes, 2004.
- [71] S. V. PATANKAR : *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow*. Hemisphere, 1980.
- [72] R. EWING, O. ILIEV et R. LAZAROV : A modified finite volume approximation of second-order elliptic equations with discontinuous coefficients. *SIAM Journal on Scientific Computing*, 23:1335–1351, 2001.
- [73] Bjarne STROUSTRUP : *Le langage C++*. Campus Press, 2003.
- [74] R. F. WARMING et B. J. HYETT : The modified equation approach to the stability and accuracy analysis of finite-difference methods. *Journal of Computational Physics*, 14:159–179, 1974.
- [75] C. P. BIDINOSTI, E. M. CHAPPLE et M. E. HAYDEN : The sphere in a uniform RF field - Revisited. *Concepts in Magnetic Resonance*, 31B:191–202, 2007.
- [76] Patrick J. ROACHE : *Fundamentals of Computational Fluid Dynamics*. Hermosa Publishers, 1998.
- [77] P. F. CARCIA, A. FERRETTI et A. SUNA : Particle size effects in thick film resistors. *Journal of Applied Physics*, 53:5282–5288, 1982.
- [78] T. YAMAGUCHI et Y. NAKAMURA : Sol-gel processing and conduction mechanism of RuO₂-glass Thick-Film Resistors. *Journal of the American Ceramic Society*, 78(5):1372–1374, 1995.
- [79] C. KRAUSE et B. LUCKSCHEITER : Properties and behavior of the platinum group metals in the glass resulting from the vitrification of simulated nuclear fuel reprocessing waste. *Journal of Materials Research*, 6(12):2535–2546, 1991.
- [80] B. LUCKSCHEITER : Glass products for the vitrification of hllw in a joule-heated ceramic melter and the effects of platinoids on the glass properties. *Proceedings of the 1993 international conference on nuclear waste management and environmental remediation*, 1:427–433, 1993.

- [81] Rachel PFLIEGER, Mohammed MALKI, Yannick GUARI, Joulia LARIONOVA et Agnès GRANDJEAN : Electrical conductivity of RuO₂-borosilicate glasses : effect of the synthesis route. *Journal of the American Ceramic Society*, 92:1560–1566, 2009.
- [82] J. T. MOTTRAM : *Computer Aided Design in Composite Material Technology III*, chapitre Computation of Micromechanical Models for the Transport Properties of Particulate Composite Media, pages 615–626. Springer Netherlands, 1992.
- [83] M. WANG et N. PAN : Predictions of effective physical properties of complex multiphase materials. *Materials Science & Engineering R*, 63:1–30, 2008.
- [84] A. L. EFROS et B. I. SHKLOVSKII : Critical behaviour of conductivity and dielectric constant near the metal-non-metal transition threshold. *Physica Status Solidi B*, 76:475–485, 1976.
- [85] J. P. CLERC, G. GIRAUD, J. M. LAUGIER et J. M. LUCK : The electrical conductivity of binary disordered systems, percolation clusters, fractals and related models. *Advances in Physics*, 39:191–309, 1990.
- [86] Salvatore TORQUATO : *Random Heterogeneous Materials*. Springer, 2002.
- [87] R. W. SILLARS : The properties of a dielectric containing semi-conducting particles of various shapes. *Journal of the Institute of Electrical Engineers of Japan*, 80(35): 139–155, 1937.
- [88] P. LUNKENHEIMER, V. BOBNAR, A. V. PRONIN, A. I. RITUS, A. A. VOLKOV et A. LOIDL : Origin of apparent colossal dielectric constants. *Physical Review B*, 66:052105(4), 2002.
- [89] Ce-Wen NAN : Physics of inhomogeneous inorganic materials. *Progress in Materials Science*, 37:1–116, 1993.
- [90] J.A. del RIO, R. W. ZIMMERMAN et R. A. DAWE : Formula for the conductivity of a two-component material based on the reciprocity theorem. *Solid State Communications*, 106:183–186, 1998.
- [91] Christoph H. ARNS, Mark A. KNACKSTEDT et W. Val PINCZEWSKI : Accurate estimation of transport properties from microtomographic images. *Geophysical Research Letters*, 28:3361–3364, 2001.
- [92] E. J. GARBOCZI, K. A. SNYDER, J.F. DOUGLAS et M. F. THORPE : Geometrical percolation threshold of overlapping ellipsoids. *Physical Review E*, 52:819–828, 1995.
- [93] Avik P. CHATTERJEE : Percolation thresholds for rod-like particles : polydispersity effects. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 20:255250–255254, 2008.
- [94] N. NICOLOSO, A. LECORRE-FRISCH, J. MAIER et R. J. BROOK : Conduction mechanisms in RuO₂-glass composites. *Solid State Ionics*, 75:211–216, 1995.
- [95] Ewald RASCH et F. Willy HINRICHSEN : Über die Beziehung zwischen elektrischer Leitfähigkeit und Temperatur. *Zeitschrift für Elektrochemie*, 14:41–46, 1908.
- [96] O. L. ANDERSON et D. A. STUART : Calculation of activation energy of ionic conductivity in silica glasses by classical methods. *Journal of the American Ceramic Society*, 37:573–580, 1954.
- [97] Etienne ROGNIN, Guillaume BARBA ROSSA, Patrice BRUN, Emilien SAUVAGE et Jacques LACOMBE : Computation of eddy currents in highly conductive particles dispersed in a moderately conductive matrix. *International Journal of Applied Electromagnetics and Mechanics*, 53:103–110, 2017.

-
- [98] M. J. LAMONT et P. HRMA : A crucible study of spinel settling in a high-level waste glass. *Ceramic Transactions*, 87:343–348, 1998.
- [99] J. KLOUZEK, J. ALTON, P. HRMA et T. PLAISTED : Crucible study of spinel settling in molten high-level waste glass. *Ceramic Transactions*, 119:301–308, 2000.
- [100] J. KLOUZEK et A. FRANEK : Modeling of particle settling in high viscosity liquid. *Ceramics-Silikaty*, 45:70–75, 2001.
- [101] William C. HINDS, Andre ASHLEY, Nola J. KENNEDY et Paul BUCKNAM : Conditions for cloud settling and Rayleigh-Taylor instability. *Aerosol Science and Technology*, 36:1128–1138, 2002.
- [102] H. J. KULL : Theory of the Rayleigh-Taylor instability. *Physics Reports*, 206:197–325, 1991.
- [103] Y.-J. CHOU et Y.-C. SHAO : Numerical study of particle-induced Rayleigh-Taylor instability : Effects of particle settling and entrainment. *Physics of Fluids*, 28:043302, 2016.
- [104] C. VÖLTZ, W. PESCH et I. REHBERG : Rayleigh-Taylor instability in a sedimenting suspension. *Physical Review E*, 65:011404, 2001.
- [105] P. BURNS et E. MEIBURG : Sediment-laden fresh water above salt water : linear stability analysis. *Journal of Fluid Mechanics*, 691:279–314, 2012.
- [106] R. MENIKOFF, R. C. MJOLSNES, D. H. SHARP et C. ZEMACH : Unstable normal mode for Rayleigh-Taylor instability in viscous fluids. *Physics of Fluids*, 20:2000–2004, 1977.
- [107] S. CHANDRASEKHAR : *Hydrodynamic and Hydromagnetic Stability*. Oxford University Press, 1961.
- [108] David GOTTLIEB et Steven A. ORSZAG : *Numerical Analysis of Spectral Methods : Theory and Applications*. Society for Industrial and Applied Mathematics, 1977.
- [109] Steven A. ORSZAG : Accurate solution of the Orr-Sommerfeld stability equation. *Journal of Fluid Mechanics*, 50:689–703, 1971.
- [110] Ernst W. MAYER et Kenneth G. POWELL : Viscous and inviscid instabilities of a trailing vortex. *Journal of Fluid Mechanics*, 245:91–114, 1992.
- [111] C. OLENDRARU et A. SELIER : Viscous effects in the absolute-convective instability of the batchelor vortex. *Journal of Fluid Mechanics*, 459:371–396, 2002.
- [112] Jean-Charles PINOLI : Stéréologie. Rapport technique, Techniques de l'Ingénieur, 2016.
- [113] S. D. WICKSELL : The corpuscle problem : a mathematical study of a biometric problem. *Biometrika*, 17(1):84–99, 1925.
- [114] S. A. SALTYSKOV : *Stereometric Metallography*. Metallurgizdat, 1970.
- [115] G. Van DALEN : Determination of the water droplet size distribution of fat spreads using confocal scanning laser microscopy. *Journal of Microscopy*, 208:116–133, 2002.
- [116] E. S. RAJAGOPAL : Statistical theory of particle size distributions in emulsions and suspensions. *Kolloid-Zeitschrift*, 162(2):85–92, 1959.
- [117] W. GRUNEWALD, G. ROTH, W. TOBIE, S. WEISENBURGER, K. WEISS, M. ELLIOTT et L. L. EYLER : Vitrification of noble metals containing NCAW simulant with an engineering scale melter (esm) : campaign report. Rapport technique, Pacific Northwest National Laboratory, 1996.

- [118] Frank P. INCROPERA, David P. DEWITT, Theodore L. BERGMAN et Adrienne S. LAVINE : *Fundamentals of Heat and Mass Transfer*. John Wiley & Sons, 2007.
- [119] A. BEJAN : *Convection Heat Transfer*. John Wiley & Sons, 2004.
- [120] E. POHLHAUSEN : Der Wärmeaustausch zwischen festen Körpern und Flüssigkeiten mit kleiner Reibung und kleiner Wärmeleitung. *Journal of Applied Mathematics and Mechanics*, 1:115–121, 1921.
- [121] Jacques HUETZ et Jean-Pierre PETIT : Notions de transfert thermique par convection. Rapport technique, Techniques de l'Ingénieur, 1990.
- [122] Syakila AHMAD, Norihan M. ARIFIN, Roslinda NAZAR et Ioan POP : Mixed convection boundary layer flow past an isothermal horizontal circular cylinder with temperature-dependent viscosity. *International Journal of Thermal Sciences*, 48:1943–1948, 2009.
- [123] F. PLA, A. M. MANCHO et H. HERRERO : Bifurcation phenomena in a convection problem with temperature dependent viscosity at low aspect ratio. *Physica D : Nonlinear Phenomena*, 238:572–580, 2009.
- [124] F. PLA, H. HERRERO et O. LAFITTE : Theoretical and numerical study of a thermal convection problem with temperature-dependent viscosity in an infinite layer. *Physica D : Nonlinear Phenomena*, 239:1108–1119, 2010.
- [125] Mourad KADDIRI, Mohamed NAÏMI, Abdelghani RAJI et Mohammed HASNAOUI : Rayleigh-Bénard convection of non-Newtonian power-law fluids with temperature-dependent viscosity. *International Scholarly Research Network Thermodynamics*, 2012, 2012.
- [126] Masanori KAMEYAMA, Hiroki ICHIKAWA et Arata MIYAUCHI : A linear stability analysis on the onset of thermal convection of a fluid with strongly temperature-dependent viscosity in a spherical shell. *Theoretical and Computational Fluid Dynamics*, 27:21–40, 2013.
- [127] A. PATKOWSKI, M. PALUCH et J. GAPINSKI : Relationship between T_0 , T_g and their pressure dependence for supercooled liquids. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 330:259–263, 2003.
- [128] O. GRASSET et E. M. PARMENTIER : Thermal convection in a volumetrically heated, infinite Prandtl number fluid with strongly temperature-dependent viscosity : Implications for planetary thermal evolution. *Journal of Geophysical Research*, 103:18 171–18 181, 1998.
- [129] G. BARAKOS, E. MITSOULIS et D. ASSIMACOPOULOS : Natural convection flow in a square cavity revisited : laminar and turbulent models with wall functions. *International Journal for Numerical Methods in Fluids*, 18:695–719, 1994.
- [130] E. N. SIEDER et G. E. TATE : Heat transfert and pressure drop of liquids in tubes. *Industrial & Engineering Chemistry*, 28:1429–1435, 1936.
- [131] T. H. CHILTON, T. B. DREW et R. H. JEBENS : Heat transfer coefficients in agitated vessels. *Industrial & Engineering Chemistry*, 36(6):510–516, 1944.
- [132] M. DOSTAL, K. PETERA et F. RIEGER : Measurement of heat transfert coefficients in an agitated vessel with tube baffles. *Acta Polytechnica*, 50(2):46–57, 2010.
- [133] H. C. NATAF et F. M. RICHTER : Convection experiments in fluids with highly temperature-dependent viscosity and the thermal evolution of the planets. *Physics of the Earth and planetary interiors*, 29:320–329, 1982.

-
- [134] Walter Roger BUCK : *Small-scale convection and the evolution of the lithosphere*. Thèse de doctorat, Massachusetts Institute of Technology, 1984.
- [135] U. R. CHRISTENSEN : Heat transport by variable viscosity convection and implications for the Earth's thermal evolution. *Physics of the Earth and planetary interiors*, 35:264–282, 1984.
- [136] E. GIANNANDREA et U. CHRISTENSEN : Variable viscosity convection experiments with a stress-free upper boundary and implications for the heat transport in the Earth's mantle. *Physics of the Earth and planetary interiors*, 78:139–152, 1993.
- [137] S. MORRIS et D. CANRIGHT : A boundary-layer analysis of Benard convection in a fluid of strongly temperature-dependent viscosity. *Physics of the Earth and planetary interiors*, 36:355–373, 1984.
- [138] L.-N. MORESI et V. S. SOLOMATOV : Numerical investigation of 2D convection with extremely large viscosity variations. *Physics of Fluids*, 7:2154–2162, 1995.
- [139] V. S. SOLOMATOV : Scaling of temperature- and stress-dependent viscosity convection. *Physics of Fluids*, 7:266–274, 1995.
- [140] J.Y. LUO, A.D. GOSMAN, R.I. ISSA, J.C. MIDDLETON et M.K. FITZGERALD : Full flow field computation of mixing in baffled stirred vessels. *Chemical Engineering Research and Design*, 71:342–344, 1993.
- [141] J.Y. LUO, R.I. ISSA et A.D. GOSMAN : Prediction of impeller-induced flows in mixing vessels using multiple frames of reference. *Institution of Chemical Engineers Symposium Series*, 136:549–556, 1994.
- [142] ANSYS® *Fluent, Release 15.0, Help System, Theory Guide*, ANSYS, Inc.
- [143] J. H. RUSHTON, E. W. COSTICH et H. J. EVERETT : Power characteristics of mixing impeller I and II. *Chemical Engineering Progress*, 46:395, 1950.
- [144] Albert EINSTEIN : Die Ursache der Mäanderbildung der Flußläufe und des sogenannten Baerschen Gesetzes. *Naturwissenschaften*, 14:223–224, 1926.
- [145] G. M. AMDAHL : Validity of the single processor approach to achieving large scale computing capabilities. *Proceedings of the Spring Joint Computer Conference*, 1: 483–485, 1967.
- [146] Yunfei XING, Fengquan ZHONG et Xinyu ZHANG : Numerical study of turbulent flow and convective heat transfer characteristics in helical rectangular ducts. *Journal of Heat Transfer*, 136:121701, 2014.
- [147] Guillaume BARBA ROSSA, Emilien SAUVAGE et Patrice BRUN : Indirect method of measuring glass temperature in a cold crucible induction melter. *Proceedings of the XVIII international UIE-Congress*, 1:101–106, 2017.
- [148] Marcio LIMA DA SILVA : *Modélisation de la vidange d'une fonte verrière chauffée par induction*. Thèse de doctorat, Grenoble INP, 2014.

RÉSUMÉ

La vitrification des déchets radioactifs de haute activité et vie longue permet d'assurer leur confinement à long terme grâce à l'intégration à l'échelle atomique des radioisotopes au sein d'une matrice vitreuse. Parmi les différents procédés de vitrification, celui basé sur l'utilisation d'un creuset froid à induction électromagnétique directe présente de nombreux avantages. Il est à ce titre en fonctionnement depuis 2010 à l'usine française de retraitement de la Hague. Affiner la compréhension et la modélisation des phénomènes en jeu dans un creuset froid lors de l'élaboration de verre constitue un enjeu décisif pour le soutien industriel et l'appui des démarches d'optimisation du procédé. Dans cette optique, nos travaux proposent un modèle multiphysique ainsi qu'une simulation numérique prédictive prenant en compte l'ensemble des phénomènes couplés régissant le comportement de la charge de verre lors de son élaboration en creuset froid, en termes de convection, de flux thermiques et d'interactions électromagnétiques. Dans un premier temps sont formulées les hypothèses de travail permettant la modélisation mathématique du système magnéto-thermo-hydraulique avec un degré d'approximation contrôlé. Nous mettons notamment en place une approche multi-échelle pour la prise en compte de la nature diphasique du verre nucléaire, constitué d'une matrice homogène présentant des particules métalliques micrométriques de platinoïdes en suspension. La résolution numérique du modèle couplé est alors assurée par le développement et l'utilisation de codes de simulation précis, stables et optimisés, en proposant des schémas numériques et des méthodes de couplage adaptés. Une grande part de nos travaux est dédiée à l'analyse des phénomènes physiques caractéristiques de la fusion du verre, liés de manière générale aux propriétés physico-chimiques variables du matériau (viscosité, masse volumique, conductivité électrique...). Sont notamment étudiés deux grands axes qui constituent des apports applicatifs importants : le transport, la réponse à l'induction et la sédimentation des particules de platinoïdes ainsi que les échanges thermiques entre le verre en fusion et les parois refroidies du creuset. Des lois d'échelle pour l'évaluation de l'intensité respective de ces phénomènes sont dérivées de l'analyse du modèle couplé. Enfin, des comparaisons expérimentales précises, à la fois à petite échelle et à l'échelle industrielle, permettent de valider l'approche choisie et les résultats obtenus.

Mots clés : mécanique des fluides, verre, transfert thermique, creuset froid, suspension, induction électromagnétique

ABSTRACT

The vitrification of high-level nuclear waste ensures their long-term confinement through atomic integration of radioisotopes within a vitreous matrix. Among the various vitrification processes, the one based on the use of a cold crucible with direct electromagnetic induction shows many advantages. Thus it has been in operation since 2010 at the French reprocessing plant at La Hague. Refining the understanding and the modeling of the phenomena involved during glass melting inside a cold crucible constitutes a decisive stake for industrial support and process optimization. In this context, our work presents a multiphysics model as well as a predictive numerical simulation taking into account all the coupled phenomena governing the behavior of the glass melt, in terms of convection, heat fluxes and electromagnetic interactions. The working hypotheses are first formulated, allowing the mathematical modeling of the magneto-thermo-hydraulic system with a controlled degree of approximation. In particular, we design a multi-scale approach to take into account the diphasic nature of nuclear glass, consisting of a homogeneous matrix seeded with micrometric particles mostly made of platinum-group metals. The numerical resolution of the coupled model is then assured by the development and use of precise, stable and optimized simulation codes, by proposing numerical schemes and adapted coupling methods. A large part of our work is dedicated to the analysis of the physical phenomena characteristic of glass melting, generally related to the variable physicochemical properties of the material (viscosity, density, electrical conductivity...). In particular, two main axes are studied here with important applications: transport, response to the induction and settling of the platinum-group metal particles and heat transfers between the molten glass and the cooled walls of the crucible. Scaling laws for the evaluation of the respective intensity of these phenomena are derived from the coupled model analysis. Finally, precise experimental comparisons, both on a small scale and on an industrial scale, make it possible to validate the chosen approach and the outcoming results.

Keywords: fluid mechanics, glass, heat transfer, cold crucible, suspension, electromagnetic induction