



HAL
open science

Modélisation à interface diffuse et simulation numérique de l'hydrodynamique d'un bain liquide diphasique avec transfert de masse interfacial

Mirantsoa Aimé Rasolofomanana

► To cite this version:

Mirantsoa Aimé Rasolofomanana. Modélisation à interface diffuse et simulation numérique de l'hydrodynamique d'un bain liquide diphasique avec transfert de masse interfacial. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. Institut Polytechnique de Paris, 2023. Français. NNT : 2023IPPAX141 . tel-04633263

HAL Id: tel-04633263

<https://theses.hal.science/tel-04633263>

Submitted on 3 Jul 2024

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.



INSTITUT
POLYTECHNIQUE
DE PARIS

NNT : 2023IPPAX141

Thèse de doctorat



Modélisation à interface diffuse et simulation numérique de l'hydrodynamique d'un bain liquide diphasique avec transfert de masse interfacial

Thèse de doctorat de l'Institut Polytechnique de Paris
préparée à l'École polytechnique

École doctorale n°626 École doctorale de l'Institut Polytechnique de Paris (EDIPP)
Spécialité de doctorat : Physique

Thèse présentée et soutenue au Château de Cadarache, le 13 novembre 2023, par

MIRANTSOA AIMÉ RASOLOFOMANANA

Composition du Jury :

Hélène Zapolsky Professeure des universités, Université de Rouen-Normandie (UMR 6634)	Présidente du jury
Franck Pigeonneau Directeur de recherche, Mines Paris PSL (CEMEF)	Rapporteur
Badr Kaoui Chargé de recherche, Université de Technologie de Compiègne (UMR 7338)	Rapporteur
Alain Cartalade Expert Sénior CEA, CEA Saclay (DES/ISAS/STMF)	Examineur
Hervé Henry Chargé de recherche, École Polytechnique (UMR 7643)	Directeur de thèse
Romain Le Tellier Directeur de recherche, CEA Cadarache (DES/IRESNE/SMTA)	Co-encadrant de thèse

“Love the life you live, live the life you love”

Remerciements

Ce manuscrit témoigne la fin de ma thèse mais j'espère que son impact perdurera au delà de ces deux centaines de pages. Bien que je sois l'auteur principal de ce travail, il a bénéficié, de manière directe ou indirecte, de la contribution de plusieurs personnes envers qui j'ai une profonde reconnaissance.

Tout d'abord, j'aimerais remercier Hervé Henry, mon directeur de thèse, de m'avoir fait confiance dans ce projet de thèse et d'en avoir assuré la direction. Malgré la distance, tu as fait l'effort de me consacrer du temps et j'en suis reconnaissant. À Romain, merci pour ces trois ans remplis d'enseignements enrichissants, de conseils et d'échanges stimulants. Je t'admire énormément pour ta rigueur scientifique, pour ta disponibilité et ton implication nonobstant les conditions sanitaires au début de la thèse. Je tiens également à remercier Mathis Plapp pour la disponibilité durant la première année de thèse et les discussions sur le champ de phase lors de mes passages à l'école polytechnique. Je souhaite à tous les doctorants de bénéficier d'un encadrement aussi bon que celui que j'ai eu.

Mes remerciements vont ensuite aux membres du jury : Hélène Zapolsky en qualité de présidente, Alain Cartalade comme examinateur, Franck Pigeonneau et Badr Kaoui en tant que rapporteurs pour avoir apporté ce regard critique, avoir donné les remarques pertinentes nécessaires à cette thèse ainsi que les discussions et les échanges durant la soutenance.

Ensuite, j'aimerais remercier Elie Saikali pour le soutien technique dont j'ai bénéficié pendant la période de développement dans `TriocFD`. Merci également à Clément Plumecocq pour l'apport précieux à ce projet de thèse. J'espère que tu as apprécié mon encadrement, qui était une première expérience pour moi.

Ainsi, je remercie mes collègues du LMAG du CEA Cadarache pour tous les moments passés ensemble, que ce soit dans le cadre professionnel ou non¹. Ce fut un plaisir de vous côtoyer.

Par ailleurs, j'adresse mes plus profonds remerciements à mes amis, mes proches et ma famille pour leur soutien et leurs encouragements. Plus particulièrement mes parents et ma sœur, vous comptez beaucoup pour moi.

Enfin, j'aimerais reprendre le discours d'un poète des temps modernes : “Last but not least, I want to thank me, I want to thank me for believing in me, I want to thank me for doing all this hard work. I want to thank me for having no days off. I want to thank me

1. voyage, réunion de labo #tmtc, soirée #MCS2027, #LeJCLeS, #ViserLoinEtHaut

for never quitting. I want to thank me for always being a giver and trying to give more than I receive. I want to thank me for trying to do more right than wrong. I want to thank me for being me at all times”.

Misaotra...

TABLE DES MATIÈRES

Remerciements	v
Table des matières	vii
Liste des Figures	xi
Liste des Tableaux	xvii
Introduction générale	1
1 Contexte et objectifs	5
1.1 Les réacteurs nucléaires de fission	5
1.1.1 Principe de fonctionnement d'un réacteur à eau pressurisée (REP) .	7
1.1.2 Niveau de protection dans les réacteurs nucléaires	9
1.2 Notion d'accidents graves	10
1.2.1 Processus d'évolution d'un accident grave	12
1.2.2 Stratégie de mitigation et gestion des accidents graves	13
1.2.3 Conditions de réussite de la stratégie IVR	15
1.3 Comportement du bain de corium en cuve	16
1.3.1 Phénomènes thermiques et thermohydrauliques	17
1.3.2 Phénomènes de thermochimie : Stratification	20
1.4 Transitoire de stratification	22
1.4.1 Formation d'une couche métallique lourde	22
1.4.2 Remontée du métal lourd	24

1.5	Vers une modélisation fine	26
1.5.1	Travaux antérieurs	26
1.5.2	Objectifs de cette thèse	27
2	Méthodes	29
2.1	Modélisation des interfaces	29
2.1.1	Les méthodes de suivi d'interface ou "interface-tracking"	31
2.1.2	Les méthodes de capture d'interface ou "interface-capturing"	31
2.1.3	Interface raide <i>vs</i> interface diffuse	34
2.1.4	Choix de la méthode	35
2.2	La méthode du champ de phase	36
2.2.1	Description générale	37
2.2.2	Cas d'un système binaire	38
2.2.3	Cas d'un système multicomposant	52
2.2.4	Couplage avec l'hydrodynamique	55
2.3	Synthèse du chapitre	58
3	Diffusion multicomposant dans U-O-Zr	61
3.1	Le système U-O-Zr	62
3.1.1	Description thermodynamique du système	62
3.1.2	Hypothèse d'équilibre local	64
3.2	Système d'équations	66
3.2.1	Cahn–Hilliard ternaire	66
3.2.2	Mobilité	67
3.2.3	Paramètres d'interface	68
3.3	Cas d'étude	70
3.3.1	Non monotonie des profils de composition à l'interface	72
3.3.2	Ecart entre les positions d'interface en U et Zr	74
3.4	Calcul stationnaire	77
3.4.1	Conditions aux limites	77
3.4.2	Adsorption d'un composant à l'interface	78
3.4.3	Recherche du profil optimal	80
3.4.4	Effet sur la tension de surface	87
3.4.5	Dynamique de l'interface dans le paysage thermodynamique	89
3.5	Calcul d'un système fermé	90

3.6	Potentiel analytique	95
3.7	Conclusion du chapitre	100
4	Couplage avec l'hydrodynamique	103
4.1	Modèle <code>Phase_field</code>	104
4.2	Résolution numérique de l'équation CH	106
4.2.1	Description générale	106
4.2.2	Résolution de l'équation de CH dans <code>Phase_field</code>	107
4.3	Simulations préalables en binaire	108
4.3.1	Validation vis-à-vis du régime linéaire de croissance de l'instabilité de Rayleigh–Taylor	109
4.3.2	Calcul démonstratif de la stratification du corium en pseudo-binaire	114
4.4	Extension du modèle vers $n > 2$ -aire	118
4.4.1	Résolution numérique dans la version $n > 2$ -aire	119
4.4.2	Matrice des coefficients de gradient	119
4.4.3	Matrice mobilité	120
4.4.4	Traitement du terme <i>force capillaire</i>	120
4.4.5	Approximation de Boussinesq et loi de densité	121
4.4.6	Terme non linéaire du potentiel chimique	122
4.4.7	Test de vérification de l'implémentation $n > 2$ -aire	123
4.5	Conclusion du chapitre	125
5	Simulations d'une goutte multicomposant	127
5.1	Description générale	127
5.2	Paysage thermodynamique	130
5.3	Conditions initiales/équilibre	132
5.4	Paramètres de simulation	134
5.4.1	Configuration	134
5.4.2	Paramètres d'interface	137
5.4.3	Paramètre cinétique	138
5.5	Résultats	138
5.5.1	Trajectoire	138
5.5.2	Vitesse	140
5.5.3	Distribution spatiale des paramètres d'ordre	146
5.5.4	Effet de Gibbs–Thomson	148

5.6	Vers la validation du modèle	149
5.6.1	Conditions de calcul	150
5.6.2	Paramètres de simulation	152
5.6.3	Paysage thermodynamique	152
5.6.4	Résultats de simulation	156
5.7	Conclusion du chapitre	157
Conclusions et perspectives		161
Annexes		165
A Solution analytique d'un modèle de Cahn–Hilliard binaire		167
B Linéarité du potentiel chimique à l'équilibre thermodynamique		171
C Potentiel analytique-produit de deux paraboloides		173
C.1	Système ternaire	173
C.2	Système quaternaire	176
C.3	Paramètres d'interface	178
D Résolution numérique de CHNS dans Phase_field		181
D.1	Résolution de CH	181
D.1.1	Résolution uniquement du terme source CH	182
D.1.2	Calcul du terme advectif de CH	183
D.2	Résolution de NS	184
E Construction du système matriciel et la méthode JFNK		187
F Communications scientifiques		193
F.1	Présentations orales	193
F.2	Conference Proceedings	194
F.3	Publications dans un journal à comité de lecture	194
Bibliographie		195

LISTE DES FIGURES

1.1	Représentation d'une centrale nucléaire. Figure tirée de [1].	8
1.2	Transfert de chaleur dans la cuve - stratégie IVR (extrait de [2]).	18
1.3	Représentation schématique de la thermohydraulique de la couche métallique supérieure - stratégie IVR (extrait de [3]).	19
1.4	Masse volumique des phases en fonction de la quantité d'acier x_{steel} (T=3000K, Cn=32%, $R_{U/Zr}=1.2$), représentative de l'essai MASCA-RCW [4].	21
1.5	Schéma illustratif des transitoires de stratification : (1) formation du métal lourd, (2) remontée du métal lourd à la surface.	22
1.6	Formation de la couche métallique lourde.	23
1.7	Etat post-mortem de l'essai MASCA-RCW. Figure adaptée de [4].	24
1.8	Remontée du métal lourd.	25
2.1	Différentes méthodes numériques de traitement de l'interface pour les écoulements diphasiques. Le fond gris indique les modèles à interface diffuse et le fond blanc ceux à interface raide. Figure adaptée de [5].	34
2.2	Représentation schématique des modèles à interface raide et à interface diffuse dans un domaine contenant deux phases α et β	35
2.3	Diagramme de phase.	43
2.4	Densité d'énergie libre homogène \tilde{f} et excès d'énergie libre à l'interface.	45
2.5	Variation de l'énergie libre donnée par l'Eq. 2.22, de sa dérivée première et de sa dérivée seconde par rapport au paramètre d'ordre ϕ	46
2.6	Illustration de la définition de l'épaisseur d'interface.	49

3.1	Valeurs de $y_{ZrO_2} = Y_{ZrO_2}^{eq}(x_U, x_{Zr})$ associé à l'équilibre de la réaction d'oxydo-réduction dans le système U-O-Zr.	66
3.2	Diagramme de phase du système ternaire U-O-Zr à température $T = 3073.15K$ et pression $P=1bar$ (figure adaptée de [6]) ainsi que les positions des 3 cas de configuration considérés. Les zones "hachurées" désignent la lacune de miscibilité du système et les lignes joignant les deux extrémités représentent les conodes (tie-line).	70
3.3	Schéma en 1D du système initial.	71
3.4	Profils de concentration des éléments U et Zr à l'état stationnaire pour le cas n°1 pour différentes formes de $\bar{\kappa}$	72
3.5	Profils de concentration des éléments U et Zr à l'état stationnaire pour le cas n°2 pour différentes formes de $\bar{\kappa}$	73
3.6	Profils de concentration des éléments U et Zr à l'état stationnaire pour le cas n°3 pour différentes formes de $\bar{\kappa}$	73
3.7	Illustration du phénomène d'adsorption et des positions de l'interface dans les profils de composition en U et Zr.	75
3.8	Variation de l'écart entre la position de l'interface de U et celle de Zr Δz^G en fonction de ε/L pour les 3 cas d'étude avec $\bar{\kappa} = \bar{\kappa}_d$	79
3.9	Profils de composition en U et Zr à l'état stationnaire pour différentes valeurs de d tout en gardant $\theta = 45^\circ$ pour le cas n°2 avec $\varepsilon = 4mm$	82
3.10	Profils de composition en U et Zr à l'état stationnaire pour différentes valeurs de d tout en gardant $\theta = 45^\circ$ pour le cas n°3 avec $\varepsilon = 4mm$	83
3.11	Variation de l'écart adimensionné $\Delta \tilde{z}^G$ entre la position de l'interface en U et celle en Zr en fonction de d pour la même valeur de $\theta = 45^\circ$	84
3.12	Profils de composition en U et Zr à l'état stationnaire pour différentes valeurs de θ tout en gardant $d_l = 0.5$ pour le cas n°2 avec $\varepsilon = 4mm$	85
3.13	Profils de composition en U et Zr à l'état stationnaire pour différentes valeurs de θ tout en gardant $d_l = 0.2$ pour le cas n°3 avec $\varepsilon = 4mm$	85
3.14	Variation de l'écart adimensionné $\Delta \tilde{z}^G$ entre la position de l'interface en U et celle en Zr en fonction de θ en fixant $d = 0.5$ pour le cas 2 et $d = 0.2$ pour le cas 3.	86
3.15	Variation de la tension de surface pour différentes valeurs de d avec le même angle de rotation $\theta = 45^\circ$	88

3.16	Variation de la tension de surface pour différentes valeurs de θ pour $d = 0.5$ pour le cas n°2 et $d = 0.2$ pour le cas n°3.	89
3.17	Profils d'interface x_{Zr} en fonction de x_U à l'état stationnaire dans le paysage thermodynamique défini par Eq. 3.39 pour différentes formes de $\bar{\kappa}$ à $\varepsilon = 4\text{mm}$ - les lignes de contour correspondant à la densité d'énergie sont régulièrement espacées d'une valeur de $6.0 \times 10^5 \text{J}\cdot\text{m}^{-3}$	90
3.18	Profils de composition en U et Zr de la configuration 3 avec $\bar{\kappa}_d$ pour différentes épaisseurs.	91
3.19	Erreur relative entre la valeur d'équilibre et celle obtenue par champ de phase pour la composition U à l'état stationnaire en fonction de ε/L avec différents maillages "fine mesh" ($\Delta z = 10^{-4}$ m), "medium mesh" ($\Delta z = 2 \times 10^{-4}$ m) et "coarse mesh" ($\Delta z = 4 \times 10^{-4}$ m) - cas n°3.	92
3.20	Erreur relative entre la valeur d'équilibre et celle obtenue par champ de phase pour la composition Zr à l'état stationnaire en fonction de ε/L avec différents maillages "fine mesh" ($\Delta z = 10^{-4}$ m), "medium mesh" ($\Delta z = 2 \times 10^{-4}$ m) et "coarse mesh" ($\Delta z = 4 \times 10^{-4}$ m) - cas n°3.	93
3.21	Profils d'interface x_{Zr} en fonction de x_U à l'état stationnaire dans le paysage thermodynamique dans la surface d'énergie du grand potentiel modifié Ω^* issus de (A) CALPHAD, (B) du produit de deux paraboloides et (C) du produit de deux cercles. Les lignes de contour sont régulièrement espacées d'une valeur de $2.0 \times 10^5 \text{J}\cdot\text{m}^{-3}$ - cas n°3.	98
3.22	Profils de composition à l'état d'équilibre thermodynamique en U et Zr du cas n°3 avec les paysages thermodynamiques CALPHAD, produit de deux paraboloides et produit de deux cercles pour (A) $\bar{\kappa}_d$ et (B) $\bar{\kappa}_{opt}$	99
4.1	Schéma représentatif en 2D de la méthode VDF utilisée dans TrioCFD. . .	105
4.2	Évolution de la masse volumique dans les instabilités de RT à différents instants pour $I_0 = 3$	112
4.3	Évolution de l'énergie cinétique en fonction du temps pour $I_0 = 3$ à l'échelle linéaire (A) et à l'échelle logarithmique (B).	113
4.4	Comparaison des taux de croissance des instabilités de RT obtenus par TrioCFD avec ceux de la théorie et de R. Zanella <i>et al.</i> [7].	114

4.5	Évolution de ϕ_{Fe} dans le bain de corium à différents instants pendant le premier transitoire de stratification (la formation de la couche métallique lourde).	117
5.1	(A) Schéma de l'installation expérimentale avec (1) réservoir en verre rempli d'eau, (2) embout en borosilicate, (3) pompe à seringue, (4) système d'éclairage et (5) une caméra rapide. (B) Illustration de la trajectoire de la goutte en fonction du temps. Figure adaptée de Rao <i>et al.</i> [8]	128
5.2	Paysage thermodynamique représenté à l'échelle logarithmique dans la surface d'énergie du grand potentiel modifié Ω^* . La ligne bleue (resp. rouge) relie les compositions d'équilibre (resp. compositions initiales) et la ligne noire représente la limite de la zone spinodale.	131
5.3	Position de la goutte par rapport au largeur du domaine.	135
5.4	Diagramme de Clift [9] décrivant la forme des bulles et gouttes en fonction des nombres d'Eötvös (Bond), de Morton et de Reynolds. Quelques formes typiques de goutte issues des calculs réalisés dans le cadre du stage de Clément Plumecocq [10] avec le modèle <code>Phase_field</code> y sont représentées.	136
5.5	Position de la goutte en fonction du temps pour différentes mobilités.	139
5.6	Évolution typique de la vitesse de la goutte en fonction du temps avec le champ de masse volumique correspondant à l'état initial de la goutte, à sa vitesse maximale, à sa hauteur maximale et à sa vitesse terminale pour $M = 5.10^{-9}$	141
5.7	Valeur absolue de la vitesse de la goutte en fonction du temps pour différentes valeurs de M	142
5.8	Valeur absolue de la vitesse en fonction de $t \times M$ pour différentes valeurs de mobilité - (A) calculs effectués avec le modèle <code>Phase_field</code> et (B) avec le modèle réduit.	144
5.9	Vecteurs vitesse dans le champ de masse volumique à différents instants pour $M = 2.5 \times 10^{-9} \text{J}^{-1} \text{m}^5 \text{s}^{-1}$	145
5.10	Champ de vitesse verticale à différents instants pour $M = 2.5 \times 10^{-9} \text{J}^{-1} \text{m}^5 \text{s}^{-1}$	146
5.11	Champ de concentration de l'élément A pour $t \times M = 10^{-9} \text{J}^{-1} \text{m}^5$ à différentes mobilités.	147
5.12	Champ de concentration de l'élément A à différents instants pour $M = 2.5 \times 10^{-9} \text{J}^{-1} \text{m}^5 \text{s}^{-1}$	148

5.13 (A) Schéma illustratif du domaine et de la distance d - (B) Évolution de ϕ_B le long de la ligne horizontale $y = 0$ à différents instants pour $M = 2.5 \times 10^{-9} \text{J}^{-1} \text{m}^5 \text{s}^{-1}$	149
5.14 (A) Paysage thermodynamique “cercle” dans la surface d’énergie Ω^* avec $a_j^k = 1$ ($k \in \{dis, cont\}$ et $j \in \{x, y\}$). La droite en bleu (resp. rouge) relie les deux compositions d’équilibre (resp. compositions initiales) dans chacune des phases - (B) Composition de l’élément immiscible dès les premiers instants.	153
5.15 (A) Paysage thermodynamique dans la surface d’énergie Ω^* avec $a_x^k = 0.5$, $a_y^k = 1$ et $\psi^k = 10^\circ$ ($k \in \{dis, cont\}$). La droite en rouge relie les deux compositions initiales et la flèche noire indique le chemin que prend le système pour aller vers les points d’équilibre. La zone en pointillé représente la région spinodale - (B) Profils de composition de l’eau à différents instants le long de l’axe horizontal $x^* = \frac{x}{L_x}$	154
5.16 Paysage thermodynamique dans la surface d’énergie Ω^* avec $a_x^{dis} = 0.25$, $a_y^{dis} = 1$, $a_x^{cont} = 0.6$, $a_y^{cont} = 1$, $\psi^{dis} = 45^\circ$ et $\psi^{cont} = 0^\circ$ ($k \in \{dis, cont\}$). La droite en rouge relie les deux compositions initiales et la flèche noire indique le chemin que prend le système pour aller vers les points d’équilibre. La zone en pointillé représente la région spinodale.	155
5.17 Comparaison de la trajectoire (A) et de la vitesse (B) de la goutte pour $M = 4 \times 10^{-9}$ avec celles de l’expérience n°4 de Rao <i>et al.</i> [8].	156
C.1 Paysage thermodynamique du cas n°3 dans [11])	173

LISTE DES TABLEAUX

2.1	Tableau récapitulatif des paramètres physiques et numériques dans le modèle du champ de phase.	52
2.2	Propriétés physiques typiques du corium et de l'eau [12].	57
3.1	Fraction molaire des espèces $y_i^{\alpha,eq}$ à l'équilibre thermodynamique pour $x_U = 0.35$, $x_{Zr} = 0.25$ et $T = 3000K$ dans la lacune de miscibilité.	64
3.2	Paramètres définissant l'état initial du système pour les 3 cas.	71
3.3	Valeurs des positions d'interface pour $\bar{\kappa}_d$	78
3.4	Valeurs des paramètres d'ajustement pour le paysage analytique.	97
3.5	Valeurs de la tension de surface et de $\Delta\tilde{z}^G$ pour $\bar{\kappa}_d$ et $\bar{\kappa}_{opt}$ avec différents paysages thermodynamiques.	100
4.1	Composition de l'élément Fe dans chacune des phases et la masse volumique des deux phases à l'état initial et à l'état d'équilibre obtenues par calcul d'équilibre thermodynamique sous la base NUCLEA'09 [13] à $T = 3000K$	115
5.1	Récapitulatif des compositions des éléments A et B ainsi que la masse volumique de chacune des phases à l'état initial et d'équilibre.	134
5.2	Masse volumique des éléments dans le système et de la goutte initiale de l'expérience de Rao <i>et al.</i> [8].	150
5.3	Récapitulatif des compositions des éléments miscible et immiscible ainsi que la masse volumique de chacune des phases à l'état initial et d'équilibre pour le cas n°4.	151

5.4 Valeurs des paramètres des paraboloides pour le paysage thermodynamique
choisi. 155

NOMENCLATURE

ζ_0	Amplitude initiale de perturbation des instabilités de Rayleigh-Taylor
θ	Angle de rotation dans l'optimisation de $\bar{\kappa}$
γ	Coefficient de frottement (modèle réduit)
κ	Coefficient de gradient
$\Delta\tilde{z}^G$	Ecart adimensionnel entre les positions d'interface
ε	Epaisseur d'interface
F_H	Fonction d'énergie libre
Ω	Grand potentiel
\mathbf{g}	Gravité
I_0	Inverse de la longueur d'onde (en m^{-1})
a_x^k, a_y^k	Largeurs du puit dans la phase k (ajustement du paysage thermodynamique)
ρ	Masse volumique
$R(\theta)$	Matrice de rotation d'angle θ
\mathcal{M}^*	Mobilité numérique
\mathcal{M}	Mobilité physique
k	Nombre d'onde angulaire (en radian par mètre)
β	Opposé du coefficient de dilatation en fonction de la composition dans l'approximation de Boussinesq

λ	Paramètre d' <i>upscaling</i>
d	Paramètre d'optimisation de $\bar{\kappa}$
ϕ	Paramètre d'ordre
z^G	Position de l'interface
$\tilde{\mu}$	Potentiel de diffusion
P	Pression
ψ^k	Rotation du puit dans la phase k (ajustement du paysage thermodynamique)
$\boldsymbol{\tau}$	Tenseur des contraintes visqueuses
σ	Tension de surface
η	Viscosité dynamique (Pa.s)
\mathbf{u}	Vitesse
V_m	Volume molaire

INTRODUCTION GÉNÉRALE

Dans le contexte actuel de recherche d'un mix énergétique limitant l'impact sur l'environnement et le dérèglement climatique, le secteur du nucléaire se place en troisième position comme source de production d'électricité dans le monde. Il représente 10% de la production mondiale d'électricité en 2018 [14] et 67,1% de la production totale d'électricité en France en 2020 [15]. Jusqu'à ce jour, c'est la fission nucléaire qui est utilisée pour produire de l'électricité à grande échelle². L'énergie dégagée lors de la fission d'un noyau est accompagnée d'une production de rayonnement radioactif et d'une libération de 2 ou 3 neutrons qui peuvent à leur tour provoquer une autre fission d'un noyau lourd. C'est le mécanisme de réaction en chaîne, phénomène mis en œuvre et contrôlé dans les centrales nucléaires pour produire de l'électricité.

Dans le passé, des accidents dits "graves" ont pu toucher certaines installations nucléaires comme le réacteur n°2 de la centrale de Three Mile Island (TMI-2) [17] et quelques réacteurs de la centrale de Fukushima Daiichi [18]. Ces accidents que peuvent subir les centrales doivent être étudiés dans une approche de défense en profondeur tout en tenant compte des événements passés. Plus particulièrement, en cas d'accident grave, la fusion partielle ou totale du cœur du réacteur conduit à la formation du *corium*. C'est un mélange multicomposant hautement radioactif de combustible et de matériaux fondus qui peut percer la cuve du réacteur et se répandre dans l'environnement. La rétention en cuve est une des stratégies de mitigation des conséquences d'un tel accident. Le comportement du corium en cuve est complexe car les phases liquides immiscibles en présence ne sont pas

2. La fusion nucléaire est encore au stade de la démonstration de sa faisabilité avec, en particulier, la construction du tokamak du projet de réacteur thermonucléaire expérimental international ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor) sur le site de Cadarache, France [16].

forcément chimiquement inertes. Aux interfaces réactives entre phases s'opère un transport de masse qui peut avoir un impact déterminant sur la thermohydraulique de ce bain. Ce transfert interphase conduit en particulier à une modification locale de la masse volumique de part et d'autre de l'interface de telle sorte que, sous certaines conditions, des instabilités de Rayleigh–Taylor (RT) peuvent se développer et conduire à un changement de topologie des phases en présence. La présente thèse s'inscrit dans la démarche de modéliser ces phénomènes couplés de transfert de masse et d'hydrodynamique observés en transitoire de stratification en développant un code CFD (Computational Fluid Dynamics).

Pour faciliter la lecture de ce rapport, le corps du texte est allégé en renvoyant éventuellement en annexes quelques détails pour une meilleure compréhension. En conséquence, ce document comprend cinq chapitres accompagnés de six annexes structurés comme suit :

- Le Chapitre 1 est dédié à la compréhension du contexte général et les enjeux scientifiques du travail de recherche développé dans cette thèse. Un état de l'art des connaissances ainsi que les objectifs y sont également présentés.
- Le Chapitre 2 contient une présentation globale de certaines méthodes de traitement d'interface suivie d'une discussion plus détaillée de la méthode du champ de phase, notamment le modèle de Cahn–Hilliard utilisé dans ce travail. L'Annexe A qui montre la solution analytique d'un modèle de Cahn–Hilliard binaire est accessoire à ce chapitre.
- Le Chapitre 3 présente l'étude sur la diffusion multicomposant dans le système ternaire U-O-Zr. Les problématiques de modélisation par champ de phase d'un système multicomposant ainsi que la structure de l'interface dans le contexte de la modélisation d'écoulements macroscopiques (avec un élargissement de l'interface) y sont exposées. L'Annexe B sur la démonstration de la linéarité du potentiel chimique à l'équilibre thermodynamique et l'Annexe C portant sur le potentiel chimique analytique à partir du produit de deux paraboloides sont complémentaires à ce chapitre.
- Le Chapitre 4 décrit le couplage du modèle de Cahn–Hilliard avec l'hydrodynamique accompagné de quelques résultats de simulations sur le couplage dans un système binaire. La contribution apportée au modèle CFD et le travail de développement réalisé dans le code `TrioCFD` [19, 20] y sont discutés afin de caractériser les phénomènes couplés dans un système multicomposant. Les détails sur ces développements et la résolution numérique des équations sont disponibles en Annexe D et Annexe E.

- Enfin, le Chapitre 5 présente des simulations qui mettent en évidence la capacité du modèle développé dans cette thèse à reproduire qualitativement et semi-quantitativement des résultats expérimentaux dans un système régi par les mêmes phénomènes physiques que le corium lors du transitoire de stratification. Il s'agit de la dynamique d'une goutte soumise à un changement de densité par transfert de masse avec la phase continue. À la fin de ce document, une conclusion générale et des perspectives à ce travail seront présentées. L'Annexe F récapitule toutes les communications scientifiques effectuées au cours de cette thèse.

CHAPITRE 1

CONTEXTE ET OBJECTIFS

Ce chapitre a pour but de préciser le contexte général et l'enjeu de la présente thèse. À cet égard, dans ce chapitre, nous présentons en premier lieu les différents réacteurs nucléaires dans le monde de manière générale en mettant l'accent sur le réacteur à eau pressurisée. Puis, nous décrivons le principe de fonctionnement de ce type de réacteur avant de parler de la notion d'accident grave et son processus d'évolution jusqu'à la formation du corium. Ensuite, nous discutons de la gestion de ces accidents, du comportement du corium en cuve ainsi que des phénomènes physiques associés à sa stratification. Enfin, dans la dernière partie du chapitre, nous présentons l'état actuel des connaissances avant de terminer par les objectifs de la thèse.

1.1 Les réacteurs nucléaires de fission

Majoritairement, les réacteurs nucléaires sont à vocation commerciale mais quelques-uns sont destinés à la recherche. Selon le spectre énergétique des neutrons mis en jeu, les réacteurs commerciaux peuvent être classés en deux grandes familles à savoir les réacteurs à neutrons thermiques et les réacteurs à neutrons rapides.

I– **Les réacteurs à neutrons thermiques (ou à neutrons lents)** utilisent des neutrons ralentis par un modérateur pour provoquer la fission des matériaux fissiles. Un modérateur est un matériau servant à ralentir les neutrons jusqu'à l'état thermique du modérateur (ou la vitesse correspondant à l'agitation thermique des atomes du milieu diffusant) par chocs successifs en limitant l'absorption. Plus un neutron est

lent, plus la probabilité qu'il soit capté par un atome fissile (U^{235} par exemple) est grande. La réaction est ainsi facilitée et le modérateur joue un rôle important dans le maintien de la réaction en chaîne. La vitesse des neutrons varie selon le modérateur utilisé. Dans cette famille de réacteurs, on peut parler de :

- (i) *réacteurs à eau légère* (en anglais "LWR Light Water Reactor") pour ceux qui utilisent l'eau ordinaire (H_2O) comme fluide caloporteur et modérateur. Ces réacteurs à eau légère fonctionnent essentiellement avec de l'uranium enrichi¹. Cet enrichissement permet d'obtenir une plus grande quantité de U^{235} fissile nécessaire à la fission nucléaire dont l'énergie est par la suite transportée par un fluide caloporteur. Il existe deux types de réacteurs à eau légère : les réacteurs à eau pressurisée (REP) et les réacteurs à eau bouillante (REB). Les REP constituent les 2/3 des réacteurs nucléaires de puissance dans le monde et la totalité des réacteurs en activité en France tandis que les REB sont implantés notamment aux Etats-Unis et au Japon ;
- (ii) *réacteurs à eau lourde* pour ceux qui utilisent l'eau enrichie (oxyde de deutérium D_2O) comme fluide caloporteur et modérateur. Cette eau lourde absorbe moins les neutrons que l'eau « ordinaire », ce qui permet d'utiliser l'uranium naturel comme combustible, sans avoir à l'enrichir. Néanmoins, à taille égale, ce type de réacteur produit moins d'énergie qu'un réacteur à eau légère. Ces réacteurs à eau lourde se trouvent principalement au Canada et en Inde ;
- (iii) *réacteurs au graphite* pour ceux qui utilisent le graphite comme modérateur. Dans ce cas, le fluide caloporteur peut être du gaz ou liquide. Les réacteurs à caloporteur gaz utilisent le CO_2 comme fluide caloporteur et le graphite comme modérateur sont généralement de faible puissance (100-300MW) et se trouvent tous au Royaume-Uni. Les réacteurs RBMK (Reaktor Bolshoy Moshchnosti Kanalnyy) de conception soviétique utilisent de l'eau légère comme fluide caloporteur et le graphite comme modérateur. Les réacteurs RBMK en activité se trouvent tous dans les pays de l'ex-URSS.

II– **Les réacteurs à neutrons rapides (RNR)** n'utilisent pas de modérateur et permettent, par une conversion efficace des isotopes fertiles du combustible en isotopes fissiles, une utilisation optimale de la ressource en uranium. Autrement dit,

1. À titre indicatif, dans 1kg d'uranium naturel (directement issu de l'extraction minière), on peut trouver 993g de U^{238} (fertile) et 7g de U^{235} . Seul l'uranium 235 est fissile mais sa quantité est insuffisante pour être utilisable dans la plupart des réacteurs d'où la nécessité de son enrichissement.

ils ont l'avantage d'utiliser pleinement l'uranium naturel (U^{238} fertile et U^{235} fissile). Grâce à un cycle de combustible fermé, la technologie de neutrons rapides permet de réduire considérablement les déchets nucléaires et de faciliter leur gestion. Quant au caloporteur, les RNR peuvent être refroidis au sodium, au plomb, au plomb-bismuth et au gaz. Cependant, le sodium est le plus utilisé dans le monde. Actuellement, trois RNR refroidis au sodium (RNR-Na) fonctionnent dans le monde pour produire de l'électricité en l'occurrence les réacteurs russes Beloyarsk-3 (BN-600) et Beloyarsk-4 (BN-800) ainsi que le réacteur chinois CEFR².

Par ailleurs, il existe d'autres réacteurs innovants qui font l'objet de travaux de recherche et développement (R&D) et de conception à l'heure actuelle tels que :

- (i) *les réacteurs à sels fondus* (MSR ou Molten Salt Reactor) qui utilisent un combustible liquide, dissous dans du sel fondu à haute température (600-900°C) et à pression ambiante servant de fluide caloporteur. Ils ont la particularité de pouvoir faire partie des deux familles de réacteurs : à neutrons thermiques avec du graphite ou du sel fondu comme modérateur et à neutrons rapides sans modérateur ;
- (ii) *les petits réacteurs modulaires* (SMR ou Small Modular Reactors) qui sont de taille et puissance plus faibles que les réacteurs conventionnels. Ils sont notamment utilisés par les militaires dans les sous-marins ou les portes-avions. Ils ont l'avantage de pouvoir être fabriqués en usine et être transportés sur leur site d'implantation. Ils ont également des versions à neutrons thermiques et à neutrons rapides comme les MSR.

Dans le cadre de cette thèse, ce sont les réacteurs à eau légère (REL) qui nous intéressent, plus précisément les réacteurs à eau pressurisée (REP). La section suivante est consacrée au principe de fonctionnement de ces REP.

1.1.1 Principe de fonctionnement d'un réacteur à eau pressurisée (REP)

Pour les réacteurs de fission, la production d'énergie se passe dans le cœur du réacteur nucléaire à partir de la fission des combustibles nucléaires. Il existe plusieurs combustibles tels que le combustible UOX ("Uranium diOxyde") constitué de dioxyde d'uranium UO_2 , le combustible ThO_2 ou dioxyde de thorium et le combustible MOX ("Mixed OXides")

2. CEFR ou China Experimental Fast Reactor est un réacteur de démonstration chinois.

qui est un mélange de dioxyde de plutonium PuO_2 et de dioxyde d'uranium UO_2 . Le combustible principalement utilisé dans les réacteurs nucléaires actuels est l'UOX. Il est fabriqué à partir de l'uranium naturel préalablement enrichi.

Dans un REP, on distingue deux circuits fermés : un circuit primaire et un circuit secondaire (Figure 1.1). Le circuit primaire contient globalement la cuve, le générateur de vapeur et l'enceinte de confinement tandis que le circuit secondaire regroupe le turbo-alternateur, le condenseur et la pompe.

Dans le circuit primaire, les combustibles nucléaires notamment de l'uranium enrichi sont placés dans une cuve en acier remplie d'eau jouant le rôle de modérateur ou ralentisseur de neutrons. Ces combustibles sous forme de pastilles sont enfilés dans des tubes métalliques en zircaloy (alliage de zirconium) pour former un crayon. Ces crayons sont rassemblés dans un assemblage avec des tubes vides positionnés entre eux. Des barres de contrôle, situées au-dessus du cœur pour les REP et servant à contrôler le flux neutronique d'un réacteur sont glissées dans ces tubes vides. Elles sont, le plus souvent, en alliages d'argent-indium-cadmium (Ag-In-Cd) pour les REP.

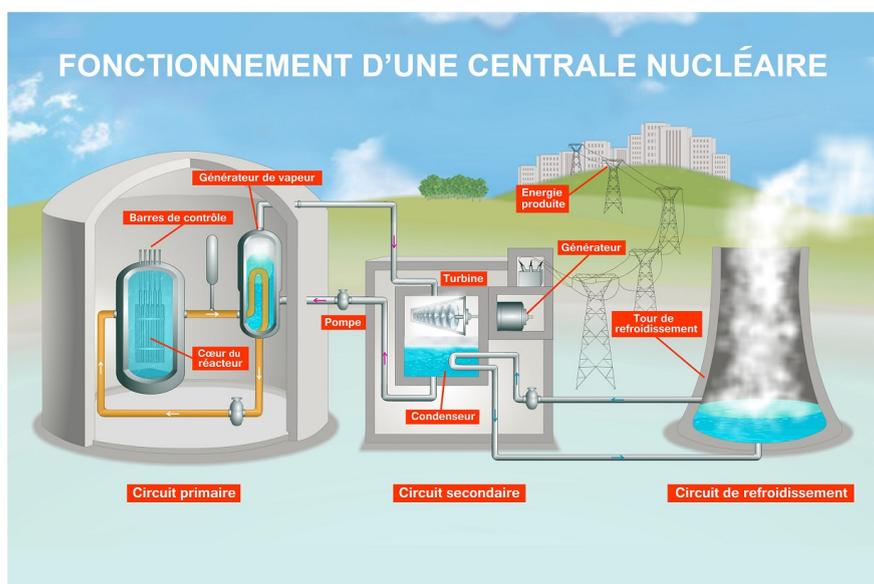


FIGURE 1.1 : Représentation d'une centrale nucléaire. Figure tirée de [1].

De la chaleur est produite à partir de la réaction en chaîne qui s'effectue dans le cœur du réacteur. Ainsi, la température du combustible augmente puis celle de l'eau circulant autour du réacteur à circuit fermé. Cette eau est maintenue à l'état liquide sous pression d'environ 155 bars grâce au pressuriseur l'empêchant de bouillir. En effet, elle entre dans

le cœur à une température autour de 275°C et en sort à une température d'environ 315°C. Servant de fluide caloporteur, elle transporte la chaleur de la cuve vers le générateur de vapeur qui a pour fonction d'échanger la chaleur entre le circuit primaire et le circuit secondaire. Par l'intermédiaire du générateur de vapeur, l'eau du circuit secondaire est portée à ébullition. De la vapeur se dégage afin d'alimenter le turbo-alternateur qui produit par la suite de l'électricité.

La vapeur sortant de la turbine passe ensuite dans un condenseur dans lequel elle est refroidie grâce à un circuit de refroidissement qui la retransformera en eau liquide avant de la renvoyer vers le générateur de vapeur.

1.1.2 Niveau de protection dans les réacteurs nucléaires

Le combustible du cœur du réacteur est hautement radioactif. Les noyaux instables retournent à l'état stable en émettant des rayonnements ionisants. L'exposition à ces matières radioactives est très dangereuse pour la santé des êtres vivants et pour l'environnement. Afin d'empêcher l'émission de ces produits radioactifs, les réacteurs nucléaires disposent de trois niveaux de protection :

1. la première barrière de protection est constituée d'une gaine métallique en zircaloy entourant les éléments de combustibles. Elle est destinée à piéger les produits radioactifs dans les pastilles de combustible ;
2. la deuxième barrière de protection est le circuit primaire fermé. Cette enveloppe doit être capable de retenir les produits radioactifs en cas de défaillance de la première barrière ;
3. la troisième barrière est la dernière enceinte étanche en acier et/ou en béton armé qui abrite le circuit primaire. Elle est conçue pour résister à des importants chocs, température et pression en cas d'accident et est censée empêcher toute fuite non contrôlée vers l'extérieur.

Des dispositifs de sûreté sont pris en compte dès la conception des réacteurs et des améliorations régulières sont effectuées pour assurer la sûreté de la centrale en cas d'incident ou d'éventuelle défaillance qui mène à l'arrêt du réacteur. Cependant, la chaleur dégagée par ces produits de fission en cours de désintégration continue d'être produite même en cas d'arrêt de la réaction en chaîne. Il s'agit de la puissance résiduelle, un effet thermique de la désintégration naturelle pouvant mener jusqu'à la fusion du cœur du réacteur. Dans

le cadre de la sûreté nucléaire, des scénarios dits incidentels ou accidentels sont étudiés à partir d'un ensemble de causes présumées pour améliorer leur prévention et mitigation.

1.2 Notion d'accidents graves

On peut classer les accidents dans les centrales nucléaires en deux niveaux suivant la gravité de leurs conséquences : les accidents de dimensionnement et les accidents graves.

D'une part, selon l'IAEA³, un accident de dimensionnement regroupe "toute situation accidentelle à laquelle une centrale nucléaire est conçue pour résister conformément à des critères de conception spécifiés et dans laquelle l'endommagement du combustible et le rejet de matières radioactives sont maintenus en dessous des limites autorisées" [21]. Autrement dit, cela concerne tous les incidents et anomalies dont les conséquences n'affectent ni le cœur du réacteur ni les barrières de confinement et les conséquences environnementales sont en dessous du seuil autorisé.

D'autre part, on entend par "accidents graves" tous les accidents plus graves qu'un accident de dimensionnement, c'est-à-dire tout accident qui conduit à une dégradation partielle ou totale du cœur du réacteur accompagnée de la perte de l'intégrité d'une ou plusieurs barrières de confinement et d'un rejet de radioactivité dans l'environnement [22].

Dans cette thèse, nous nous intéressons exclusivement aux accidents graves dans les réacteurs à eau légère. Ceux-ci peuvent être classés en deux grandes catégories selon qu'ils soient d'origine neutronique ou thermohydraulique :

- *l'accident de réactivité* ou Reactivity Insertion Accident (RIA) peut provenir d'une augmentation de la réactivité dans le cœur du réacteur suite à un dysfonctionnement ou à une éjection d'une grappe de commande servant à ajuster la puissance du réacteur et à contrôler les réactions. L'augmentation rapide de la puissance provoque une surchauffe jusqu'à fusion du cœur ;
- *l'accident de refroidissement* survient lorsqu'il y a une défaillance du mécanisme d'évacuation de la chaleur. Pour les REP en particulier, cette perte de refroidissement peut provenir de ce qu'on appelle communément APRP ou Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (LOCA Loss Of Coolant Accident en anglais). Il s'agit d'une situation provoquée par une fuite d'eau dans le circuit primaire suite à une petite

3. IAEA ou International Atomic Energy Agency est une organisation internationale, sous l'égide de l'ONU qui œuvre pour la promotion des usages pacifiques de l'énergie nucléaire et la protection de tout un chacun contre les effets radioactifs.

ou grande brèche dans les canaux (SBLOCA et LBLOCA⁴) et/ou par une perte d'alimentation du réseau électrique interne et externe à la centrale (Station BlackOut SBO) comme le cas de l'accident de Fukushima (Japon 2011). La dépressurisation du circuit primaire entraîne l'arrêt automatique du réacteur mais malgré l'arrêt de la réaction en chaîne, la puissance résiduelle continue de faire monter la température du cœur et potentiellement jusqu'à sa fusion.

Depuis l'utilisation du nucléaire comme source d'énergie, différents événements ont pu toucher les installations nucléaires parmi lesquels les trois accidents graves ci-après avec fusion partielle ou totale du cœur des réacteurs :

- (i) l'accident de Three Miles Island-2 (TMI-2) [17] aux Etats-Unis en 1979 suite à la perte d'eau d'alimentation des générateurs de vapeur entraînant leur assèchement et l'arrêt de l'évacuation de la chaleur du cœur jusqu'à sa fusion partielle ;
- (ii) l'accident de Tchernobyl en Ukraine (à l'époque de l'URSS) en 1986 à la suite d'un échec d'un test expérimental effectué lors d'une maintenance annuelle du réacteur type RBMK. Le contact du combustible fondu avec l'eau dans les canaux de refroidissement a provoqué une explosion de vapeur et la rupture de l'enceinte de confinement du cœur jusqu'à la destruction du réacteur et dissémination directe (projection de combustible fondu) et indirecte (fumées de l'incendie) des éléments radioactifs dans l'environnement [22, 23] ;
- (iii) l'accident de Fukushima au Japon le 11 mars 2011 suite à un séisme de magnitude 9 suivi d'un tsunami accompagné d'une vague jusqu'à environ 24 m de haut provoquant le noyage des trois réacteurs de la centrale et la perte d'alimentation du réseau interne et externe à la centrale (blackout) [18, 24]. Le refroidissement du cœur du réacteur n'est plus assuré tandis que la puissance résiduelle a continué de chauffer le cœur jusqu'à sa fusion totale et la probable relocalisation de matériaux fondus hors de la cuve.

Ces accidents historiques ont montré qu'un accident grave pouvait arriver à tout moment. Riches d'enseignement, ils ont conduit à des exigences de sûreté accrue et de la R&D sur les accidents graves en support. Les systèmes de sûreté d'un réacteur nucléaire sont conçus pour résister à une défaillance unique et éviter un accident grave dans lequel le cœur du réacteur pourrait être endommagé.

4. SBLOCA (resp. LBLOCA) signifient Small pipe (resp. Large pipe) Break Loss Of Coolant Accident et désignent littéralement les accidents de perte de réfrigérant causée par une petite (resp. grande) brèche dans les canaux.

Dans cette thèse, nous nous intéressons plus particulièrement à l'accident de perte de refroidissement en commençant par l'étude du déroulement d'un accident grave dans une logique de défense en profondeur dans la section suivante.

1.2.1 Processus d'évolution d'un accident grave

Suivant la température, deux phases peuvent être distinguées dans le processus de dégradation du cœur [25]. La première phase correspond à une température inférieure à 2230°C relative à la limite liée uniquement aux dommages locaux du cœur et la seconde phase à partir de 2230°C jusqu'à environ 2850°C correspondant à la température de fusion du cœur où tout le combustible et les structures internes de la cuve sont fondus.

Durant la première phase, à partir de 700°C, les gaines en zircaloy qui entourent les combustibles commencent à se déformer par effet thermomécanique. En fonctionnement normal, elles sont à température inférieure ou égale à 350°C. La température augmente jusqu'à la fusion des barres de contrôle en alliage argent-indium-cadmium (Ag-In-Cd) vers 830°C. Une fissuration des gaines en zircaloy (première barrière de confinement) est observée à partir de 930°C avant qu'une réaction d'oxydation du zirconium Zr ne commence à partir de 1030°C. Cette réaction devient très exothermique et s'accompagne d'une production significative d'hydrogène à partir de 1200°C. La température augmente rapidement de l'ordre de 1-10K/s jusqu'à la formation de deux eutectiques⁵ : un eutectique acier inoxydable-Zr à 1230°C et un autre eutectique Ag-In-Cd-Zr à 1400°C. Le processus de dégradation se poursuit avec un début de fusion de la structure en acier inoxydable à partir de 1460°C et du Zr à partir de 1760°C. La chaleur dissipée par la puissance résiduelle continue de chauffer les structures internes de la cuve. À partir de 2230°C, le combustible fond partiellement et sa fusion peut entraîner un blocage des canaux du cœur. Tout cet enchaînement constitue la première phase de dégradation qui se limite aux dommages locaux du cœur.

La seconde phase de dégradation comprend tout le processus de fusion des structures internes restantes jusqu'à la formation d'un bain liquide issue de la fusion du cœur. Cela se manifeste par un début de fusion du B₄C des barres de contrôle à partir de 2450°C et de dissolution du mélange UO₂ + ZrO₂ à partir de 2530°C. Le système atteint la température de fusion du dioxyde de zirconium ZrO₂ à 2700°C et celle du dioxyde d'uranium UO₂ à 2850°C. L'existence d'eutectiques avec le Zr et l'acier des barres de contrôle peut déjà

5. Un mélange eutectique se comporte comme un corps pur avec une température de fusion inférieure à celle des deux composés le constituant (compositions non-eutectiques).

entraîner des coulées de matériaux fondus mais à des températures plus faibles. La masse de liquide en cœur ne commence à augmenter significativement qu'à partir du moment où la température de liquidus du mélange UO_2+ZrO_2 est atteinte. Cela conduit à une formation d'un bain liquide, mélange de combustible et de structures de la cuve, appelé "corium" (vient de core qui signifie cœur). Ce corium peut se relocaliser *in fine*, au fond de la cuve.

1.2.2 Stratégie de mitigation et gestion des accidents graves

La mitigation est l'étude des scénarios accidentels permettant de prévoir et anticiper les dommages causés par l'accident afin d'ajouter des systèmes permettant de réduire les conséquences qu'ils pourraient engendrer s'ils devaient se produire. Le principal objectif dans la gestion de ces accidents est d'éviter l'émission de particules radioactives dans l'environnement.

Le renoyage du cœur par une injection d'une grande quantité d'eau peut permettre de ralentir, voire d'arrêter la progression de la fusion du cœur. Ce renoyage du cœur pourrait néanmoins provoquer d'autres phénomènes physiques tels que :

- un risque d'explosion vapeur provenant d'une forte production de vapeur conduisant à une augmentation importante de la pression dans le circuit primaire à l'issue de l'injection d'eau,
- un risque de flamme ou d'explosion d'hydrogène produit par oxydation des gaines en zircaloy par la vapeur d'eau qui peut provoquer un relâchement plus rapide de produits de fission.

Les crayons combustibles peuvent rester intacts ou subir une moindre dégradation. Dans le cas contraire, des fragments de combustibles formant un milieu poreux, appelés lit de débris, s'accumulent au fond de la cuve. Selon l'inventaire d'eau et le système disponible pour refroidir le cœur, ce refroidissement peut redevenir insuffisant au bout d'un certain temps [25]. Le processus de dégradation du cœur reprend avec un retard qui aura permis à la puissance résiduelle de décroître. S'il arrive jusqu'à la formation du corium, le cœur fondu (de manière partielle ou totale) se relocalisera au fond de la cuve.

L'IAEA distingue principalement deux types de stratégie de mitigation et de gestion de l'accident grave [26] :

- la stratégie de rétention du corium en cuve communément appelée IVR ou "In-Vessel Retention" et

- la stratégie de refroidissement du corium hors cuve, aussi connu sous le nom “Ex-Vessel Corium Cooling” ou EVCC.

La stratégie IVR a été introduite pour la première fois en 1989 par Theofanous [12] pour équiper les réacteurs VVER-440 de deuxième génération de la centrale nucléaire de Loviisa en Finlande. Elle consiste à retenir et confiner le corium au fond de cuve en effectuant un noyage du puits de cuve afin d'extraire la puissance résiduelle dissipée par le combustible depuis l'extérieur. Ceci est dans le but de stabiliser l'accident et d'éviter le percement de la deuxième barrière de confinement (cuve). Le risque majeur lié à l'échec de l'IVR est l'interaction corium/eau [27, 28]. Étant donné que le puits de cuve est noyé, le corium peut rentrer en contact avec l'eau hors de la cuve en cas de percement de celle-ci. Cela peut conduire à un phénomène d'explosion vapeur accompagné de pics de pression très violents pouvant compromettre l'intégrité mécanique des structures (dont la cuve).

Si le puits de cuve n'est pas renoyé dans une logique de la stratégie IVR, le percement de la cuve sera inévitable et le corium va se déverser sur le radier. Dans ce cas, une stratégie de mitigation EVCC est mise en oeuvre pour collecter, stabiliser et refroidir le corium sorti de la cuve sur un récupérateur de corium hors cuve. Le but est de garder l'intégrité de la dernière barrière de confinement (enveloppe en béton) et d'éviter la dispersion radioactive dans l'environnement. La technologie EVCC est déjà utilisée dans l'EPR⁶ de Framatome (ex-AREVA) [29] doté d'un récupérateur avec étalement de corium (“catcher with melt spreading”) et le VVER-1000 avec un récupérateur type creuset (“crucible-type catcher”) [30]. Si le réacteur n'est pas doté d'un dispositif de récupération, le corium se retrouve sur le radier en béton et l'interaction corium/béton [31] est à étudier en détail afin d'évaluer l'ablation du béton qui peut mener au percement du radier avec libération de produits radioactifs dans l'environnement dans le pire des cas.

Quelque soit la stratégie de mitigation adoptée, la question de la production d'hydrogène et le risque d'explosion associé de par son caractère inflammable se posent dans toute phase de l'accident. Lors de la phase de dégradation du cœur, la production d'hydrogène est principalement due à l'oxydation des gaines en alliage de zirconium et des structures des éléments combustibles, éventuellement des structures métalliques de la cuve. Lorsque le corium ne peut plus être retenu dans la cuve, l'oxydation de Zr résiduel et des structures métalliques par la vapeur d'eau provoque une importante production d'hydrogène. En

6. EPR ou “Evolutionary Power Reactor” est un type de réacteur nucléaire à eau pressurisée de troisième génération GenIII.

France, l'ensemble des réacteurs en exploitation sont munis de Recombineurs Autocatalytiques Passifs (RAP) [32]. Il s'agit d'un dispositif permettant de transformer l'hydrogène en eau par recombinaison avec l'oxygène de l'air et d'éviter son accumulation. C'est la stratégie de mitigation utilisée pour réduire la concentration d'hydrogène. En tout cas, les réacteurs de troisième génération (GenIII)⁷ intègrent, dès leur conception, la question de la mitigation des accidents graves. Dans cette thèse, nous nous limitons au cas où le corium est retenu à l'intérieur de la cuve dans le cadre de la stratégie IVR.

1.2.3 Conditions de réussite de la stratégie IVR

Le noyage du puits de cuve par la stratégie IVR doit permettre de refroidir la cuve de l'extérieur par circulation d'eau (ERVC - "External Reactor Vessel Cooling") bien avant que le corium ne se relocalise au fond de cuve et d'éviter sa rupture. Dans les réacteurs de troisième génération (GenIII), un espace peut être aménagé pour canaliser la circulation de l'eau pour le noyage du puits de cuve. Une mitigation réussie passe par l'extraction de la chaleur du corium afin d'en limiter la propagation et d'en assurer le confinement. La cuve fait face à deux grands risques vis-à-vis de la perte de son intégrité : une fusion localisée sur toute son épaisseur à cause d'un flux thermique imposé par le bain trop grand et une rupture mécanique à cause de la charge du corium à laquelle s'ajoutent d'éventuelles surpressions.

D'une part, l'eau en puits de cuve garantit l'extraction de la chaleur du corium en cuve tant que le flux critique (CHF "Critical Heat Flux") n'est pas atteint. Ce flux critique est le flux correspondant à la limite d'assèchement de la face externe de la cuve. En d'autres termes, la stratégie IVR se base sur la vérification que le flux de chaleur en tout point de la cuve peut être extrait sans risque d'assèchement. C'est pourquoi l'évaluation des flux de chaleur du bain à la cuve est d'une importance majeure pour mieux comprendre les transferts thermiques qui s'y opèrent et ainsi évaluer le risque d'assèchement.

D'autre part, la tenue mécanique de la cuve est indissociable de la stratégie IVR. La présence du corium au fond de cuve conduit à l'ablation de la cuve, qui est d'autant plus grande dans les zones soumises aux chargements thermiques plus importantes. Son épaisseur se retrouve réduite et elle devient moins résistante mécaniquement.

À titre informatif, la stratégie IVR est déjà retenue pour les réacteurs de petite et moyenne puissance type VVER-440 en Finlande [33]. Des réacteurs de plus fortes puissances

7. Les réacteurs de troisième génération (GenIII) sont des réacteurs conçus après 1990 pour prendre en compte les accidents de TMI et de Tchernobyl.

comme l'AP1000 (extension par Westinghouse du réacteur APR600 [12] qui restait un design "papier"), l'APR1400 (Corée) et les réacteurs avancés chinois HPR1000 et CAP1400 [34, 35] adoptent la stratégie IVR et sont certifiés dans certains pays. Cependant, le succès d'une telle stratégie pour ces types de réacteurs supérieurs à 1000MWe reste incertain. La R&D dans la sûreté nucléaire pour étudier et améliorer l'efficacité de la stratégie IVR dans les réacteurs de grande puissance se poursuit et le projet IVMR⁸ (achevé en 2020) du programme européen H2020 [36] y a grandement contribué, en particulier, en dégagant un consensus sur les axes de recherche prioritaires. À noter que pour des réacteurs de forte puissance, les résultats globaux de ce projet ont montré que plus le rapport entre la masse des structures en acier présentes dans le corium et la masse de combustible est élevé, plus la stratégie IVR devient une option viable. C'est l'une des raisons pour lesquelles les réacteurs AP1000 et HPR1000 comportent des structures d'acier de grande dimension de par sa conception liée à la stratégie IVR.

1.3 Comportement du bain de corium en cuve

Le corium est un mélange à très haute température de matériaux fondus du cœur composé essentiellement des éléments U, O, Zr et d'autres éléments d'acier inoxydable comme Fe, Ni, Cr. Le comportement thermochimique de ce mélange multiconstituant est complexe, au sens, des phases immiscibles qu'il peut mettre en jeu. Ce système est fortement influencé par le degré de sous-stœchiométrie en oxygène du mélange. Le fait qu'il soit multicomposant et à température élevée rajoute ainsi une complexité à son étude. Globalement, le comportement du corium est régi par deux types de phénomènes couplés :

- les phénomènes thermique/thermohydraulique : au travers des échanges et transferts thermiques au sein du bain et au niveau de la paroi, de la distribution de chaleur entre chacune des phases, des écoulements en convection naturelle et d'instabilités hydrodynamiques qui résultent des variations des propriétés physiques des phases (en particulier la masse volumique) suivant leurs compositions et températures ;
- les phénomènes d'interaction thermochimique : au sens du transfert de masse et partitionnement des espèces entre les phases constituants le bain de corium, de la ségrégation des phases liquides (immiscibles) et/ou solide.

8. Le projet IVMR ou "In-Vessel Melt Retention" du programme Horizon 2020 dont l'objectif est d'analyser l'applicabilité et la faisabilité technique de la stratégie IVR pour les réacteurs de grande puissance, tant pour les réacteurs existants que pour les futurs réacteurs.

1.3.1 Phénomènes thermiques et thermohydrauliques

Le bain de corium en cuve est multiphasique dans le sens où différentes phases liquides immiscibles peuvent être présentes, en particulier

- une phase “oxyde” qui est la couche de liquide avec une quantité plus importante en oxygène et
- une ou plusieurs phases “métalliques” pauvres en oxygène.

Les termes “oxyde” et “métallique” sont utilisés pour qualifier la nature d’une couche d’un bain de corium stratifié mais il faut souligner que ces couches ne sont pas “pures” car la couche métallique n’est pas dépourvue d’oxygène et la couche oxyde est sous-stœchiométrique en oxygène (avec un indice d’oxydation inférieur à 1).

Le corium en fond de cuve a d’abord été représenté dans une configuration simple stationnaire dite “enveloppe” (“stationary bounding case”) en particulier dans la démonstration de sûreté pour les réacteurs AP600 et AP1000 [12]. Elle se veut enveloppe au sens où elle cherche à maximiser la charge thermique appliquée à la cuve de manière à couvrir tous les chargements observables durant le déroulement de l’accident au fond de cuve. En d’autres termes, la configuration enveloppe permet de mieux évaluer les flux thermiques et la répartition des couches en condition stationnaire. Il s’agit également de l’approche standard adoptée par plusieurs auteurs [12, 37, 38]. La version initiale de cette configuration enveloppe sans prendre en compte l’interaction thermo-chimique entre le corium oxyde et l’acier fondu est représentée par une configuration à deux couches correspondant à un bain oxyde sur lequel se trouve une couche d’acier selon l’illustration à la Figure 1.2.

Du point de vue thermique, on peut rencontrer les trois types de transfert dans le cas d’un bain composé de deux phases liquides (voir Figure 1.2) :

- la conduction au travers de la paroi solide de la cuve et éventuellement au travers de la croûte réfractaire⁹ aux interfaces du bain de corium,
- le transfert par rayonnement au niveau de la surface supérieure du bain de corium et
- la convection naturelle au sein des différentes phases liquides.

9. La croûte réfractaire est une couche solide entourant la phase oxyde formée par solidification de la phase oxyde liquide à l’interface avec la cuve refroidie

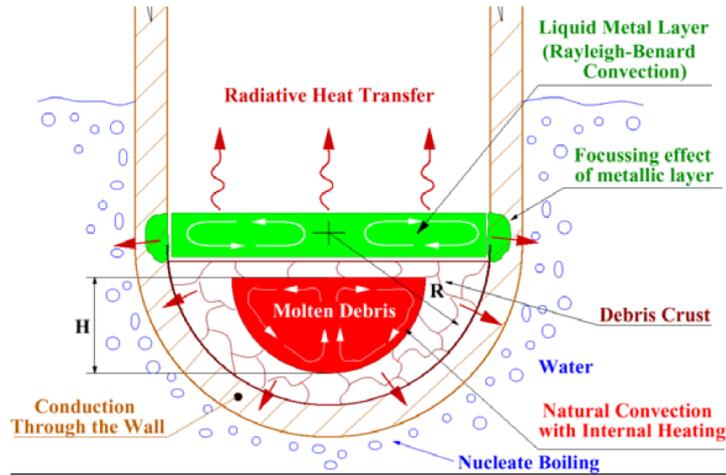


FIGURE 1.2 : Transfert de chaleur dans la cuve - stratégie IVR (extrait de [2]).

Le corium oxyde qui contient la majeure partie du combustible fondu est chauffé en volume par la puissance résiduelle issue de la désintégration naturelle des combustibles fondus du cœur. Ce fluide à très haute température échange de la chaleur par convection naturelle au travers de sa frontière *i.e.* croûte réfractaire à la paroi de la cuve et à une éventuelle couche métallique plus légère au-dessus. En ordre de grandeur, la moitié de la chaleur libérée du bain oxyde est transférée vers la couche d'acier supérieur et l'autre moitié est transférée dans les parois de la cuve [2].

Dans la couche métallique au-dessus, il existe un gradient de température entre sa surface supérieure et son interface avec le bain oxyde. La couche supérieure reçoit l'autre moitié de la chaleur libérée du bain oxyde par le bas mais elle est refroidie par rayonnement par le haut. Cette configuration s'apparente à celle de Rayleigh Bénard¹⁰ à la différence de conditions aux limites sur les parois verticales (voir Figure 1.3). Dans le cas du corium en cuve, les parois sont constamment refroidies par le côté au travers de la circulation d'eau (noyage du puits de cuve). En d'autres termes, les parois verticales ne sont pas adiabatiques, ce qui fait la différence avec l'écoulement dans une cavité de Rayleigh-Bénard classique. En première approche, l'écoulement est considéré comme la juxtaposition de cellules de convection de Rayleigh-Bénard (écoulement conditionnellement instable suivant la valeur du nombre de Rayleigh [39]) accompagnée d'une recirculation du haut vers le bas le long de la paroi verticale refroidie (écoulement inconditionnellement instable) [40, 41].

10. La convection dite de Rayleigh-Bénard correspond à la situation où les températures sont imposées sur les parois horizontales avec la paroi la plus chaude en bas, les parois verticales sont adiabatiques.

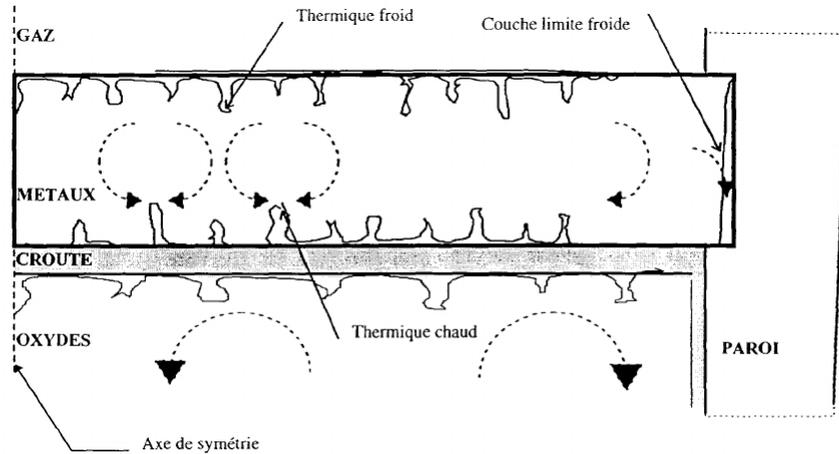


FIGURE 1.3 : Représentation schématique de la thermohydraulique de la couche métallique supérieure - stratégie IVR (extrait de [3]).

La répartition des flux de chaleur au niveau des parois se fait de manière non-uniforme comme cela a pu être caractérisé au travers de diverses expériences [42, 43]. Il a été montré que le flux de chaleur varie suivant l'angle de courbure de la cuve avec un flux nettement plus faible en partie basse du bain [44] et un maximum de flux sur les deux parois latérales supérieures. Cette observation est bien cohérente avec l'épaisseur de la croûte qui est plus épaisse au fond de la cuve que sur les parois latérales, ce qui explique cette non uniformité des flux de chaleur. Dans une configuration enveloppe à deux couches, tout le flux de chaleur va directement dans les parois de la cuve, contrairement au bain oxyde où il y a la présence d'une croûte réfractaire solide jouant le rôle d'une résistance thermique à l'interface avec la cuve. Comme l'acier possède une conductivité thermique plus élevée comparée au bain oxyde, le flux de chaleur échangé avec sa frontière latérale est donc plus important.

Par ailleurs, si cette couche d'acier est suffisamment fine, le phénomène de "focusing effect" ou concentration de flux peut se produire aux parois latérales en contact avec la couche d'acier supérieure. Cela présente le principal risque de percement de la cuve. En première approximation, le flux de chaleur transféré à la paroi de la cuve est inversement proportionnel à l'épaisseur de la couche métallique dans une configuration enveloppe¹¹. Ce "focusing effect" augmente lorsque l'épaisseur de la couche métallique diminue jusqu'à une certaine épaisseur minimale comme mentionné dans [45], d'où l'intérêt d'avoir des structures d'acier de grande dimension pour les réacteurs conçus avec la stratégie IVR.

11. L'épaisseur de la couche de métal supérieure est fine et conduit à un maximum de flux latéral, d'autant plus que la conductivité thermique de la couche d'acier est, en ordre de grandeur, 5 fois plus importante que celle du bain oxyde

Pour éviter ce percement thermique, cette concentration de flux doit rester en dessous de la limite d'assèchement. Pour les réacteurs de faibles puissances notamment les VVER-440, l'approche enveloppe est suffisante pour évaluer ces flux car il y a suffisamment de marge entre le flux critique CHF (flux correspondant à la limite d'assèchement) et le flux de chaleur transféré du bain de corium vers la paroi [46, 47]. Cette marge peut être considérablement réduite si la quantité d'acier présent n'est pas suffisante pour obtenir une couche d'acier plus épaisse et ainsi éviter le "focusing effect". C'est particulièrement le cas pour les réacteurs à plus forte puissance où cette approche enveloppe peut devenir problématique. En effet, la quantité d'acier fondu en fond de cuve varie au cours du transitoire et les hypothèses de découplage dans une approche stationnaire enveloppe sont difficilement justifiables. Par conséquent, il est nécessaire d'étudier et de prendre en compte les phénomènes observés en transitoire notamment la thermochimie qui devient très importante.

1.3.2 Phénomènes de thermochimie : Stratification

Lors d'un accident grave, la thermochimie joue à plusieurs niveaux mais dans l'étude du comportement du corium en cuve, on s'intéresse particulièrement au phénomène de premier ordre : la stratification. Le corium étant multicomposant, il est souvent modélisé avec le système $(U_y, Zr_{1-y})O_{2-x}$ et d'éléments majoritaires (Fe, Ni, Cr). Du point de vue thermodynamique, ce système U-O-Zr-acier présente une lacune de miscibilité à l'état liquide en condition d'équilibre de telle sorte que deux phases (une oxyde et une métallique) coexistent.

Du point de vue expérimental, le programme MASCA [4] a fait l'étude et la caractérisation de la stratification des phases liquides dans un bain de corium en cuve. Les deux phases (oxyde et métal) ont des masses volumiques différentes et ont tendance à se stratifier sous l'action de la gravité. La répartition de ces couches dépend de certains paramètres [48] tels que

- la température T du système,
- le ratio molaire U/Zr ($R_{U/Zr}$),
- le degré d'oxydation de Zr (Cn),
- le rapport de masse entre l'acier et le corium oxyde présent dans le système.

Pour des température, ratio molaire U/Zr et degré d'oxydation Cn fixés, la ségrégation des couches est conditionnée uniquement par le rapport de masse d'acier présent dans le

système. Suivant l'inventaire des éléments en présence, la couche oxyde peut être plus lourde ou plus légère que la phase métallique. À titre d'exemple, la Figure 1.4 illustre la variation de la masse volumique des deux phases liquides en fonction de la masse d'acier dans le système qui est toujours loin de l'équilibre thermodynamique. Deux types de stratification peuvent apparaître selon la quantité d'acier ajoutée au système :

- une couche oxyde au dessus d'une couche métallique : si la quantité d'acier versée x_{steel} est inférieure à la quantité seuil d'inversion x_{seuil} qui correspond à l'intersection des deux courbes de variation des deux phases en Figure 1.4 et
- une couche métallique au dessus d'une couche oxyde : si la quantité d'acier dépasse la quantité seuil d'inversion x_{seuil} .

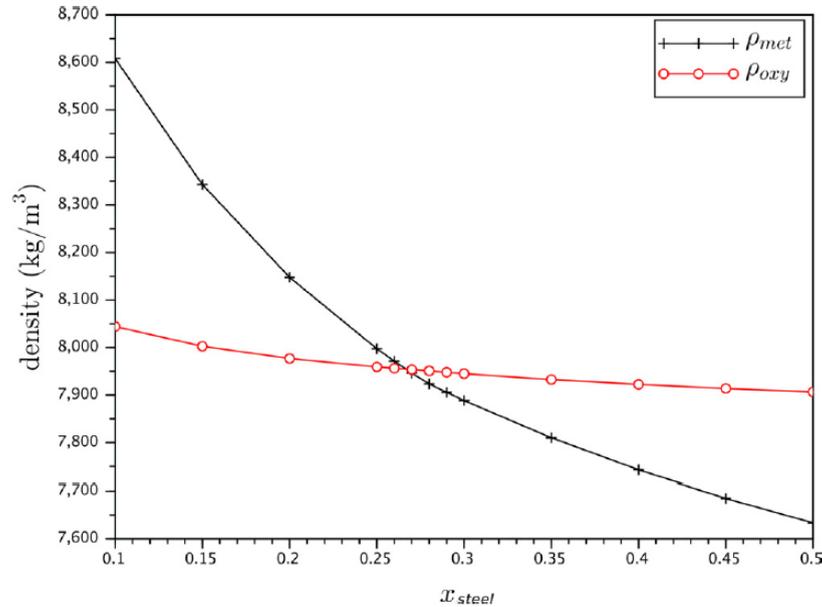


FIGURE 1.4 : Masse volumique des phases en fonction de la quantité d'acier x_{steel} ($T=3000K$, $C_n=32\%$, $R_{U/Zr}=1.2$), représentative de l'essai MASCA-RCW [4].

Pendant le transitoire accidentel en fond de cuve, de l'acier fondu issu de l'ablation des structures internes et de la paroi de la cuve vient s'ajouter progressivement au mélange. Suivant la cinétique d'apport d'acier fondu dans le système, on peut, par conséquent, s'attendre à deux transitoires de stratification [49, 50] qui se succéderont : une première phase de formation d'une couche métallique lourde et une seconde phase transitoire d'inversion de stratification par la remontée du métal lourd à la surface. Ces deux transitoires sont illustrés par la Figure 1.5.

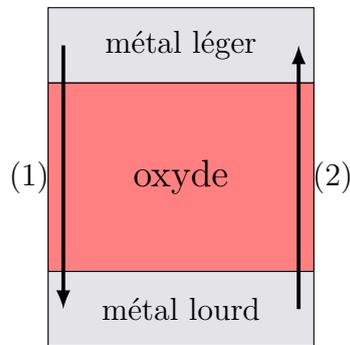


FIGURE 1.5 : Schéma illustratif des transitoires de stratification : (1) formation du métal lourd, (2) remontée du métal lourd à la surface.

1.4 Transitoire de stratification

Cette thèse porte principalement sur les deux transitoires de stratification. Dans cette section, nous discutons plus en détail dans un premier temps de la formation du métal lourd puis dans un second temps de la remontée du métal lourd à la surface.

1.4.1 Formation d'une couche métallique lourde

La première phase du transitoire de stratification est la formation d'une couche métallique lourde lorsque la quantité d'acier fondu ajoutée dans le système est inférieure à la quantité seuil d'inversion. L'ajout progressif d'acier fondu entraîne un transfert de masse à son interface avec le bain oxyde. Autrement dit, le système cherche à trouver un état d'équilibre thermodynamique en échangeant U et Zr avec l'acier. Ce transfert d'éléments métalliques à l'interface s'accompagne de phénomènes d'oxydo-réduction de telle sorte que la stœchiométrie en oxygène du bain oxyde augmente au cours de ce transitoire.

Dans cette phase de formation d'une couche métallique lourde, le système étudié est hors équilibre thermodynamique et le processus de diffusion en transitoire de stratification est complexe dans ce système. Lorsque l'acier x_{steel} ajouté au système reste en dessous de la quantité seuil d'inversion x_{seuil} , la phase métallique plus dense se trouve momentanément au dessus de la phase oxyde plus légère. Cette situation conduit à l'apparition d'une instabilité de type Rayleigh–Taylor (RT) au niveau de l'interface oxyde-métal. Ce type d'instabilité caractérisée par une déformation de l'interface apparaît lorsque deux fluides non miscibles sont placés l'un en dessous de l'autre (le fluide du haut étant plus dense que le fluide du bas). Des globules métalliques se forment, viennent se détacher de l'interface

puis coulent progressivement au fond de cuve [51]. L'ensemble de ces phénomènes couplés (transfert de masse inter et intra-phase, instabilité de RT suivi d'un détachement de gouttelettes métalliques,...) conduit à la formation d'une couche métallique lourde en dessous de la phase oxyde. De ce fait, la configuration initiale à deux couches devient dans cette phase transitoire à trois couches composées d'une couche oxyde au milieu de deux couches métalliques comme le montre la Figure 1.6.

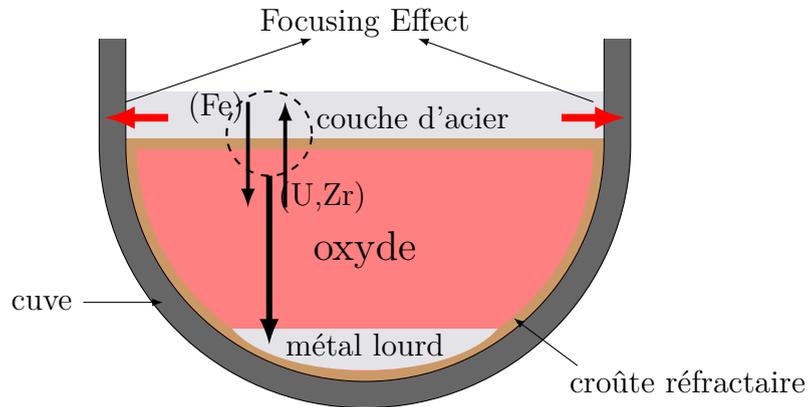


FIGURE 1.6 : Formation de la couche métallique lourde.

Ce mécanisme de formation du métal lourd avec une configuration à 3 couches a été observé dans l'essai MASCA-RCW [4] à moyenne échelle où environ 45 kg de corium sous-oxydé ont été mis en contact avec environ 5 kg d'acier. Il s'agit du seul et unique essai expérimental où l'on a pu observer cette partie du transitoire de stratification. Sur la coupe du lingot post-mortem représenté sur la Figure 1.7, on peut observer la présence de deux phases métalliques dont une légère au-dessus du bain oxyde et une lourde en dessous de la phase oxyde, provenant des gouttelettes de métal enrichies en U et Zr qui se sont détachées par instabilité de RT. L'instabilité de RT se fait sur des temps de l'ordre de la seconde, courts comparés au temps de diffusion de U et de Zr dans la phase métallique [52]. Dans le cas des réacteurs, le temps caractéristique associé à cette première phase du transitoire de stratification est de l'ordre de l'heure.

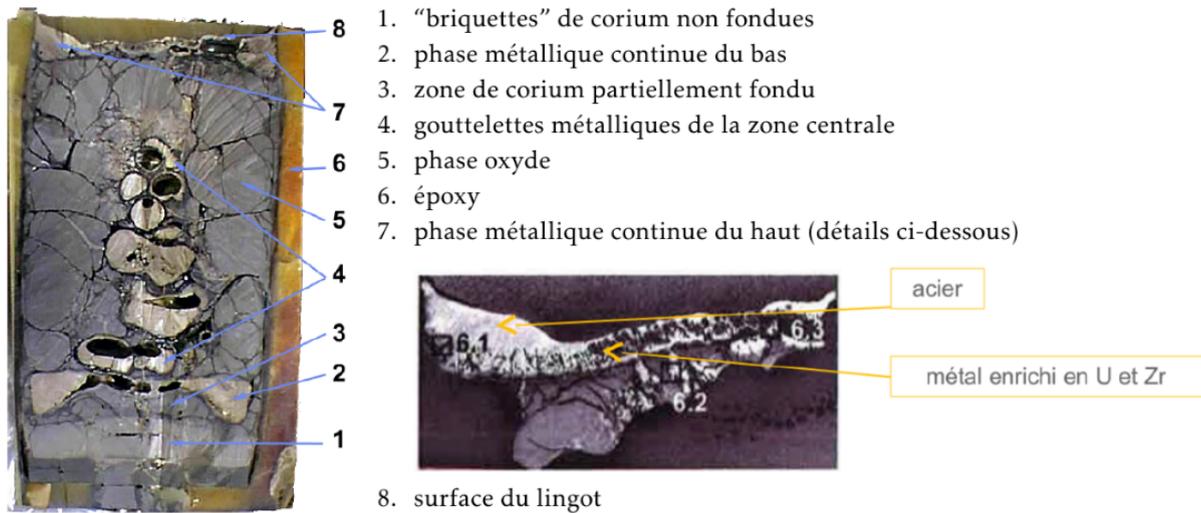


FIGURE 1.7 : Etat post-mortem de l'essai MASCA-RCW. Figure adaptée de [4].

1.4.2 Remontée du métal lourd

Lorsque la quantité d'acier relocalisé dans le fond de cuve dépasse le seuil d'inversion x_{seuil} , la phase métallique à l'équilibre thermodynamique devient plus légère comme l'illustre la Figure 1.4. Le métal lourd remonte au-dessus de la phase oxyde du fait que la couche métallique devient moins dense que la couche oxyde. C'est l'inversion de stratification. Dans une configuration à trois couches, cette remontée du métal lourd vers la surface concerne deux interfaces : une interface qui sépare la couche d'acier supérieur du bain oxyde et une autre qui sépare le bain oxyde de la couche métallique lourde. À l'interface entre le bain oxyde et la couche métallique lourde, un transfert d'U et Zr depuis la couche métallique lourde s'opère jusqu'à conduire à une inversion des masses volumiques tandis qu'à l'interface supérieure du bain d'oxyde, un transfert d'U et Zr plus limité vers la couche métallique s'opère également sans conduire à une inversion de masse volumique. Ensuite, par instabilité de RT, la phase métallique inférieure va remonter et vient s'ajouter à la couche métallique légère. La configuration à 3 couches redevient une configuration à 2 couches avec un bain oxyde au fond et une couche métallique légère au dessus comme illustré en Figure 1.8. Cette remontée du métal lourd à très haute température (\sim à celle du bain oxyde) vers la surface peut présenter un risque de percement de la cuve de par l'apport associé important d'énergie à la couche de métal léger qui doit être dissipé et qui peut amener à une augmentation transitoire mais significative du flux de chaleur imposé à la cuve.

Il faut noter qu'aucun essai expérimental n'a été réalisé pour caractériser ce transitoire de remontée du métal lourd, contrairement à la formation de la couche métallique lourde. Ces analyses sont obtenues à partir des modèles intégraux¹² qui servent au calcul complet de la séquence accidentelle relative à la rétention du corium en cuve mais avec des hypothèses qui varient selon les auteurs [53, 54]. Dans tous les cas, ces modèles sont encore en manque de validation et de calage faute de données expérimentales. Dans le cas des réacteurs, le temps caractéristique de cette deuxième étape du transitoire de stratification est évalué à quelques heures.

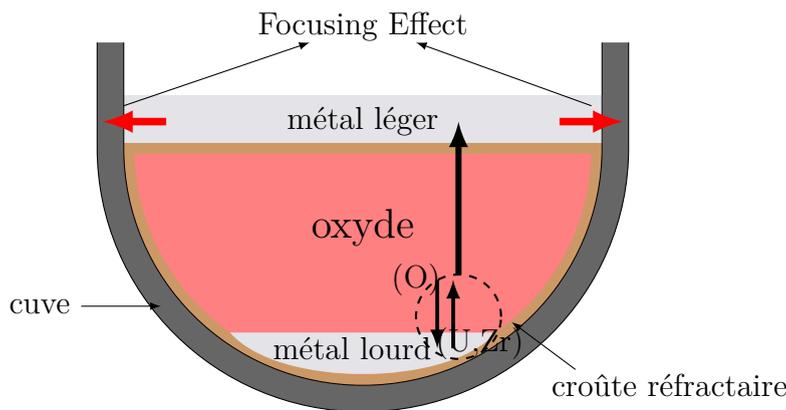


FIGURE 1.8 : Remontée du métal lourd.

Selon la quantité d'acier fondu relocalisé dans la cuve, on peut s'attendre à au moins un de ces deux transitoires de stratification d'où l'importance de les étudier plus en détail à l'aide de la simulation numérique d'écoulement multiphasique ou approche CFD (Computational Fluid Dynamics) afin de caractériser par une modélisation détaillée les phénomènes observés aux interfaces entre les différentes phases. Cette approche par simulation numérique est complémentaire d'investigation expérimentales supplémentaires, étudiées dans le cadre du projet d'un nouveau dispositif d'essai. Celui-ci reprendrait les grandes lignes de l'essai MASCA-RCW en ajoutant une instrumentation permettant d'avoir en ligne des informations sur la répartition spatiale des phases [55]. Cette approche par modélisation fine va de pair avec le développement de modèles intégraux plus détaillés dans [56] et doit permettre la "remontée d'échelle" pour obtenir et améliorer la fermeture de ces modèles macroscopiques.

12. La simulation de l'ensemble de l'accident grave dans le réacteur se fait en utilisant des codes qui sont généralement composés de modules ou composants couplés entre eux pour représenter certains phénomènes physiques de l'accident grave. Dans ce cadre, les modèles sont souvent des modèles intégraux (appelés parfois modèle 0D).

1.5 Vers une modélisation fine du transitoire de stratification

Dans l’objectif de modéliser le transitoire de stratification du corium en cuve, plusieurs méthodes permettent de caractériser les grands phénomènes rencontrés à l’interface dans un bain de corium en cuve parmi lesquelles la méthode du champ de phase basée sur l’approche à interface diffuse. Nous discutons plus en détail de cette méthode et les raisons de ce choix parmi d’autres méthodes existantes dans le prochain chapitre. Dans cette section introductive, nous nous limitons à la présentation de ce qui a été fait et la méthode utilisée dans le cadre de la modélisation du corium en cuve en phase transitoire. Dans un premier temps, nous discutons des travaux effectués dans le cadre de la modélisation du transitoire de stratification du corium en cuve, en particulier la diffusion multicomposant multiphasique. Puis, dans un second temps, nous abordons les objectifs de cette thèse au vu des travaux antérieurs pour aller vers une modélisation détaillée de ce transitoire de stratification.

1.5.1 Travaux antérieurs

Un premier travail a été initié par C. Cardon [57] dans le cadre de sa thèse (2013-2016) sur la diffusion multicomposant multiphasique en utilisant la méthode du champ de phase de type Cahn–Hilliard¹³ [58] développée dans la plateforme PROCOR¹⁴ [59]. Le corium étant multicomposant, ses travaux étaient orientées vers la modélisation de la diffusion des espèces à l’interface oxyde/métal en utilisant les données d’une base thermodynamique sans considérer la partie hydrodynamique.

Le système représentatif du corium en cuve est $\{\text{U-O-Zr-Fe}(\text{acier})\}$. Dans ses travaux, C. Cardon est passé d’abord par le système binaire U-O [49] puis par le système ternaire U-O-Zr pour arriver finalement à un modèle général appliqué au système quaternaire U-O-Zr-Fe tout en restant dans une configuration isotherme. Tous ces systèmes présentent une lacune de miscibilité à l’état liquide comme le système U-O-Zr-acier d’intérêt pour le corium en cuve. Ce travail de C. Cardon a été un premier pas vers la modélisation “fine” envisagée. Ainsi, la diffusion multicomposant multiphasique a pu être modélisée pour ces systèmes par

13. Le modèle de Cahn–Hilliard est un des modèles dans la méthode du champ de phase. Des détails sur ce modèle est disponible dans le chapitre 2 de ce manuscrit.

14. PROCOR ou PROpagation de CORium est une plateforme logicielle développée au CEA pour l’étude de la propagation du corium dans le cadre scénario des accidents graves des réacteurs nucléaires.

un modèle de Cahn–Hilliard qui prend en compte un élargissement de l’interface diffuse de manière à le rendre compatible avec des simulations à l’échelle mésoscopique (autrement dit, l’interface est bien plus grande que son épaisseur physique nanométrique). Dans le travail de C. Cardon [57], le paramétrage d’un tel modèle pour un système $n > 2$ -aire a suscité des questions qui n’étaient pas complètement résolues. De ce fait, l’effet d’adsorption inhérent à ces systèmes peut conduire à des profils de compositions non-monotones au travers de l’interface. Si ce phénomène est physique à l’échelle de l’interface nanométrique, il devient problématique pour des interfaces mésoscopiques puisqu’il peut conduire à des profils de masse volumique non monotones qui modifieraient le comportement hydrodynamique du bain de corium et son interface.

Faisant suite à ces travaux de modélisation de la diffusion multicomposant à l’interface, R. Zanella [7, 51], dans le cadre de son post-doc (2018-2020), a initié le couplage du modèle du champ de phase (en se limitant au cas binaire) avec l’hydrodynamique dans une configuration isotherme en utilisant un code pseudo-spectral. Ce travail avait pour objectif au travers des simulations de l’instabilité de Rayleigh–Taylor de montrer la faisabilité d’un tel couplage pour la résolution d’un problème couplé de transfert de masse et d’hydrodynamique. Des premières simulations en considérant un système pseudo-binaire Fe-(U,Zr,O) avec un potentiel thermodynamique analytique ont permis de décrire le transitoire de formation d’un métal lourd et de démontrer “qualitativement” ce transitoire de stratification. Cependant, les résultats de cette étude restent insuffisants pour la caractérisation du transitoire de stratification à la manière de l’essai MASCA-RCW [4]. Pour aller vers des simulations quantitatives, il est nécessaire de représenter le corium dans un système plus que binaire, idéalement quaternaire composé de U-O-Zr-Fe, pour pouvoir quantifier et caractériser les phénomènes couplés en transitoire de stratification du bain de corium.

1.5.2 Objectifs de cette thèse

La présente thèse est dans l’optique de poursuivre les travaux de C. Cardon [57] sur la modélisation de la diffusion multicomposant et de R. Zanella [7, 51] sur le couplage du modèle avec l’hydrodynamique afin de mieux caractériser les phénomènes observés en transitoire de stratification. Le premier objectif de cette thèse est d’apporter des éléments de réponses aux questions qui restaient en suspens dans la thèse de C. Cardon sur la compréhension du modèle $n > 2$ -aire, sur les effets des paramètres du modèle de champ de phase vis-à-vis des profils de composition et du comportement de l’interface

dans un système ternaire. La présence d'une non-monotonie du profil d'interface et l'effet d'adsorption peuvent présenter un obstacle pour notre modélisation fine. Un bon choix des valeurs des paramètres du modèle est nécessaire et constitue un des critères importants pour satisfaire la monotonie des profils. D'où l'importance de répondre, dans un premier temps, à ces questions en suspens au travers d'une optimisation des paramètres pour mieux comprendre le système $n > 2$ -aire avant de passer au couplage d'un tel système $n > 2$ -aire avec l'hydrodynamique par la CFD.

Dans un second temps, tout en restant dans la configuration isotherme, il est important de traiter le couplage des équations relatives au transfert de masse et à l'hydrodynamique dans un système multicomposant. Pour le corium, l'étude dans un système quaternaire U-O-Zr-Fe est indispensable afin d'obtenir des simulations quantitatives et représentatives du transitoire de stratification. Pour ce faire, un modèle de type Cahn–Hilliard limité au cas binaire est disponible dans l'outil `TrioCFD`¹⁵ [19, 20]. Dans cette thèse, un des objectifs est d'étendre le modèle binaire existant dans `TrioCFD` vers un modèle permettant de résoudre le système $n > 2$ -aire et de le coupler avec les équations de l'hydrodynamique. L'extension du modèle vers $n > 2$ -aire permettra d'une part, de lever les hypothèses pseudo-binaire utilisées dans le travail de R. Zanella [51] et d'autre part, d'apporter des améliorations au modèle du champ de phase de l'outil `TrioCFD` afin de caractériser de manière quantitative les phénomènes couplés d'hydrodynamique et de transfert de masse, au-delà de l'application industrielle nucléaire. Ceci est dans le but de considérer le caractère multicomposant du corium et de construire un modèle “complet” dans une configuration isotherme capable de prendre en compte les phénomènes thermo-chimique et hydrodynamique observés en transitoire de stratification.

15. `TrioCFD` est un code de calcul CFD développé au CEA pour simuler différents types d'écoulements dont les écoulements multiphasiques.

Le corium en cuve est composé de deux phases liquides immiscibles bien distinctes séparées par une interface à travers laquelle des phénomènes thermo-chimiques et hydrodynamiques sont observés en transitoire de stratification. La modélisation détaillée par le biais de la simulation numérique d'écoulements multiphasiques permet de caractériser en détail ces phénomènes. À cet égard, dans ce chapitre, nous présentons dans un premier temps le principe de modélisation des interfaces en proposant un panorama large et non-exhaustif des modèles numériques de traitement d'interface communément utilisés dans les écoulements multiphasiques en discutant de leur adéquation avec la modélisation du corium. Ensuite, nous présentons le choix de la méthode du champ de phase retenue pour ce travail en particulier le modèle de Cahn–Hilliard. Enfin, nous discutons plus en détail de ce modèle dans un premier temps dans le cas binaire, puis dans le cas multicomposant avant de présenter brièvement dans la dernière partie de ce chapitre son couplage avec l'hydrodynamique.

2.1 Modélisation des interfaces

Les écoulements multifluides multiphasiques regroupent tous les écoulements qui font intervenir plusieurs fluides et/ou phases séparés par une interface à travers laquelle les propriétés physiques des fluides changent fortement. Dans la littérature, il existe plusieurs modèles pour traiter cette interface suivant le type d'écoulement étudié et la précision de calcul souhaitée. Dans le cas des écoulements diphasiques (à deux phases), selon la manière

de décomposer le domaine des phases et le nombre d'ensembles d'équations mis en jeu pour décrire le système, on peut distinguer deux approches différentes pour modéliser les fluides :

- **le modèle à deux fluides ou “two-fluid model”** où l'on considère que le domaine est composé de deux phases distinctes modélisées séparément. Autrement dit, chaque phase est traitée séparément avec un ensemble d'équations de bilan (masse, quantité de mouvement et énergie) différent. Des conditions de saut sont utilisées à l'interface entre les deux fluides pour assurer le couplage des solutions de ces deux ensembles d'équations. Ce modèle a l'avantage de pouvoir décrire chacun des fluides avec ses propres vitesses et pressions. Ainsi, cela permet éventuellement de tenir compte des déséquilibres locaux [60]. Pour l'application de cette thèse où la dynamique est somme toute lente, l'équilibre local à l'interface sera supposé. En conséquence, étant donné la complexité et le coût supplémentaire d'un tel modèle, cette approche n'est pas pertinente dans notre cas.
- **le modèle à un fluide ou “one-fluid model”**, contrairement au modèle à deux fluides, un seul ensemble d'équations de bilan (masse, quantité de mouvement et énergie) avec un terme supplémentaire (de tension de surface en l'occurrence) pour prendre en compte les interactions entre les deux fluides est suffisant pour décrire l'ensemble du domaine d'écoulement. Les différentes phases sont traitées comme un seul fluide avec des propriétés physiques qui varient selon les phases. Comparé au modèle à deux fluides, celui à un fluide est plus simple et moins coûteux en termes de calculs.

Au vu de la nature de notre problème et de l'échelle de modélisation souhaitée (en se plaçant dans un cadre où l'on considère une résolution spatiale suffisamment fine pour qu'il n'y ait pas de phase dispersée intra-maille), dans ce manuscrit, nous nous intéressons particulièrement au modèle à un fluide. Cela s'adapte bien à notre problématique du corium en cuve car il prend en considération l'équilibre local (pression, vitesse, ...) dans les mailles où coexistent plusieurs phases. Un ensemble d'équations différentielles de Navier–Stokes similaires à celles de l'écoulement monophasique suffit pour décrire l'ensemble du système. Selon les techniques de description de l'interface dans le domaine fluide, on peut classer le modèle “one-fluid” en deux grandes approches : les méthodes de suivi d'interface et de capture d'interface (voir Figure 2.1).

2.1.1 Les méthodes de suivi d'interface ou "interface-tracking"

Les méthodes de suivi d'interface consistent à suivre explicitement l'interface discrétisée dans un maillage lagrangien. Elles se basent sur l'utilisation des marqueurs lagrangiens transportés par l'écoulement pour définir l'interface. Cela permet de déterminer avec précision la position exacte et la forme prise par l'interface. La méthode de Front Tracking (FT) est l'une des méthodes de suivi d'interface les plus connues. Elle a été introduite par Unverdi et Tryggvason [61] en 1992 pour traiter les écoulements multifluides incompressibles et visqueux. Dans cette méthode, deux types de maillage sont utilisés : un maillage eulérien discrétisant le domaine de calcul sur lequel les équations de bilan (masse, quantité de mouvement et énergie) sont résolues et un maillage lagrangien discrétisant l'interface ou le "front" (d'où le nom Front Tracking) représenté par un ensemble de marqueurs interconnectés permettant le suivi de l'interface. L'interaction entre les deux maillages se manifeste en particulier par la position du front sur la grille fixe et par le champ de vitesse eulérien pour le déplacement des marqueurs.

L'avantage de la méthode de FT est sa précision au sens du suivi de l'interface et sa robustesse pour les écoulements à surface libre avec ou sans changement de phases [62]. Elle est aussi bien adaptée aux fluides compressible qu'incompressible. Cependant, ce type de méthode peut être problématique pour les écoulements à grandes déformations et déplacements importants car la gestion du maillage est complexe et la conservation de la masse est difficile à satisfaire en grandes déformations. La variation de topologie est difficile à caractériser selon le schéma numérique utilisé car elle entraîne généralement une déformation du maillage qui nécessite une mise à jour par remaillage dynamique au fur et à mesure de l'évolution de l'écoulement.

2.1.2 Les méthodes de capture d'interface ou "interface-capturing"

Les méthodes dites de capture d'interface consistent à capturer l'interface sans la suivre explicitement. Elles se basent sur un domaine spatial fixe dans lequel se trouve l'interface considérée comme un champ scalaire qui sera, par la suite, transportée par le champ de vitesse grâce à une équation d'advection. Contrairement aux méthodes de suivi d'interface, elles sont bien adaptées aux problèmes à grandes déformations et grands déplacements mais ne permettent pas de connaître explicitement la position et la forme de l'interface.

Dans les méthodes de capture d'interface, on peut citer la méthode Volume Of Fluid [63], la méthode Level-Set [64] et la méthode du champ de phase [58].

2.1.2.1 Volume Of Fluid (VOF)

La méthode VOF a été introduite par Hirt et Nichols [63] en 1981 pour traiter la dynamique des problèmes à frontière libre. Elle se base sur l'utilisation d'une fonction C qui quantifie le volume occupé par l'un des fluides dans une maille. En d'autres termes, pour un point \vec{x} du domaine composé de deux fluides A et B, la fonction C s'écrit :

$$C(\vec{x}) = \begin{cases} 1 & \text{dans } A \\ 0 & \text{dans } B \\ \frac{v_M^A}{v_M} & \text{sinon} \end{cases} \quad (2.1)$$

avec v_M^A et v_M sont respectivement le volume de la maille et le volume de liquide A présent dans cette même maille. L'évolution de $C(\vec{x})$ est modélisée par l'équation de transport :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{u}C) = 0 \quad (2.2)$$

où \mathbf{u} est la vitesse d'advection du fluide. Il faut souligner que l'Eq. 2.2 n'est valide que pour des fluides incompressibles et sans transfert de masse. Dans le cas contraire, des termes sources doivent y être ajoutées. Les autres propriétés du fluide telles que la masse volumique et la viscosité sont définies en faisant une moyenne pondérée au prorata de C .

Lorsque C prend une valeur comprise entre 0 et 1, cela signifie que deux liquides sont présentes dans la maille telle que la proportion de l'un d'eux est donnée par C . Cette méthode peut être sujet à des parasites importants inhérents au maillage et au schéma numérique de résolution utilisé en particulier la diffusion numérique et l'étalement de la zone diphasique d'interface. Afin de prévenir cette diffusion numérique et d'avoir plus de précision, il est souvent proposé dans la littérature de reconstruire l'interface à partir de la méthode de type SLIC (*Simple Linear Interface Calculation*) [65] ou PLIC (*Piecewise Linear Interface Calculation*) [66, 67]. Pour plus de détails sur ces variantes, on peut se référer à [65, 66].

Dans tous les cas, la méthode VOF garantit la conservation de masse et est plus simple à implémenter que les méthodes de suivi d'interface, en particulier pour les écoulements de fluides immiscibles et à surface libre [68]. Néanmoins, l'extension de la méthode en 3D

n'est pas évidente avec une possible apparition de diffusion numérique assez importante sur certains schémas notamment pour la méthode VOF sans reconstruction.

2.1.2.2 Level Set (LS)

La méthode LS initiée par Osher et Sethian [64] en 1988 et étendue par Sussman *et al.* [69] en 1994 repose sur l'introduction d'une fonction continue level set ϕ caractérisant la distance à l'interface. Dans cette méthode, l'interface est définie de manière implicite et correspond à $\phi = 0$. L'équation de transport de ϕ est donnée par :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{u}\phi) = 0 \quad (2.3)$$

où \mathbf{u} est la vitesse d'advection. L'Eq. 2.3 n'est valide que pour des fluides incompressibles et sans transfert de masse. Dans le cas contraire, des termes sources doivent être ajoutées.

La méthode LS est généralement utilisée dans le traitement de l'interface dans les écoulements incompressibles immiscibles avec ou sans transfert de masse [70, 71] car elle est, conceptuellement, plus simple et facile à implémenter. Cependant, dans sa formulation classique, elle ne conserve pas forcément la masse due à la présence d'erreurs numériques dissipatives entraînant des pertes de masse [69] et cela pose problème pour certains écoulements.

2.1.2.3 Champ de phase

La méthode du champ de phase ou "Phase field" trouve son origine dans la thermodynamique hors équilibre et la théorie de Landau des transition des phases [72] avant d'être étendue, par la suite, aux sciences des matériaux [73, 74], à la biomécanique [75], au traitement d'image [76], aux écoulements multiphasiques [7, 77–79] et récemment à l'intelligence artificielle [80]. Elle se base sur la description locale de la matière au travers d'un paramètre d'ordre. Celui-ci prend deux valeurs différentes dans chacune des phases et varie continûment dans la zone d'interface d'épaisseur ε . Pour un écoulement diphasique, le système est décrit dans cette méthode par une fonctionnelle d'énergie qui est fonction d'une énergie libre ayant deux minima correspondant aux points d'équilibre thermodynamiques du système. La consistance avec la thermodynamique est garantie, c'est une des raisons pour lesquelles elle est principalement utilisée en science des matériaux pour décrire l'évolution des microstructures lors d'un changement de phase [81]. Cette méthode a également l'avantage d'assurer la conservation de la masse, d'être compatible

avec l'hydrodynamique à l'échelle mésoscopique, facilement extensible en 3D et adaptée aux systèmes thermodynamiques complexes [77, 82, 83].

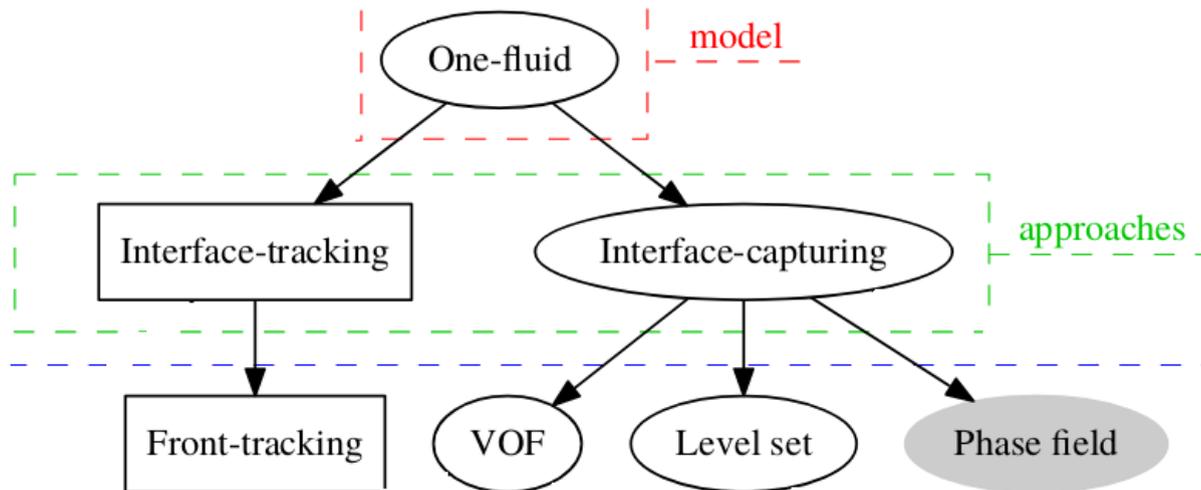


FIGURE 2.1 : Différentes méthodes numériques de traitement de l'interface pour les écoulements diphasiques. Le fond gris indique les modèles à interface diffuse et le fond blanc ceux à interface raide. Figure adaptée de [5].

Chacune de ces méthodes a ses avantages et ses inconvénients selon le type de problème à résoudre. Les méthodes de suivi d'interface s'avèrent plus précises mais complexe à implémenter car elles peuvent nécessiter une reconstruction et une mise à jour du maillage entraînant un coût de calcul élevé. Par contre, les méthodes de capture d'interface sont plus facile à implémenter mais peuvent présenter, dans certains cas, une précision moindre que celles de suivi d'interface.

2.1.3 Interface raide *vs* interface diffuse

Au delà des approches de suivi d'interface et de capture d'interface, il existe une autre classification des modèles selon que l'interface possède une épaisseur ou non. On distingue :

- *le modèle à interface raide ("sharp interface")* qui repose sur la description discontinue des quantités physiques dans la zone qui sépare les deux fluides. Ce modèle représente les interfaces comme des limites raides entre différentes phases ou matériaux en supposant un changement abrupt des propriétés à travers l'interface. À l'échelle macroscopique, l'interface peut apparaître raide et il n'y a pas de notion d'épaisseur d'interface. Les méthodes FT, VOF avec reconstruction et LS sont à interface raide.

- le modèle à interface diffuse (*“diffuse interface”*) qui repose sur la description continue du système à l’échelle microscopique avec une interface décrite comme une couche ayant une épaisseur ε suivant l’illustration à la Figure 2.2. Ce modèle représente les interfaces comme des zones de transition avec des variations régulières des propriétés. L’idée de base remonte à Van der Waals [84] qui a proposé qu’une fonction varie continûment dans l’interface et qu’elle prenne des valeurs constantes loin de l’interface. Ce modèle à interface diffuse est souvent utilisé lorsqu’il existe des interactions complexes entre les phases, comme dans les écoulements multiphasiques, le transfert de masse ou la diffusion des matériaux. Le champ de phase fait partie de ces modèles à interface diffuse.

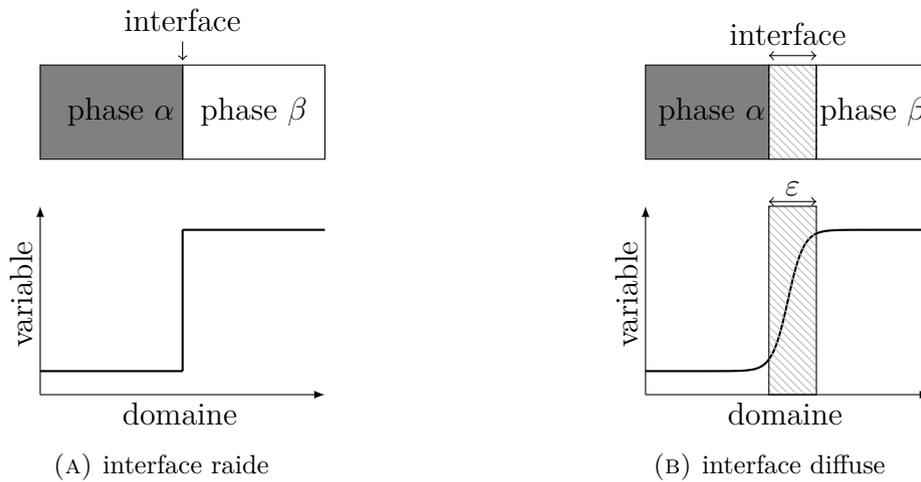


FIGURE 2.2 : Représentation schématique des modèles à interface raide et à interface diffuse dans un domaine contenant deux phases α et β .

2.1.4 Choix de la méthode

L’étude du transitoire de stratification du corium en cuve est complexe de par sa particularité où suivant l’apport d’acier au système, le transfert de masse entre ses deux phases liquides immiscibles induit une modification de leur masse volumique entraînant des instabilités hydrodynamiques type Rayleigh–Taylor (RT) au niveau de l’interface. Bien que la stratification de deux liquides non miscibles soit un phénomène connu, le couplage entre les échanges de masse à travers la diffusion multicomposant (thermochimie) et l’écoulement (convection naturelle et stratification) reste un processus délicat à modéliser. La méthode utilisée devrait être capable de traiter ces deux grands phénomènes.

Parmi les différentes méthodes susmentionnées, le choix de la méthode utilisée dans ce manuscrit est porté sur la méthode du champ de phase afin de décrire le comportement transitoire de stratification du corium en cuve. Sa consistance avec la thermodynamique est un grand atout étant donné que la méthode du champ de phase est basée sur la thermodynamique [85, 86]. Elle a déjà fait sa preuve d'efficacité dans la simulation de la diffusion multicomposant à l'interface [87, 88] et dans la simulation des verres nucléaires [78, 89]. Faisant suite aux travaux de thèse précédente de C. Cardon [57], cette approche a permis de bien caractériser les phénomènes thermo-chimiques avec une méthode de capture d'interface et à interface diffuse, plus simple numériquement par rapport au modèle à interface raide et à la vision lagrangienne qui nécessite un suivi explicite de l'interface. Ainsi, le couplage de cette méthode avec la CFD est direct [90–92] dans le cadre du modèle “one-fluid” qui est bien adapté à notre problématique de séparation de phases. Par exemple, la méthode du champ de phase est utilisée pour comprendre le mécanisme de séparation de phase induite par le transfert de masse accompagné d'une variation de masse volumique dans un système ternaire dans [93]. Cette séparation de phase est fortement liée à la thermodynamique au travers du diagramme de phase et cette étude montre la capacité d'une telle méthode à résoudre des problèmes couplant transfert de masse et hydrodynamique. Pour notre cas du corium en cuve, ce choix est appuyé par les travaux de R. Zanella [7, 51] qui confirment au travers des simulations du corium pseudo-binaire sa compatibilité avec l'hydrodynamique. Pour toutes ces raisons et au vu de la nature de notre problème et de la littérature, la méthode du champ de phase s'avère un bon candidat pour la simulation du problème de transitoire de stratification.

2.2 La méthode du champ de phase

Cette section est consacrée à la présentation de la méthode du champ de phase, les équations associées et les différents paramètres physiques nécessaires à la compréhension de ce manuscrit de thèse. Pour cela, nous présentons dans un premier temps une description générale de la méthode du champ de phase avec les principes fondamentaux. Puis dans un second temps, nous discutons de son utilisation dans un contexte exclusivement transfert de masse avant de parler du couplage du modèle avec l'hydrodynamique.

2.2.1 Description générale

Historiquement, la méthode du champ de phase trouve son origine dans la théorie de Landau des transitions des phases qui se base sur la thermodynamique hors équilibre [72]. Les transitions de phases sont des phénomènes par lesquels des changements qualitatifs et quantitatifs des propriétés macroscopiques de la matière sont observés lorsqu'on varie un paramètre de contrôle du système. La première équation d'état représentant une transition de phase a été proposée par Van der Waals en 1873. Pour décrire les transitions de phase, Landau a introduit en 1937 la notion de paramètre d'ordre noté ϕ dans sa théorie phénoménologique des transitions de phase ordre-désordre [72] afin d'écrire l'énergie libre du système.

Dans sa théorie, Landau propose de développer l'énergie du système comme une fonction polynomiale du paramètre d'ordre ϕ et de la température T pour décrire les transitions de phases mais cette description se limite aux transitions de phases dites du second ordre¹. Par la suite, en 1949, Devonshire [94] a étendu cette théorie de Landau pour décrire les transitions de phases du premier ordre². Cependant, ces théories ne prennent pas en compte les variations spatiales qui existent en permanence au travers des mouvements locaux des molécules. Pour un système présentant des inhomogénéités spatiales du paramètre d'ordre, la théorie de Landau a été étendue à Ginzburg-Landau telle que la description du système est obtenue à partir de la fonctionnelle d'énergie libre de Ginzburg-Landau \mathbb{F}

$$\mathbb{F}[\phi] = \int_V \mathcal{F}(\phi, \nabla\phi, T) dV \quad (2.4)$$

avec

$$\mathcal{F}(\phi, \nabla\phi, T) = F_H(\phi, T) + \frac{\kappa}{2} \|\nabla\phi\|^2 \quad (2.5)$$

Le premier terme représente l'énergie de volume ("bulk energy" en anglais) comprenant la densité d'énergie libre homogène F_H exprimée en J.m^{-3} . À température constante et pression constante (resp. à volume constant), cette énergie libre correspond à l'énergie

1. La transition de phase est du second ordre lorsque le paramètre d'ordre reste continu au passage de la transition de phases et il n'y a pas de dégagement de chaleur latente

2. La transition de phase est du premier ordre lorsque le paramètre d'ordre est discontinu à la transition de phases avec libération de chaleur latente

libre de Gibbs (resp. de Helmholtz) [95]. Dans ce manuscrit, nous nous limitons au cas isotherme *i.e.* l'énergie libre considéré est celle de Gibbs.

Le deuxième terme $\frac{\kappa}{2} \|\nabla\phi\|^2$ est l'énergie de gradient qui représente la pénalisation énergétique associée à la création d'interface avec κ un coefficient positif appelé coefficient de gradient.

Dans la littérature, la densité d'énergie libre de Ginzburg-Landau en Eq. 2.5 est parfois écrite comme

$$\mathcal{F}(\phi, \nabla\phi, T) = \tilde{f}(\phi, T) + \frac{\kappa^*}{2} \|\nabla\phi\|^2 \quad (2.6)$$

avec $\tilde{f} = \lambda F_H$, $\kappa^* = \frac{\kappa}{\lambda}$ et λ un paramètre constant positif. Nous discutons ultérieurement de l'intérêt de cette écriture en Section 2.2.2.3.3.

Dans la suite, nous discutons dans un premier temps du système binaire où un seul paramètre d'ordre est considéré avant de développer le cas multicomposant qui fait intervenir plusieurs paramètres d'ordre.

2.2.2 Cas d'un système binaire

Dans toute la section, nous considérons le cas d'un système présentant un seul paramètre d'ordre. Nous présentons de façon succincte dans un premier temps les deux grandes classes de modèles dans la méthode du champ de phase. Ensuite, nous discutons en détail du modèle choisi pour cette thèse en introduisant brièvement l'énergie libre avant de présenter dans la dernière partie les différents paramètres associés au modèle.

2.2.2.1 Cahn–Hilliard *vs* Allen–Cahn

Suivant le problème étudié, le paramètre d'ordre ϕ peut être distinguée en deux catégories selon qu'il est conservé ou non. On dit qu'il est conservé lorsque l'intégrale de ϕ sur tout le domaine spatial reste constante. Dans le cas contraire, on dit qu'il est non conservé. L'évolution temporelle du paramètre d'ordre ϕ peut être donnée par :

- l'équation d'**Allen–Cahn** pour un paramètre d'ordre non conservé

$$\frac{\partial\phi}{\partial t} = \mathcal{L} \left(\kappa \nabla^2 \phi - \frac{\partial F_H}{\partial \phi} \right) \quad (2.7)$$

avec \mathcal{L} un paramètre cinétique associé au temps de relaxation du système, κ le coefficient de gradient d'énergie et F_H la densité d'énergie libre de Gibbs obtenus à

partir de la fonctionnelle d'énergie de Ginzburg–Landau. L'équation 2.7, communément appelée équation d'Allen–Cahn ou modèle A de Hohenberg et Halperin dans [96], est formulée sous la forme d'une équation de type Langevin qui fait évoluer le paramètre d'ordre ϕ de manière à minimiser l'énergie libre totale (ou, inversement, à maximiser l'entropie totale du système) et traduit la relaxation du système vers son état d'équilibre thermodynamique correspondant à $\frac{\partial \phi}{\partial t} = 0$. Pour plus de détails sur l'équation d'Allen–Cahn, on peut se référer à [97–99].

- l'équation de **Cahn–Hilliard** pour un paramètre d'ordre conservé

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \nabla \cdot \left[\mathcal{M} \nabla \left(\frac{\partial F_H}{\partial \phi} - \kappa \nabla^2 \phi \right) \right] \quad (2.8)$$

avec \mathcal{M} un paramètre cinétique appelé mobilité, κ le coefficient de gradient d'énergie et F_H la densité d'énergie libre de Gibbs. Cette équation est déduite de l'équation de conservation des flux et est connue sous le nom de Cahn–Hilliard ou modèle B selon la classification de Hohenberg et Halperin [96]. Nous discutons en détail de cette équation de Cahn–Hilliard dans Section 2.2.2.2.

Les équations de Cahn–Hilliard et d'Allen–Cahn sont très similaires mais présentent des différences tant au niveau numérique que physique. L'équation de Cahn–Hilliard vient, en effet, d'une équation de conservation et nécessite la résolution d'une équation d'ordre 4 au travers du bilaplacien tandis que celle d'Allen–Cahn est une équation de relaxation, non conservative et n'est que d'ordre 2.

Dans les écoulements multiphasiques, la méthode du champ de phase est souvent utilisée comme une méthode de suivi implicite d'interface telle que rapportée dans [91, 100, 101]. Dans cette thèse, au delà de son rôle de suivi implicite d'interface dans l'écoulement diphasique, nous utilisons la méthode du champ de phase pour caractériser les transferts de masse observés au niveau de l'interface. Autrement dit, les paramètres d'ordre du problème désignent les compositions (ou fractions molaires) des composants du système dans le but de décrire les échanges de masse à l'interface.

Le modèle le plus pertinent pour notre objectif de modélisation dans un système multicomposant reste la méthode du champ de phase conservé car elle permet d'assurer la conservation de la masse³, permet une gestion simple des changements topologiques et une description des transferts de masse dans un système complexe. Notons que pour traiter du

3. Il existe une variante du modèle d'Allen–Cahn (modèle d'Allen–Cahn conservatif [89, 102, 103]) mais n'est pas développée ici. Des détails sur cette méthode sont disponibles dans [89, 104–106].

transfert de masse multicomposant entre deux phases, l'équation d'Allen–Cahn couplée à des équations de diffusion est une alternative à Cahn–Hilliard. Un tel modèle a été étudié, entre autres, pour la lacune de miscibilité liquide du binaire U-O dans [107] ou pour la séparation liquide/liquide d'un verre ternaire dans [89]. En soi, un tel modèle n'est valide que lorsque les deux phases restent proches de leur compositions d'équilibre et, suivant le paysage thermodynamique, peut imposer des contraintes fortes sur la séparation d'échelle entre épaisseur de l'interface et taille caractéristique macroscopique des phases [107].

Dans ce manuscrit, dans la poursuite des travaux de C. Cardon [57], nous avons fait le choix naturel d'utiliser le modèle de Cahn–Hilliard qui est l'équation principale de cette thèse, discutée plus en détail dans la prochaine section.

2.2.2.2 Modèle de Cahn–Hilliard

Pour un paramètre d'ordre conservé ϕ dans un système binaire composé de deux composants A et B, on considère souvent $\phi = \phi_B - \phi_A$ comme la différence entre les concentrations (ou fractions molaires) des deux composants. L'évolution temporelle de ϕ est déduite de l'équation de conservation des flux :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \nabla \cdot J = 0 \quad (2.9)$$

avec J le flux associé au paramètre d'ordre ϕ . Dans le modèle du champ de phase, ce flux J est soumis au principe d'Onsager qui stipule que le flux peut s'exprimer comme une fonction linéaire de la force thermodynamique. Par conséquent, J peut s'écrire comme :

$$J = -\mathcal{M} \nabla \hat{\mu} \quad (2.10)$$

\mathcal{M} étant un paramètre cinétique appelé mobilité qui peut être une constante positive ou fonction de ϕ . La force thermodynamique est identifiée au gradient d'un potentiel scalaire $\hat{\mu}$, appelé potentiel chimique⁴ et se définit comme la dérivée variationnelle de la fonctionnelle d'énergie \mathbb{F} :

$$\hat{\mu} = \frac{\delta \mathbb{F}}{\delta \phi} \quad (2.11)$$

Pour un système binaire, le potentiel chimique $\hat{\mu}$ peut s'écrire comme

4. Dans la littérature, le potentiel chimique $\hat{\mu}$ peut parfois porter le nom de potentiel de diffusion. L'appellation varie selon les auteurs.

$$\hat{\mu} = \mu_B - \mu_A \quad (2.12)$$

avec μ_A et μ_B sont les potentiels chimiques “standard” des éléments A et B définis par

$$\mu_i = \left. \frac{\partial F_H}{\partial N_i} \right|_{T, V, N_{j \neq i}} \quad (2.13)$$

avec N_i la quantité de matière (en nombre de moles) de l'espèce i .

En prenant l'expression de la fonctionnelle d'énergie de Ginzburg-Landau en Eq. 2.4, on obtient :

$$\delta \mathbb{F} = \int_V \left[\frac{\partial F_H}{\partial \phi} \delta \phi + \kappa (\nabla \phi) \delta (\nabla \phi) \right] dV \quad (2.14)$$

En considérant uniquement le deuxième terme dans l'intégrale en Eq. 2.14 et en l'intégrant par partie, on obtient :

$$\int_V \kappa (\nabla \phi) \delta (\nabla \phi) dV = [\kappa \nabla \phi \delta \phi]_{-\infty}^{+\infty} - \int_V \kappa \nabla^2 \phi \delta \phi dV \quad (2.15)$$

Le premier terme vaut nul car ϕ ne varie pas aux bords (loin de l'interface). En effet, le paramètre d'ordre ϕ est soumis à des conditions aux limites de Neumann homogènes. La dérivée variationnelle de \mathbb{F} est donnée par

$$\frac{\delta \mathbb{F}}{\delta \phi} = \frac{\partial F_H}{\partial \phi} - \kappa \nabla^2 \phi \quad (2.16)$$

Les conditions aux bords pour le potentiel $\hat{\mu} = \frac{\delta \mathbb{F}}{\delta \phi}$ sont également de type Neumann homogènes car aucun flux de diffusion ne doit traverser le bord du domaine et à l'équilibre thermodynamique, sa valeur vaut $\hat{\mu}^{eq}$. En ce sens, pour un système qui tend vers les compositions d'équilibre $\phi^{\alpha, eq}$ et $\phi^{\beta, eq}$, deux conditions doivent être satisfaites à l'équilibre thermodynamique [108] :

- une condition d'égalité du potentiel chimique dans les deux phases à l'équilibre thermodynamique

$$\hat{\mu}^{\alpha, eq} = \hat{\mu}^{\beta, eq} = \hat{\mu}^{eq} \quad (2.17)$$

- une condition d'égalité du grand potentiel dans les deux phases à l'équilibre thermodynamique

$$\hat{\Omega}^{\alpha,eq} = \hat{\Omega}^{\beta,eq} = \hat{\Omega}^{eq} \quad (2.18)$$

avec $\hat{\mu}^{\alpha,eq}$ et $\hat{\Omega}^{\alpha,eq}$ (resp. $\hat{\mu}^{\beta,eq}$ et $\hat{\Omega}^{\beta,eq}$) sont les potentiels chimiques et grand potentiel de la phase α (resp. de la phase β). Pour $k \in \{\alpha, \beta\}$, le grand potentiel $\hat{\Omega}^{k,eq}$ est donné par

$$\hat{\Omega}^{k,eq} = F_H(\phi^{k,eq}) - \hat{\mu}^{eq} \phi^{k,eq} \quad (2.19)$$

Du point de vue géométrique, ces deux équations décrivent une tangente commune à la courbe d'énergie libre aux deux points d'équilibre $\phi^{\alpha,eq}$ et $\phi^{\beta,eq}$. Finalement, en injectant les Eqs. 2.10 et 2.16 dans l'équation de conservation en Eq. 2.9, on obtient

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \nabla \cdot \left[\mathcal{M} \nabla \left(\frac{\partial F_H}{\partial \phi} - \kappa \nabla^2 \phi \right) \right] \quad (2.20)$$

Cette équation non linéaire au travers de $\frac{\partial F_H}{\partial \phi}$ est connue sous le nom de l'équation de Cahn–Hilliard ou modèle B selon la classification de Hohenberg et Halperin [96]. Dans le cadre des matériaux multicomposants, l'énergie libre est généralement obtenue à partir des bases de données thermodynamiques comme CALPHAD [13, 109] mais peut s'exprimer également de façon analytique. Pour un système diphasique, la variation de l'énergie libre prend la forme d'un double puits qui peut être exprimé par une fonction de type logarithmique [58, 88, 95]

$$F_H = a\phi(1 - \phi) + k_B T(\phi) \ln \phi + (1 - \phi) \ln(1 - \phi) \quad (2.21)$$

avec k_B la constante de Boltzmann ou par une approximation par un polynôme d'ordre 4 [91, 100, 110] :

$$F_H = a(\phi - \phi^{\alpha,eq})^2(\phi^{\beta,eq} - \phi)^2 \quad (2.22)$$

avec $\phi^{\alpha,eq}$ et $\phi^{\beta,eq}$ sont les compositions d'équilibre. Cette forme d'un polynôme d'ordre 4 est la forme la plus utilisée car il s'agit à la fois de la forme avec l'ordre le plus bas dans la formulation de Landau car il existe une solution analytique à l'interface (voir Annexe A).

2.2.2.3 Paramètres du modèle de Cahn–Hilliard

Les paramètres principaux associés à l'équation de Cahn–Hilliard sont l'énergie libre F_H , le coefficient d'énergie κ et la mobilité \mathcal{M} . Dans cette section, nous discutons de ces paramètres en commençant par une discussion brève sur l'énergie libre. Ensuite, nous

discutons de la tension de surface et de l'épaisseur d'interface afin d'obtenir le coefficient d'énergie κ . Enfin, nous parlons de la mobilité dans la dernière partie.

2.2.2.3.1 Quelques mots sur l'énergie libre

La méthode du champ de phase est initialement utilisée pour décrire les transitions de phase avant d'être élargie vers l'étude des phénomènes de transfert de masse dans les fluides. Avant de discuter de son application à ce dernier, il est important de présenter quelques notions de base sur la séparation de phase notamment le diagramme des phases et la variation de l'énergie libre du système qui jouent un rôle important dans la compréhension du modèle de champ de phase. Le système étudié dans cette section est celui qui tend à se séparer vers deux phases distinctes *i.e.* un système diphasique.

Tout d'abord, le diagramme de phase est une représentation graphique permettant de caractériser l'état physique d'un système à composition donnée suivant une variable thermodynamique comme la température ou la pression. La Figure 2.3 montre un diagramme de phase isobare et représente les différents états que peut prendre le système en fonction de la température. Il y a deux zones bien distinctes : une zone de lacune de miscibilité et une zone hors de cette lacune. La zone de lacune de miscibilité correspond à la zone à l'intérieur de la courbe de coexistence appelée aussi ligne binodale (ligne orange de la Figure 2.3) dans un diagramme de phase. Il s'agit d'une zone où coexistent deux phases de même structure mais de compositions différentes.

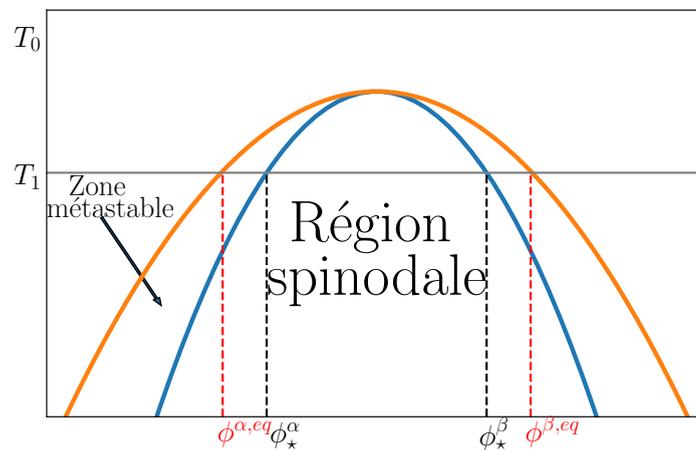


FIGURE 2.3 : Diagramme de phase.

Considérons un système dans lequel deux éléments A et B tel qu'à la température T_0 , le système est constitué d'un seul liquide (mélange d'éléments A et B). Si on fait varier la température du système de T_0 à T_1 , le système va se retrouver dans la lacune de miscibilité ou non selon la composition de l'élément A. Hors de la lacune de miscibilité, le système va rester monophasique tandis que si la composition initiale est dans la lacune de miscibilité, il va se séparer en deux phases dont les compositions d'équilibre sont données par les extrémités de la conode. La conode ou "tie-line" est la ligne qui connecte les deux phases à l'équilibre. Notons que tous les points sur la conode ont la même composition globale.

Suivant la composition initiale de l'élément A dans la lacune de miscibilité, cette séparation de phase pour un système hétérogène peut se présenter sous deux mécanismes :

- par *décomposition spinodale* lorsqu'il existe une fluctuation infinitésimale de composition qui diminue l'énergie libre F_H . La séparation se développe spontanément jusqu'à ce qu'un minimum d'énergie correspondant à l'état d'équilibre soit atteint.
- par *nucléation croissance*, dans le cas contraire, la baisse d'énergie n'est possible qu'après que l'amplitude de la fluctuation a dépassé un seuil. Ceci implique de surmonter la barrière énergétique de nucléation.

Pour mieux comprendre ces deux mécanismes, nous montrons en Figure 2.5 une illustration graphique de l'énergie libre, de sa dérivée et de sa dérivée seconde par rapport au paramètre d'ordre ϕ pour une densité d'énergie libre F_H en Eq. 2.22. L'énergie libre F_H possède deux minima correspondant aux deux points d'équilibre du système *i.e.* $\phi^{\alpha,eq}$ et $\phi^{\beta,eq}$. La pente de la tangente commune à ces deux phases correspond au potentiel chimique à l'équilibre $\tilde{\mu}^{eq}$ (une constante aux deux phases). En d'autres termes, il existe une solution de front telle que $\nabla\mu = 0$ à l'équilibre thermodynamique. L'excès d'énergie entre ces deux phases est associée à l'énergie d'interface σ (appelée aussi tension de surface) comme illustré en Figure 2.4. Nous discutons plus en détail de la tension de surface en Section 2.2.2.3.2.

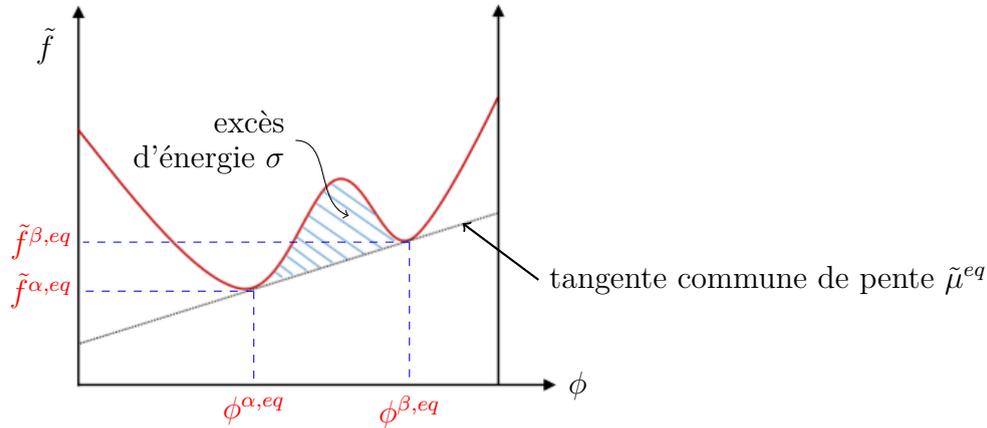


FIGURE 2.4 : Densité d'énergie libre homogène \tilde{f} et excès d'énergie libre à l'interface.

Le calcul de ses points d'inflexion au travers de sa dérivée seconde met en évidence les deux zones de l'énergie libre : un domaine concave (resp. convexe) correspondant à tout point de la composition initiale qui mène vers une séparation de phase par décomposition spinodale (resp. nucléation croissance) qu'on peut identifier à partir du sens de la dérivée seconde. En effet, si $\frac{d^2 F_H}{d\phi^2} < 0$, le domaine est concave alors toute composition initiale à l'intérieur de cette zone instable *i.e.* $\phi \in]\phi_{\star}^{\alpha}, \phi_{\star}^{\beta}[$ qu'on appelle également région spinodale va tendre vers un système séparé par le mécanisme de décomposition spinodale. Inversement, si $\frac{d^2 F_H}{d\phi^2} > 0$, le domaine est convexe et correspond à la région métastable *i.e.* $\phi \in]\phi^{\alpha,eq}, \phi_{\star}^{\alpha}[\cup]\phi_{\star}^{\beta}, \phi^{\beta,eq}[$ où la séparation s'effectue par le mécanisme de nucléation croissance. La lacune de miscibilité comprend alors une zone instable et une zone métastable séparée entre elles par la limite spinodale (courbe en bleu de la Figure 2.3).

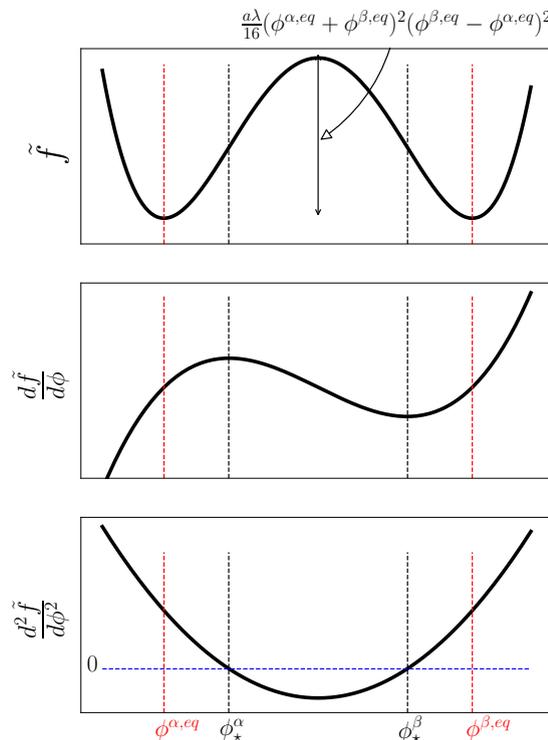


FIGURE 2.5 : Variation de l'énergie libre donnée par l'Eq. 2.22, de sa dérivée première et de sa dérivée seconde par rapport au paramètre d'ordre ϕ .

Pour résumer, le système est représenté par la fonctionnelle d'énergie libre de Ginzburg-Landau qui prend en compte à la fois le caractère diffus de l'interface ainsi que les conditions d'équilibre et de coexistence des phases. En effet, il est important de bien définir l'énergie libre homogène F_H dans le modèle de Cahn–Hilliard car elle contient les informations associées au nombre de phases présentes et les valeurs du paramètre d'ordre à l'équilibre thermodynamique auquel va tendre le système. Dans un écoulement diphasique, cette séparation de phases se manifeste par la création d'une interface séparant le système en deux avec une énergie liée à sa création.

2.2.2.3.2 Tension de surface

La tension de surface (appelée aussi tension interfaciale) est définie comme l'excès d'énergie libre par unité de surface associée à la création d'interface entre deux phases. Elle correspond à l'équipartition de l'énergie d'excès entre le grand potentiel $\hat{\Omega}$ du système avec

une interface entre les phases $\{\alpha, \beta\}$ et le grand potentiel $\hat{\Omega}^{eq}$ (à l'équilibre) en l'absence d'interface par unité de surface S [88], soit

$$\sigma = \frac{\hat{\Omega} - \hat{\Omega}^{eq}}{S} \quad (2.23)$$

avec $\hat{\Omega}^{eq}$ défini en Eq. 2.19 et le grand potentiel $\hat{\Omega}$ défini par

$$\hat{\Omega} = F_H - \hat{\mu}^{eq}\phi + \frac{1}{2}\kappa\|\nabla\phi\|^2 \quad (2.24)$$

Dans cette description des paramètres du modèle, nous considérons un domaine à interface plane de longueur L , soit une tension de surface σ

$$\sigma = \int_0^L \left[F_H - F_H(\phi^{\alpha,eq}) - \hat{\mu}^{eq}(\phi - \phi^{\alpha,eq}) + \frac{1}{2}\kappa \left(\frac{d\phi}{dx} \right)^2 \right] dx \quad (2.25)$$

tel que $\phi(x=0) = \phi^{\alpha,eq}$ et $\phi(x=L) = \phi^{\beta,eq}$.

Nous rappelons que nous avons à l'équilibre thermodynamique la relation suivante

$$\kappa \frac{d^2\phi}{dx^2} = \frac{dF_H}{d\phi} - \hat{\mu}^{eq} \quad (2.26)$$

En multipliant les deux membres par $\frac{d\phi}{dx}$ puis en l'intégrant entre 0 et x , on obtient

$$\int_0^x \kappa \frac{d^2\phi}{dx^2} \frac{d\phi}{dx} dx = \int_0^x \frac{dF_H}{d\phi} \frac{d\phi}{dx} dx - \int_0^x \hat{\mu}^{eq} \frac{d\phi}{dx} dx \quad (2.27)$$

ce qui donne

$$\frac{1}{2} \int_0^{\left(\frac{d\phi}{dx}\right)^2} 2\kappa \frac{d\phi}{dx} d\left(\frac{d\phi}{dx}\right) = \int_{F_H(\phi^{\alpha,eq})}^{F_H(\phi)} dF_H - \int_{\phi^{\alpha,eq}}^{\phi} \hat{\mu}^{eq} d\phi \quad (2.28)$$

On obtient donc

$$\frac{1}{2}\kappa \left(\frac{d\phi}{dx} \right)^2 = F_H(\phi) - F_H(\phi^{\alpha,eq}) - \hat{\mu}^{eq}(\phi - \phi^{\alpha,eq}) \quad (2.29)$$

soit la tension de surface σ donnée par

$$\sigma = \int_0^L \kappa \left(\frac{d\phi}{dx} \right)^2 dx = \int_{\phi^{\alpha,eq}}^{\phi^{\beta,eq}} \kappa \left(\frac{d\phi}{dx} \right) d\phi \quad (2.30)$$

avec

$$\frac{d\phi}{dx} = \sqrt{\frac{2}{\kappa}} \sqrt{F_H(\phi) - F_H(\phi^{\alpha,eq}) - \hat{\mu}^{eq}(\phi - \phi^{\alpha,eq})} \quad (2.31)$$

Finalement, en injectant l'Eq. 2.31 dans l'Eq. 2.30, on obtient l'expression de la tension de surface

$$\sigma = \sqrt{2\kappa} \int_{\phi^{\alpha,eq}}^{\phi^{\beta,eq}} \sqrt{F_H(\phi) - F_H(\phi^{\alpha,eq}) - \hat{\mu}^{eq}(\phi - \phi^{\alpha,eq})} d\phi \quad (2.32)$$

2.2.2.3.3 Épaisseur d'interface

Comme la méthode du champ de phase est un modèle à interface diffuse, l'interface a une certaine épaisseur non-nulle correspondant à l'espace à l'intérieur duquel il existe une variation non négligeable du paramètre d'ordre. Il faut noter que l'épaisseur physique de l'interface est de l'ordre du nanomètre [111], ce qui correspond à l'échelle spatiale des interactions atomiques et nécessite, par conséquent, des tailles de grille extrêmement petites pour capturer cette interface. Afin de contourner cette difficulté au vu des échelles spatiales mises en jeu, le modèle du champ de phase propose l'avantage de pouvoir gérer cette interface à une échelle plus large que celle de l'interface physique tout en gardant la même propriété physique telle que la tension de surface. En ce sens, nous introduisons le paramètre d'*upscaling* λ tel que

$$\varepsilon^* = \frac{\varepsilon}{\lambda} \quad (2.33)$$

avec ε l'épaisseur physique réelle de l'interface, et ε^* l'épaisseur numérique du modèle de champ de phase. L'épaisseur d'interface ε^* introduite en donnée d'entrée devient un paramètre numérique fixé par le maillage afin de résoudre le problème à l'échelle macroscopique. En pratique, la taille de cette interface "numérique" est de l'ordre de 4 à 5 mailles. Pour plus de clarté dans la suite, tous les paramètres numériques sont munis d'un exposant \star .

La définition de cette épaisseur d'interface est "arbitraire" et varie selon les auteurs. Dans [91], par exemple, l'épaisseur d'interface est définie comme la distance correspondant à 90% de la variation du paramètre d'ordre soit

$$\varepsilon^* \simeq \frac{4.164}{\lambda} \sqrt{\kappa} \quad (2.34)$$

avec $\varepsilon = 2 \times \tanh^{-1}(0.9) \sqrt{2\kappa} \simeq 4.164 \sqrt{\kappa}$.

Dans [49, 100], l'épaisseur d'interface physique ε se définit à partir du maximum de la pente (voir Figure 2.6) en première approximation

$$\max\left(\frac{d\phi}{dx}\right) \simeq \frac{|\phi^{\beta,eq} - \phi^{\alpha,eq}|}{\varepsilon} \quad (2.35)$$

ce qui donne

$$\varepsilon = \frac{|\phi^{\beta,eq} - \phi^{\alpha,eq}|}{\max\left(\frac{d\phi}{dx}\right)} \quad (2.36)$$

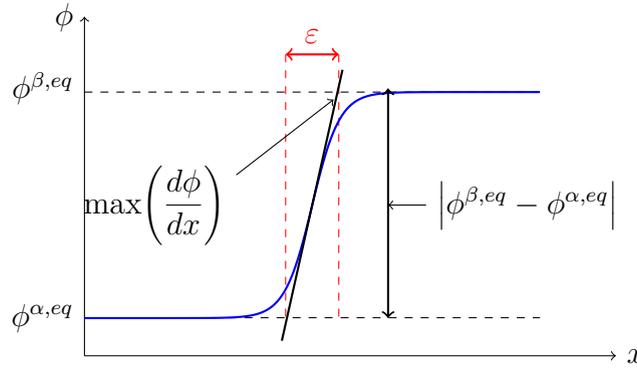


FIGURE 2.6 : Illustration de la définition de l'épaisseur d'interface.

Dans ce manuscrit, nous avons fait le choix d'utiliser la définition en Eq. 2.36. En remplaçant $\frac{d\phi}{dx}$ par son expression en Eq. 2.31, on peut écrire l'épaisseur d'interface numérique ε^*

$$\varepsilon^* = \frac{1}{\lambda} \sqrt{\frac{\kappa}{2}} \frac{|\phi^{\beta,eq} - \phi^{\alpha,eq}|}{\max\left(\sqrt{F_H(\phi) - F_H(\phi^{\alpha,eq}) - \hat{\mu}^{eq}(\phi - \phi^{\alpha,eq})}\right)} \quad (2.37)$$

Afin de mettre en évidence le paramètre d'*upscaling* λ tout en gardant la même tension de surface σ , nous pouvons introduire un autre paramètre numérique $\kappa^* = \frac{\kappa}{\lambda}$ qui représente le coefficient de gradient numérique lorsque l'interface est élargie. La tension de surface σ et l'épaisseur d'interface numérique ε^* deviennent

$$\sigma = \sqrt{2\lambda\kappa^*} \int_{\phi^{\alpha,eq}}^{\phi^{\beta,eq}} \sqrt{F_H(\phi) - F_H(\phi^{\alpha,eq}) - \hat{\mu}^{eq}(\phi - \phi^{\alpha,eq})} d\phi = A_\sigma^{eq} \sqrt{2\lambda\kappa^*} \quad (2.38)$$

$$\varepsilon^* = \sqrt{\frac{\kappa^*}{2\lambda} \frac{|\phi^{\beta,eq} - \phi^{\alpha,eq}|}{\max(\sqrt{F_H(\phi)} - F_H(\phi^{\alpha,eq}) - \hat{\mu}^{eq}(\phi - \phi^{\alpha,eq}))}} = A_\varepsilon^{eq} \sqrt{\frac{\kappa^*}{2\lambda}} \quad (2.39)$$

À ce stade, nous avons pu définir l'épaisseur d'interface ε^* et la tension de surface σ en fonction de λ et κ^* de la fonctionnelle d'énergie. La tension de surface est proportionnelle à $\sqrt{\lambda\kappa^*}$ tandis que l'épaisseur d'interface numérique ε^* est proportionnelle à $\sqrt{\frac{\kappa^*}{\lambda}}$. Afin de mettre en évidence les paramètres σ et l'épaisseur d'interface numérique ε^* , dans la littérature, certains auteurs proposent une écriture de la fonctionnelle d'énergie libre \mathbb{F} sous la forme :

$$\mathbb{F} = \int_V \left[A \frac{\sigma}{\varepsilon^*} F_H(\phi, T) + B \sigma \varepsilon^* \|\nabla\phi\|^2 \right] dV \quad (2.40)$$

ou également en mettant en évidence λ , l'interface physique ε et la tension de surface σ par

$$\mathbb{F} = \int_V \left[A \frac{\sigma}{\varepsilon} \lambda F_H(\phi, T) + B \frac{\sigma \varepsilon}{\lambda} \|\nabla\phi\|^2 \right] dV \quad (2.41)$$

avec A et B sont des coefficients constants tels que

$$A = \frac{A_{\varepsilon^*}^{eq}}{2A_\sigma^{eq}} \quad (2.42)$$

et

$$B = \frac{1}{A_{\varepsilon^*}^{eq} A_\sigma^{eq}} \quad (2.43)$$

Par conséquent, nous pouvons écrire

$$\lambda = \frac{\sigma A_\varepsilon^{eq}}{2A_\sigma^{eq} \varepsilon^*} = A \frac{\sigma}{\varepsilon^*} \quad (2.44)$$

$$\kappa^* = \frac{\sigma \varepsilon^*}{A_\varepsilon^{eq} A_\sigma^{eq}} = B \sigma \varepsilon^* \quad (2.45)$$

2.2.2.3.4 Mobilité

Physiquement, la mobilité \mathcal{M} est un paramètre cinétique qui traduit la vitesse du processus de transfert de masse ou de diffusion. Dans la méthode du champ de phase, elle peut être une constante positive ou fonction du paramètre d'ordre ϕ (appelée aussi mobilité dégénérée). Le choix d'une mobilité constante est souvent fait pour des raisons de simplification, en particulier du point de vue numérique car elle reste constante dans tout

le domaine et dans toute la simulation. Néanmoins, l'utilisation d'une mobilité constante peut être problématique dans certains cas notamment lorsque la fonction d'énergie libre est de type polynomiale ou ayant une singularité [110, 112]. En effet, si l'on considère le paramètre d'ordre ϕ comme la différence entre la fraction volumique d'un élément A et celle d'un élément B, on devrait obtenir $\phi \in [-1, 1]$. Or, l'utilisation d'une mobilité constante autorise ϕ à prendre des valeurs au delà de cet intervalle $[-1, 1]$, cela n'a pas vraiment de sens physique. Pour remédier à ce problème, on utilise une mobilité dégénérée *i.e.* une mobilité dépendant du paramètre d'ordre ϕ . Dans la littérature, on peut trouver différentes expressions de la mobilité dégénérée suivant le type de problème, des conditions aux limites et de l'énergie libre tout en assurant la consistance avec la thermodynamique [112, 113]. À titre d'exemple, une des formes que peut prendre cette mobilité dégénérée est

$$\mathcal{M}(\phi) = 1 - \phi^2 \quad (2.46)$$

Le grand intérêt d'utiliser une mobilité dégénérée est d'assurer que les valeurs des ϕ obtenues se trouvent dans l'intervalle de ϕ ayant un sens physique.

Par ailleurs, en définissant les grandeurs adimensionnelles $\tilde{x} = \frac{x}{L}$, $\tilde{t} = \frac{t}{\tau}$ et $\tilde{F}' = \frac{\partial F_H}{F'_0}$ où L , τ et F'_0 désignent respectivement la longueur, le temps et la densité d'énergie libre caractéristique du système, on peut obtenir l'équation de Cahn–Hilliard adimensionnée

$$\frac{\partial \phi}{\partial \tilde{t}} = \nabla \cdot [\tilde{\mathcal{M}} \nabla (\tilde{F}' - \tilde{\kappa}^* \nabla^2 \phi)] \quad (2.47)$$

avec

$$\tilde{\mathcal{M}} = \frac{\lambda \tau \mathcal{M} F'_0}{L^2} \quad (2.48)$$

et

$$\tilde{\kappa}^* = \frac{\kappa^*}{\lambda F'_0 L^2} \quad (2.49)$$

Le temps caractéristique d'atteinte du régime stationnaire τ s'exprime donc comme

$$\tau = \frac{L^2}{\lambda F'_0 \mathcal{M}} \quad (2.50)$$

Ce temps macroscopique de diffusion est dépendant du paramètre λ *i.e.* il varie avec l'élargissement d'interface. Afin de préserver ce temps macroscopique de diffusion dans notre modèle tout en prenant en compte l'élargissement d'interface par λ , nous introduisons une mobilité numérique \mathcal{M}^* de telle sorte que le temps τ est conservé indépendamment de

la taille de l'interface. Cette mobilité numérique s'écrit en conséquence comme $\mathcal{M}^* = \frac{\mathcal{M}}{\lambda}$. L'équation de Cahn–Hilliard devient

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \nabla \cdot \left[\mathcal{M}^* \nabla \left(\lambda \frac{\partial F_H}{\partial \phi} - \kappa^* \nabla^2 \phi \right) \right] \quad (2.51)$$

où \mathcal{M}^* la mobilité numérique et κ^* le coefficient de gradient en considérant l'interface élargie. Un récapitulatif des paramètres physiques et numériques du modèle de Cahn–Hilliard est présenté dans le Tableau 2.1.

TABLEAU 2.1 : Tableau récapitulatif des paramètres physiques et numériques dans le modèle du champ de phase.

Paramètres	Physique	Numérique
fonctionnelle	$\mathcal{F} = F_H + \frac{\kappa}{2} \ \nabla \phi\ ^2$	$\mathcal{F} = \lambda F_H + \frac{\kappa^*}{2} \ \nabla \phi\ ^2$
épaisseur	ε	$\varepsilon^* = \frac{\varepsilon}{\lambda}$
gradient d'énergie	κ	$\kappa^* = \frac{\kappa}{\lambda}$
tension de surface	σ	$\sigma^* = \sigma$
mobilité	\mathcal{M}	$\mathcal{M}^* = \frac{\mathcal{M}}{\lambda}$

2.2.3 Cas d'un système multicomposant

Dans cette section, nous considérons le cas d'un système multicomposant *i.e.* un ensemble de plusieurs paramètres d'ordre. Dans cette thèse, ceux-ci sont des variables conservées, en l'occurrence les compositions des N éléments du système et sont soumis à la contrainte

$$\sum_{i=1}^N \phi_i = 1 \quad (2.52)$$

Ainsi, le degré de liberté nécessaire pour décrire la composition locale du système se réduit à $N_c = N - 1$ variables conservées. La fonctionnelle d'énergie de Ginzburg-Landau correspondante s'écrit

$$\mathbb{F}[\phi_1, \dots, \phi_{N_c}] = \int_V \lambda F_H(\phi_1, \dots, \phi_{N_c}) + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{N_c} \sum_{j=1}^{N_c} \kappa^* \nabla \phi_i \cdot \nabla \phi_j \, dV \quad (2.53)$$

où le terme $\frac{1}{2} \sum_{i=1}^{N_c} \sum_{j=1}^{N_c} \kappa^* \nabla \phi_i \cdot \nabla \phi_j$ représente la pénalisation énergétique liée à la création d'interface étant donné que celle-ci coûte de l'énergie au système.

2.2.3.1 Cahn–Hilliard multicomposant

De la même manière que dans le cas d'un système binaire, on peut décrire l'évolution des paramètres d'ordre conservés à partir de l'équation de conservation des flux. Tout en prenant en compte l'expression de la fonctionnelle d'énergie en Eq. 2.53 et la contrainte en Eq. 2.52, l'évolution des paramètres d'ordre conservés ϕ_i tels que $i \in [1, N_c]$ est donnée par les équations de Cahn–Hilliard

$$\begin{cases} \frac{\partial \phi_i}{\partial t} = \nabla \cdot \left(\sum_{j=1}^{N_c} \frac{\mathcal{M}_{i,j}}{\lambda} \nabla \tilde{\mu}_j \right) \\ \tilde{\mu}_j = \lambda \left(\frac{\partial F_H}{\partial \phi_j} \right)_{\phi_i \neq j} - \sum_{l=1}^{N_c} \kappa_{j,l}^* \nabla^2 \phi_l \end{cases} \quad (2.54)$$

avec $\bar{\mathcal{M}} = \{\mathcal{M}_{i,j}\}_{i,j \in \{1, \dots, N_c\}}$ la mobilité chimique, $\bar{\kappa} = \{\kappa_{i,j}^*\}_{i,j \in \{1, \dots, N_c\}}$ les coefficients de gradient d'énergie numérique qui deviennent des matrices carrés d'ordre N dans le cas multicomposant. Ces deux matrices ont la particularité d'être symétrique (*i.e.* $\kappa_{i,j}^* = \kappa_{j,i}^*$ et $\mathcal{M}_{i,j} = \mathcal{M}_{j,i}$). Comme dans le cas binaire, le potentiel de diffusion $\tilde{\mu}_i$ peut être écrit en fonction des potentiels chimiques "standard" μ_i . Dans le cas multicomposant et sous la contrainte en Eq. 2.52, le potentiel de diffusion $\tilde{\mu}_i$ s'écrit

$$\tilde{\mu}_i = \lambda (\mu_i - \mu_N) \quad (2.55)$$

avec N l'élément choisi pour réduire le degré de liberté du système à $N - 1$ paramètres d'ordre. Les conditions aux bords pour le paramètre d'ordre ϕ_i et le potentiel de diffusion $\tilde{\mu}_i$ sont les mêmes que dans le cas binaire *i.e.* du type Neumann homogène. Il n'y a pas de flux de diffusion qui traverse le bord du domaine et le système est fermé au sens de la contrainte de conservation donnée par

$$\frac{d}{dt} \int_V \phi_i dV = 0 \quad (2.56)$$

Les conditions de coexistence de phases α et β se généralisent facilement. À l'équilibre thermodynamique, comme dans le cas d'un système binaire, on a :

$$\begin{cases} \tilde{\mu}_i^{\alpha,eq} = \tilde{\mu}_i^{\beta,eq} = \tilde{\mu}_i^{eq} \\ \tilde{\Omega}_i^{\alpha,eq} = \tilde{\Omega}_i^{\beta,eq} = \tilde{\Omega}_i^{eq} \end{cases} \quad (2.57)$$

tel que pour la phase $k \in \{\alpha, \beta\}$, le grand potentiel $\tilde{\Omega}_i^{eq}$ de ϕ_i à l'équilibre est donné par le plan cotangent

$$\tilde{\Omega}_i^{eq} = \lambda F_H(\phi_1^{k,eq}, \dots, \phi_{N_c}^{k,eq}) - \sum_{i=1}^{N_c} \tilde{\mu}_i^{eq} \phi_i^{k,eq} \quad (2.58)$$

2.2.3.2 Mobilité

Comme discuté dans le cas d'un système binaire, la mobilité peut être une constante ou dégénérée. Dans le cas d'un système multicomposant, la mobilité constante désigne une matrice dont les coefficients sont fixes dans tout le domaine et tout au long de la simulation. Dans le cas d'une mobilité dégénérée, celle-ci est fonction de ϕ_i et permet d'assurer que les paramètres d'ordre ϕ_i calculés sont dans un intervalle physique bien déterminé. Sous l'hypothèse d'un volume molaire constant, la mobilité dégénérée pour un système multicomposant est donnée dans la littérature [93, 114–116] par

$$\mathcal{M}_{i,j} = V_m \sum_{k=1}^{N_c+1} (\delta_{i,k} - \phi_i) (\delta_{j,k} - \phi_j) \phi_k M_k \quad (2.59)$$

avec V_m le volume molaire, $\delta_{i,k}$ le symbole de Kronecker tels que $\delta_{i,k} = 1$ si $i = k$ et $\delta_{i,k} = 0$ si $i \neq k$, M_k la mobilité atomique de l'élément $k \in \{1, \dots, N_c + 1\}$ obtenues dans les bases de données de mobilités atomiques [117, 118]. Il est important de mentionner ici que les mobilités atomiques de toutes les $N_c + 1$ variables conservées sont nécessaires pour construire cette matrice de mobilité dégénérée en Eq. 2.59.

2.2.3.3 Paramètres de l'interface

En considérant la fonctionnelle d'énergie d'un système multicomposant en Eq. 2.53 et en suivant le même processus de développement qu'en système binaire, la tension de surface σ pour les systèmes multicomposants peut s'exprimer comme

$$\sigma = \int_0^L \sum_{i=1}^{N_c} \sum_{j=1}^{N_c} \lambda \kappa_{i,j}^* \left(\frac{d\phi_i}{dx} \right) \left(\frac{d\phi_j}{dx} \right) dx \quad (2.60)$$

et l'épaisseur d'interface associé à ϕ_i est donnée par

$$\varepsilon_i^* = \frac{1}{\lambda} \frac{|\phi_i^{\beta,eq} - \phi_i^{\alpha,eq}|}{\max\left(\frac{d\phi_i}{dx}\right)} \quad (2.61)$$

La matrice $\bar{\kappa} = \{\kappa_{i,j}\}$ est symétrique et positive. Dans un système à N_c paramètres d'ordre, il faut alors $N_c(N_c - 1)/2$ coefficients de gradient $\kappa_{i,j}$ indépendants. Physiquement, ces coefficients $\kappa_{i,j}$ représentent les interactions interatomiques des différentes espèces constituant le système. Comme aucune information détaillée sur ces dernières n'est généralement disponible, il n'y a aucun moyen de les déterminer *a priori*. À la différence du système binaire, on ne peut plus exprimer analytiquement la tension de surface σ et l'épaisseur d'interface numérique ε_i^* en fonction uniquement des coefficients de gradients $\kappa_{i,j}^*$ et du paramètre d'*upscaling* λ (sauf cas particulier dans [100] où une autre forme d'énergie libre est adoptée). Dans le cas du corium en cuve, l'énergie libre est souvent obtenue à partir des bases de données thermodynamiques telle que CALPHAD [109] et en l'occurrence, la seule relation qu'on peut obtenir est celle dans le cas d'un système binaire où le gradient d'énergie est un scalaire non pas une matrice carré d'ordre N_c .

La construction d'une matrice $\bar{\kappa}^*$ capable de représenter les paramètres d'interface à savoir la tension de surface et l'épaisseur d'interface n'est donc pas évidente. Dans la thèse de C. Cardon [57], le choix de $\bar{\kappa}^*$ a suscité des questions qui restaient en suspens. Un des objectifs de ce manuscrit est le paramétrage du modèle du champ de phase au travers de $\bar{\kappa}^*$ pour un système multicomposant afin, d'une part, d'assurer la consistance avec la thermodynamique et la cohérence avec le système binaire vis-à-vis de la tension de surface et de l'épaisseur d'interface, et d'autre part, d'explorer les subtilités qu'on peut observer dans le cas multicomposant et qu'on ne retrouve pas dans le cas d'un système binaire. Nous en discutons plus en détail dans les prochains chapitres consacrés au développement des modèles à interface diffuse pour un système multicomposant.

2.2.4 Couplage avec l'hydrodynamique

Jusque là, nous avons présenté la méthode du champ de phase dans un cadre purement diffusif. Dans cette section, nous discutons brièvement du couplage de ce modèle par les équations de Cahn–Hilliard avec celles de Navier–Stokes afin de prendre en compte à la fois les phénomènes thermochimiques au travers du transfert de masse entre les phases et les phénomènes hydrodynamiques lorsqu'on considère un écoulement de fluide dans le système.

Le corium en cuve est considéré comme un fluide newtonien dans la gamme de composition d'intérêt. Par ailleurs, on se place dans le cadre des fluides quasi-incompressibles où la masse volumique ne dépend pas de la pression et est ici fonction de la composition en éléments. En ce sens, dans la littérature, différentes formulations du couplage des équations

de Cahn-Hilliard et Navier-Stokes (CHNS) existent pour les écoulements diphasiques quasi-incompressibles⁵ à densité variable [96, 119–122]. Suivant la définition de la vitesse dans la formulation du modèle couplé, nous pouvons distinguer ces modèles comme un modèle à vitesse moyennée en volume ou un modèle à vitesse moyennée en masse. Pour des raisons de simplification, pour présenter succinctement ces modèles, nous considérons le cas d'un système à deux phases pures immiscibles décrit par un seul paramètre d'ordre ϕ associé à la fraction volumique des fluides (la fraction volumique d'une des phases ou la différence entre les fractions volumiques suivant le modèle).

D'une part, pour le modèle à vitesse moyennée en volume *i.e.* $\mathbf{u} = \iota_1 \mathbf{u}_1 + \iota_2 \mathbf{u}_2$ avec ι_j la fraction volumique et \mathbf{u}_j la vitesse de la phase $j \in \{1, 2\}$, nous pouvons discuter du modèle de Ding *et al.* [121] dans lequel la formulation provient des équations de bilan de masse pour chaque phase j de masse volumique ρ_j , soit

$$\frac{\partial \rho_j}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_j \mathbf{u}_j) = 0 \quad (2.62)$$

Avec la vitesse moyennée en volume, cela conduit à l'équation de continuité (divergence nulle de la vitesse)

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (2.63)$$

Dans ce modèle de Ding *et al.* [121], les équations de Navier–Stokes s'écrivent comme

$$\rho(\phi) \left(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \right) = -\nabla P + \mathbf{F}_S + \mathbf{F}_B + \nabla \boldsymbol{\tau} \quad (2.64)$$

et celle de Cahn–Hilliard comme

$$\begin{cases} \frac{\partial \phi}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \phi = \nabla \cdot (\mathcal{M}^* \nabla \tilde{\mu}) \\ \tilde{\mu} = \lambda \left(\frac{\partial F_H}{\partial \phi} \right) - \kappa^* \Delta \phi \end{cases} \quad (2.65)$$

avec P la pression, $\rho(\phi)$ la masse volumique, \mathbf{F}_S représente la force de tension de surface, \mathbf{F}_B la force liée à la gravité et $\boldsymbol{\tau}$ le tenseur des contraintes visqueuses. Ce modèle proposé par Ding *et al.* [121] a l'avantage d'être plus facile à résoudre numériquement grâce à la relation d'incompressibilité à divergence nulle (Eq. 2.63) mais sa formulation n'est pas thermodynamiquement consistante.

5. Le terme quasi-incompressible signifie que la masse volumique est indépendante de la pression

D'autre part, pour le modèle à vitesse moyennée en masse *i.e.* $\rho \mathbf{u} = \rho_1 \mathbf{u}_1 + \rho_2 \mathbf{u}_2$ avec ρ_j la masse volumique de la phase j , nous pouvons discuter du modèle de Lowengrub et Truskinovsky [120] dont l'équation de continuité s'écrit

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = 0 \quad (2.66)$$

La dérivation thermodynamiquement consistante de ce modèle conduit à une écriture modifiée des équations de Cahn–Hilliard avec un ajout du terme en pression dans la définition du potentiel chimique

$$\begin{cases} \rho \frac{\partial \phi}{\partial t} + \rho \mathbf{u} \cdot \nabla \phi = \nabla \cdot (\mathcal{M}^* \nabla \tilde{\mu}) \\ \tilde{\mu} = -\frac{1}{\rho^2} \frac{\partial \rho}{\partial \phi} P + \lambda \left(\frac{\partial F_H}{\partial \phi} \right) - \kappa^* \Delta \phi \end{cases} \quad (2.67)$$

Bien que cette formulation soit thermodynamiquement consistante, la vitesse n'est plus à divergence nulle dans le modèle de Lowengrub et Truskinovsky [120], ce qui complique la résolution numérique des équations couplées de CHNS.

Afin de tirer parti des avantages de chacun de ces deux modèles susmentionnés, Abels *et al.* dans [119] propose un modèle thermodynamiquement consistant pour les écoulements diphasiques quasi-incompressibles à densité variable basé sur un champ de vitesse solénoïdal (à divergence nulle). En l'occurrence, les équations de CHNS s'écrivent comme

$$\begin{cases} \frac{\partial \phi}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \phi = \nabla \cdot (\mathcal{M}^* \nabla \tilde{\mu}) \\ \tilde{\mu} = \lambda \left(\frac{\partial F_H}{\partial \phi} \right) - \kappa^* \Delta \phi \\ \rho(\phi) \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + ((\rho(\phi) \mathbf{u} + \mathbf{J}) \cdot \nabla) \mathbf{u} = -\nabla P + \mathbf{F}_S + \mathbf{F}_B + \nabla \boldsymbol{\tau} \\ \nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \end{cases} \quad (2.68)$$

où $(\mathbf{J} \cdot \nabla) \mathbf{u}$ est un terme supplémentaire dans les équations de Navier–Stokes avec \mathbf{J} le flux de masse associé au paramètre d'ordre ϕ .

TABLEAU 2.2 : Propriétés physiques typiques du corium et de l'eau [12].

Phase	Oxide	Métallique	Eau à 25°C, 1bar
Viscosité cinématique typique (m^2s^{-1})	5×10^{-7}	5×10^{-7}	8.9×10^{-7}
Masse volumique ρ ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$)	8000	7000	997

Dans le cas du corium en cuve, certaines hypothèses sont utilisées vis-à-vis de ses propriétés physiques dans le Tableau 2.2. En ordre de grandeur, la viscosité cinématique typique de la phase oxyde est comparable à celle de la phase métallique. Il n'y a donc pas de contraste de viscosité important. Par ailleurs, l'écart relatif de masse volumique entre les deux phases est faible *i.e.* $\frac{\Delta\rho}{\rho} \ll 1$. L'hypothèse d'approximation de Boussinesq peut alors être utilisée. En conséquence, la distinction entre les modèles précédents disparaît et les équations de CHNS s'écrivent pour un système multicomposant :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial\phi_i}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla\phi_i = \nabla \cdot \left(\sum_{j=1}^{N_c} \mathcal{M}_{i,j}^* \nabla\tilde{\mu}_j \right) \\ \tilde{\mu}_j = \lambda \left(\frac{\partial F_H}{\partial\phi_j} \right)_{\phi_l \neq j} - \sum_{l=1}^{N_c} \kappa_{j,l}^* \nabla^2\phi_l \\ \rho^* \left(\frac{\partial\mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla)\mathbf{u} \right) = -\nabla P + \sum_{i=1}^{N_c} \tilde{\mu}_i \nabla\phi_i + \rho(\phi_i)\mathbf{g} + \eta\Delta\mathbf{u} \\ \nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \end{array} \right. \quad (2.69)$$

avec ρ^* une masse volumique de référence, $\rho(\phi_i)$ désigne la loi de densité et η la viscosité dynamique⁶.

2.3 Synthèse du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons présenté dans un premier temps un panorama des méthodes numériques communément utilisées dans la littérature pour modéliser les interfaces dans un domaine fluide. On peut classer ces méthodes selon la manière dont on suit l'interface (méthodes de suivi ou de capture d'interface) et selon que l'interface possède une épaisseur ou non (modèle à interface raide ou à interface diffuse). Dans cette thèse, au vu de la nature de notre problème et des travaux antérieurs, le choix s'est porté sur la méthode du champ de phase qui est une méthode de capture d'interface et à interface diffuse pour décrire le comportement du corium en cuve. Cette méthode du champ de phase est compatible avec la CFD et permet de capturer à la fois les phénomènes thermochimiques et hydrodynamiques. Le lien avec la thermodynamique est direct et permet l'utilisation d'une base thermodynamique pour obtenir les fermetures du modèle.

6. L'hypothèse sur la viscosité constante est utilisée dans la suite du manuscrit mais l'implémentation dans le code CFD (voir dans le Chapitre 4) n'est pas limitée à cette hypothèse.

Dans un second temps, nous avons discuté de la méthode du champ de phase en donnant une description générale de la méthode et en abordant la notion de fonctionnelle d'énergie libre et de paramètres d'ordre. Dans la méthode du champ de phase, l'évolution du système est décrite par l'équation de Cahn–Hilliard pour les paramètres d'ordre conservés et par l'équation d'Allen–Cahn pour les paramètres d'ordre non conservés. Pour être plus clair dans le raisonnement, nous avons considéré en premier lieu le cas d'un système binaire (à un seul paramètre d'ordre) avant de traiter le cas multicomposant. Les paramètres cinétiques et les paramètres d'interface sont relativement facile à définir dans le cas d'un système binaire mais il s'avère plus complexe dans le cas multicomposant.

Enfin, dans la dernière partie du chapitre, nous avons traité le couplage du modèle de Cahn–Hilliard avec les équations de Navier–Stokes pour prendre en compte des effets hydrodynamiques. La méthode du champ de phase étant un modèle à un fluide, alors, un seul ensemble d'équations de Navier–Stokes est nécessaire pour décrire l'écoulement dans tout le domaine.

CHAPITRE 3

DIFFUSION MULTICOMPOSANT DANS LE SYSTÈME TERNAIRE U-O-ZR

Un des objectifs de cette thèse est d'apporter des éléments de réponses aux questions qui étaient restées en suspens dans la thèse de C. Cardon [57] en particulier sur la diffusion multicomposant des espèces chimiques dans le système ternaire et quaternaire. Pour y répondre, nous nous intéressons au cas "le plus simple" dans le contexte du corium *i.e.* le système ternaire U-O-Zr dans ce chapitre qui sera structuré comme suit : tout d'abord, nous discutons en premier lieu de la description thermodynamique d'un tel système U-O-Zr avant de modéliser la diffusion multicomposant par le champ de phase. Puis, nous présentons les différents cas d'étude ainsi que les différentes questions posées vis-à-vis des profils de composition et de l'adsorption d'interface. Ensuite, nous discutons des résultats et apportons des éléments de réponses par rapport à ces questions. Enfin, dans la dernière partie du chapitre, nous proposons une expression analytique de l'énergie libre pour l'étude de la stratification du corium en cuve.

Il est important de préciser que toutes les études présentées dans ce chapitre ont été effectuées dans le cas isotherme en 1D à l'aide du code maquette développé dans la thèse de C. Cardon et étendu au cours de la présente thèse dans la plateforme logicielle PROCOR [59].

3.1 Le système U-O-Zr

Dans cette section, nous présentons dans un premier temps l'énergie libre de Gibbs dans un système U-O-Zr, en particulier la méthode de calculs d'équilibre thermodynamique et les modèles existants pour écrire les termes de l'énergie libre de Gibbs ainsi que les notations utilisées dans ce chapitre. Puis dans un second temps, nous discutons de l'hypothèse d'équilibre local afin de pouvoir décrire le système à partir de deux variables conservées uniquement.

3.1.1 Description thermodynamique du système

La méthode du champ de phase se base sur la thermodynamique, en particulier la fonctionnelle d'énergie via l'énergie libre de Gibbs pour une bonne description du système. Du point de vue thermodynamique, cette énergie libre de Gibbs est une grandeur permettant de décrire les équilibres de phases dans un système multicomposant et constitue une des données d'entrée d'une modélisation par champ de phase. Une base thermodynamique construite à l'aide de la méthode CALPHAD (CALculation of PHase Diagram) [123] permet au travers des calculs d'équilibre thermodynamique de modéliser le diagramme de phase et de déterminer cette énergie libre de Gibbs pour chacune des phases. Étant une grandeur extensive, l'énergie libre de Gibbs total G^{tot} du système s'obtient par

$$G^{tot} = \sum_{\theta} n_{\theta} G^{\theta} \quad (3.1)$$

avec n_{θ} la fraction de volume occupé par la phase θ dans le système et G^{θ} l'énergie libre de Gibbs de la phase θ donné par

$$G^{\theta} = {}^{ref}G^{\theta} + {}^{ex}G^{\theta} + {}^{id}G^{\theta} + {}^{phy}G^{\theta} \quad (3.2)$$

où ${}^{ref}G^{\theta}$ l'énergie libre de référence, ${}^{ex}G^{\theta}$ le terme d'excès dans l'énergie de Gibbs, ${}^{id}G^{\theta}$ l'entropie du mélange dans le système et ${}^{phy}G^{\theta}$ la contribution éventuelle à l'énergie libre de Gibbs des autres propriétés physiques (par exemple les propriétés magnétiques) .

Les différents termes dans Eq. 3.2, en particulier ${}^{ref}G^{\theta}$ et ${}^{ex}G^{\theta}$ sont obtenus à partir du modèle quasi-chimique [124, 125] ou d'un modèle issu du formalisme "Compound Energy Formalism" (CEF) [126]. Pour le corium, les deux principales bases, NUCLEA [127] et TAF-ID [128] existantes utilisent le formalisme CEF qui présente différents modèles

afin d'écrire les termes de l'énergie libre de Gibbs en fonction des compositions. Pour les liquides, ces bases utilisent deux modèles différents : le modèle associé pour la base NUCLEA [127] et le modèle du liquide ionique pour la base TAF-ID [128].

Comme dans la thèse de C. Cardon [57], nous avons utilisé la base NUCLEA construite avec le modèle associé. Elle est directement liée à la plateforme PROCOR (PROpagation of CORium) [59] dans laquelle nous développons le modèle du champ de phase pour la compréhension de la stratification du corium en cuve. Pour ce modèle associé, l'énergie libre des phases est décrite à partir d'un seul sous réseau qui prend en compte l'interaction à courte distance entre les éléments pour former des constituants. En l'occurrence, pour un système composé des éléments U, Zr et O, les constituants formés dans le sous réseau sont composés de $\{U, Zr, O, UO_2 \text{ et } ZrO_2\}$. Dans le cas du modèle associé, ces constituants correspondent à la notion de "end members" servant à construire l'énergie libre de Gibbs. Nous nous limitons à cette succincte présentation du formalisme CEF. Pour plus de détails, on peut se référer au chapitre 5 du livre de Lukas *et al.* [123].

Dans la suite, nous utilisons les notations suivantes pour plus de clarté :

- $\{x_i\}_{i \in \mathcal{E}}$ pour les fractions molaires des éléments i dans l'ensemble des éléments $\mathcal{E} = \{U, O, Zr\}$ tels que

$$\sum_{i \in \mathcal{E}} x_i = 1 \quad (3.3)$$

- $\{y_i\}_{i \in \mathcal{S}}$ pour les fractions molaires des constituants (qui sont également des "end members") i dans l'ensemble $\mathcal{S} = \{UO_2, ZrO_2, U, Zr, O\}$ du système avec

$$\sum_{i \in \mathcal{S}} y_i = 1 \quad (3.4)$$

- l'énergie libre molaire des constituants G_M^{liq} (en $J \cdot mol^{-1}$) est donnée par

$$G_m^{liq} : \{y_i\}_{i \in \mathcal{S}} \mapsto G \quad (3.5)$$

Avec les contraintes sur les fractions molaires des éléments et des constituants en Eqs. 3.3 et 3.4, on peut réduire le degré de liberté du système en substituant la composition y_k par $\left(1 - \sum_{i \neq k} y_i\right)$ tel que k est un constituant arbitraire. Nous faisons le choix de substituer le constituant UO_2 et le système réduit obtenu est donné par $\tilde{\mathcal{S}} = \{ZrO_2, U, Zr, O\}$. L'énergie libre molaire de Gibbs des constituants devient $\tilde{G}_m^{liq}(y_{ZrO_2}, y_U, y_{Zr}, y_O)$.

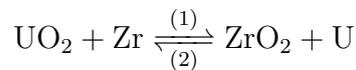
3.1.2 Hypothèse d'équilibre local

Tout d'abord, on se place dans le cas où O est sous stœchiométrique. Le calcul d'équilibre thermodynamique réalisé avec `OpenCalphad` [129]¹ montre que le système est dépourvu d'oxygène libre à l'équilibre thermodynamique *i.e.* $y_O = 0$ (les fractions d'oxygène libre de l'ordre de 10^{-6} dans le Tableau 3.1 correspondent à la convergence numérique de l'algorithme de minimisation). Sous cette condition, l'état thermodynamique du système est complètement défini par les trois compositions : y_U , y_{Zr} et y_{ZrO_2} qui sont des variables non conservées. Comme les fractions molaires x_U et x_{Zr} dépendent des fractions molaires y_j où $j \in \{ZrO_2, U, Zr\}$, la seule connaissance des compositions x_U et x_{Zr} ne permet pas de décrire tout le système. Une relation supplémentaire sur la quantité y_{ZrO_2} est nécessaire pour fermer le système.

TABLEAU 3.1 : Fraction molaire des espèces $y_i^{\alpha,eq}$ à l'équilibre thermodynamique pour $x_U = 0.35$, $x_{Zr} = 0.25$ et $T = 3000K$ dans la lacune de miscibilité.

Phase α	$y_{UO_2}^{\alpha,eq}$	$y_{ZrO_2}^{\alpha,eq}$	$y_U^{\alpha,eq}$	$y_{Zr}^{\alpha,eq}$	$y_O^{\alpha,eq}$
oxyde	0.363	0.156	0.222	0.259	$<5.0 \times 10^{-6}$
métallique	0.046	0.066	0.463	0.425	$<5.0 \times 10^{-7}$

L'énergie libre molaire de Gibbs s'écrit comme $\tilde{G}_m^{liq}(x_U, x_{Zr}, y_{ZrO_2})$ et le système est décrit uniquement par les variables conservées x_U , x_{Zr} et non-conservée y_{ZrO_2} . L'évolution des variables conservées x_U , x_{Zr} est naturellement obtenue à partir des équations de Cahn–Hilliard. Pour la variable non-conservée y_{ZrO_2} , son évolution peut être obtenue à partir de l'hypothèse d'équilibre local. En effet, ce degré de liberté supplémentaire associé à y_{ZrO_2} provient du fait que le transfert de masse des composants entre les deux phases dans la lacune de miscibilité d'un tel système sous-oxydé peut induire des modifications de l'équilibre local de la réaction d'oxydo-réduction (redox)



où le sens (1) est associé à la réduction de UO_2 par le Zr et le sens (2) correspond à l'oxydation de l'uranium métallique U. L'évolution temporelle de ZrO_2 doit donc suivre un modèle cinétique de réaction locale mais la formulation d'un tel modèle pour y_{ZrO_2} nécessiterait de connaître la constante cinétique de la réaction chimique d'oxydo-réduction.

1. `OpenCalphad` est un logiciel de calcul d'équilibre thermodynamique basé sur la méthode CALPHAD.

Dans la littérature, des expériences antérieures portant sur l'oxydation du corium par une atmosphère gazeuse, comme indiqué dans [130, 131] ont montré que le processus d'oxydation est limité par l'apport des espèces oxydantes et non pas par cette cinétique de la réaction chimique. En d'autres termes, la connaissance de cette constante cinétique de réaction n'est plus indispensable car la réaction d'échange de l'oxygène entre l'uranium et le zirconium s'effectue à l'équilibre chimique local instantané. Nous pouvons faire l'approximation que cet équilibre local de la réaction redox est maintenu à tout moment. Ceci est cohérent avec le fait que les mécanismes locaux d'échange d'oxygène associés se produisent à l'échelle atomique et garantissent l'ensemble des contraintes telles que la positivité des fractions molaires, la cohérence avec le système binaire dans une configuration initiale où il y a uniquement les espèces oxydées dans la phase oxyde et les espèces U et Zr dans la phase métallique comme en Figure 3.3.

Cette hypothèse d'équilibre local instantané de la réaction d'oxydo-réduction se traduit par

$$\frac{\partial \tilde{G}^{liq}}{\partial y_{ZrO_2}}(x_U, x_{Zr}, y_{ZrO_2}) = 0 \quad (3.6)$$

La résolution de cette équation revient à trouver les valeurs de x_U et x_{Zr} où la dérivée partielle de \tilde{G}^{liq} par rapport à y_{ZrO_2} est nulle. Une telle fonction peut se résoudre numériquement à partir de la méthode de Brent [132] au travers de l'algorithme de recherche de zéro. La Figure 3.1 montre l'évaluation numérique de y_{ZrO_2} dans le plan (x_U, x_{Zr}) dans son domaine d'existence. La limite supérieure $x_U + x_{Zr} = 1$ découle de l'Eq. 3.3 dans le cas où le système ne contient que les éléments métalliques U et Zr. La limite inférieure $x_U + x_{Zr} = \frac{1}{3}$ vient du fait que le système est dépourvu d'oxygène libre, donc la somme $x_U + x_{Zr}$ ne peut être inférieure à $\frac{1}{3}$.

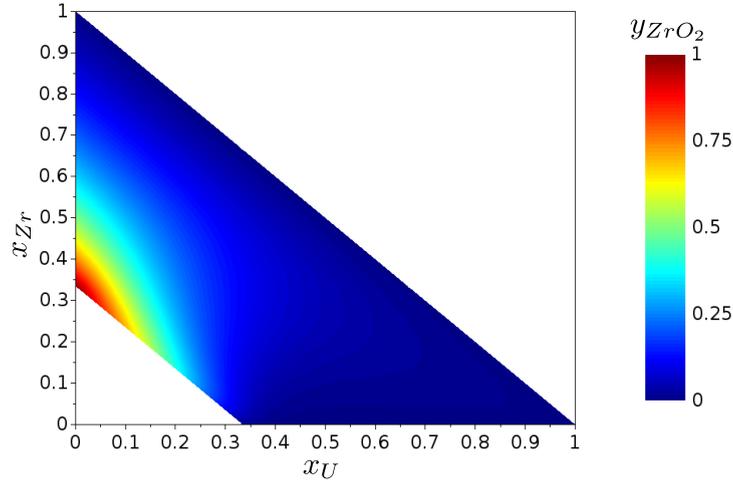


FIGURE 3.1 : Valeurs de $y_{ZrO_2} = Y_{ZrO_2}^{eq}(x_U, x_{Zr})$ associé à l'équilibre de la réaction d'oxydo-réduction dans le système U-O-Zr.

3.2 Système d'équations

Sous l'hypothèse d'équilibre local, la seule connaissance de x_U et x_{Zr} permet de décrire tout le système. L'évolution de ces variables conservées est donnée par les équations de Cahn–Hilliard. Dans cette section, nous présentons dans un premier temps ces équations de Cahn–Hilliard pour un système ternaire. Puis, dans un second temps, nous discutons des différents paramètres associés à ces équations, en particulier la mobilité et les coefficients de gradient.

Dans tout ce chapitre, pour des raisons de simplification, nous adoptons les notations ε et κ pour désigner l'épaisseur d'interface numérique $\varepsilon^* = \frac{\varepsilon}{\lambda}$ et le coefficient de gradient $\kappa^* = \frac{\kappa}{\lambda}$ du chapitre 2 lorsqu'on considère le paramètre d'*upscaling* λ .

3.2.1 Cahn–Hilliard ternaire

L'évolution de x_U et x_{Zr} est régie par les équations de Cahn–Hilliard :

$$\frac{\partial x_i}{\partial t} = \nabla \cdot \left(\sum_{j \in \{U, Zr\}} \frac{M_{i,j}}{\lambda} \nabla \tilde{\mu}_j \right) \quad (3.7)$$

$$\tilde{\mu}_i = \frac{\lambda}{V_m} \frac{\partial \bar{G}^{liq}}{\partial x_i} - \sum_{j \in \{U, Zr\}} \kappa_{i,j} \Delta x_j \quad (3.8)$$

tels que $\forall i \in \{U, Zr\}$, on a $\{\mathcal{M}_{i,j}\}_{i,j \in \{U, Zr\}}$ les coefficients de la matrice mobilité, x_i la fraction molaire, $\tilde{\mu}_j$ le potentiel de diffusion, $\frac{\partial \bar{G}^{liq}}{\partial x_i}$ le terme non linéaire dans le potentiel chimique issue de la dérivée de l'énergie libre de Gibbs par rapport au paramètre d'ordre x_i , λ un paramètre d'*upscaling* qui permet de traiter l'interface à une échelle plus large que l'interface physique (voir Chapitre 2), V_m le volume molaire supposé constant et $\{\kappa_{i,j}\}_{i,j \in \{U, Zr\}}$ les coefficients de gradient $\bar{\kappa}$.

3.2.2 Mobilité

Dans ce travail, afin de garantir que les fractions molaires calculées sont maintenues dans un intervalle ayant un sens physique dans tout le domaine et à tout moment, nous avons choisi d'utiliser la mobilité dégénérée de la même forme que l'Eq. 2.59 :

$$\mathcal{M}_{i,j} = V_m \sum_{k \in \{U, Zr, O\}} (\delta_{j,k} - x_j)(\delta_{i,k} - x_i)x_k M_k \quad (3.9)$$

avec δ le symbole de Kronecker, V_m le volume molaire et M_k la mobilité atomique. Dans le système U-O-Zr, les mobilités atomiques M_k ne sont pas disponibles dans la littérature mais peuvent être obtenues par

$$M_k = \frac{D_k}{RT} \quad (3.10)$$

avec $R = 8.314 \text{ JK}^{-1} \text{ mol}^{-1}$ la constante des gaz parfait, T la température exprimée en Kelvin et D_k les coefficients d'auto-diffusion issus du calcul de dynamique moléculaire. Dans le cas du système U-O-Zr, seules les données de coefficients d'auto-diffusion de l'uranium et de l'oxygène issues des simulations de dynamique moléculaire de l' UO_2 à l'état liquide sont disponibles [133]. Pour le coefficient D_{Zr} , nous considérons qu'il a la même valeur que D_U par le fait que le rayon atomique r_U de l'uranium et celui de Zr sont assez proches ($r_U = 1.65 \pm 0.12 \text{ \AA}$ et $r_{Zr} = 1.55 \pm 0.12 \text{ \AA}$). À titre informatif, le rayon atomique de l'oxygène est $r_O = 0.65 \pm 0.12 \text{ \AA}$. Cela est assez éloigné des ceux des deux autres éléments. Finalement, à $T = 3150 \text{ K}$, nous avons les coefficients $D_U = D_{Zr} = 1.9 \times 10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ et $D_O = 3.5 \times 10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$.

Des tests de vérification vis-à-vis de la cohérence avec le système binaire U-O, U-Zr et Zr-O ont été rapportés dans la thèse de C. Cardon [57]. Il a été observé que la forme des mobilités en Eq. 3.9 permet d'assurer cette cohérence typiquement dans le cas du système binaire U-Zr, le modèle devrait assurer qu'il n'y a pas d'élément oxygène dans le système et les deux équations de Cahn–Hilliard devrait satisfaire $\frac{\partial x_U}{\partial t} = - \frac{\partial x_{Zr}}{\partial t}$. Ceci

donne $\mathcal{M}_{U,U} = -\mathcal{M}_{U,Zr} = -\mathcal{M}_{Zr,U} = \mathcal{M}_{Zr,Zr}$ dans le plan ($x_O = 0$) et nous pouvons vérifier facilement que l'Eq. 3.9 satisfait ces contraintes. Pour le calcul des configurations d'équilibre qui va suivre, le choix des mobilités n'a pas d'effet sur les profils d'interface.

3.2.3 Paramètres d'interface

Comme évoqué dans le précédent chapitre, une des difficultés de la méthode du champ de phase particulièrement dans le cas d'un système multicomposant $n > 2$ -aire est le paramétrage du modèle. Avec un paysage issu de CALPHAD, nous ne pouvons plus exprimer de façon analytique la tension de surface σ et l'épaisseur d'interface numérique ε_i en fonction uniquement des coefficients de gradient $\kappa_{i,j}$ et du paramètre d'*upscaling* λ comme dans le cas binaire.

Dans l'optique d'une modélisation à l'échelle de la CFD, l'interface considérée est de l'ordre du mm/cm tandis que l'interface physique est de l'ordre du nanomètre. Par conséquent, il faudra passer par le système binaire pour "caler" ce paramètre λ . Par ailleurs, la cohérence de ces paramètres vis-à-vis du système binaire devrait également être assurée. L'étude du cas binaire U-O est rapporté dans [49] et est considéré comme notre cas de référence binaire pour la construction du système ternaire U-O-Zr. L'idée est d'utiliser les paramètres de l'interface obtenus dans cette étude pour construire le système ternaire tout en assurant la cohérence avec le binaire. En d'autres termes, en ne considérant qu'un seul paramètre d'ordre dans le système ternaire (les autres paramètres étant nuls), on devrait retomber sur le même résultat qu'un système binaire avec une seule équation. Typiquement, dans le cas d'un système U-O, imposer $\mathcal{M}_{U,Zr} = \mathcal{M}_{Zr,U} = \mathcal{M}_{Zr,Zr} = 0$ revient à réduire le système d'équations en Eqs. 3.7 et 3.8 à :

$$\frac{\partial x_U}{\partial t} = \nabla \cdot \left(\frac{\mathcal{M}_{U,U}}{\lambda} \nabla \tilde{\mu}_U \right) \quad (3.11)$$

$$\tilde{\mu}_U = \frac{\lambda}{V_m} \frac{\partial \bar{G}^{liq}}{\partial x_U} - \kappa_{U,U} \Delta x_U \quad (3.12)$$

Dans ce cas, comme mentionné dans le chapitre 2 en Eqs. 2.30 et 2.36, la tension de surface σ et l'épaisseur d'interface numérique ε sont définies en 1D comme :

$$\sigma = \kappa_{U,U} \int_{\Omega} \left(\frac{dx_U}{dz} \right)^2 dz \quad (3.13)$$

$$\varepsilon = \frac{1}{\lambda} \frac{|x_U^{met,eq} - x_U^{ox,eq}|}{\max_{z \in \Omega} \left(\left| \frac{dx_U}{dz} \right| \right)} \quad (3.14)$$

soit

$$\sigma = \sqrt{2\lambda\kappa_{U,U}} A_{\sigma}^{eq} \quad (3.15)$$

$$\varepsilon = \sqrt{\frac{\kappa_{U,U}}{2\lambda}} A_{\varepsilon}^{eq} \quad (3.16)$$

avec A_{ε}^{eq} et A_{σ}^{eq} sont des constantes dépendant des compositions de U à l'équilibre. On peut donc facilement obtenir les paramètres $\kappa_{U,U}$ et λ par :

$$\kappa_{U,U} = \sigma \varepsilon \frac{1}{A_{\varepsilon}^{eq} A_{\sigma}^{eq}} \quad (3.17)$$

$$\lambda = \frac{\sigma}{\varepsilon} \frac{A_{\varepsilon}^{eq}}{2A_{\sigma}^{eq}} \quad (3.18)$$

Ici, σ est la tension de surface du système binaire U-O [49], soit σ_{UO} évalué à partir du modèle de Girifalco [134] sous l'hypothèse du volume molaire constant

$$\sigma_{UO} = \sigma_{UO_2/G} + \sigma_{U/G} - 2\sqrt{\sigma_{UO_2/G}\sigma_{U/G}} \quad (3.19)$$

avec $\sigma_{UO_2/G}$ (resp. $\sigma_{U/G}$) est la tension de surface pour l'interface UO_2 liquide et le gaz (resp. de U et le gaz) obtenue dans la littérature [135]. À $T \simeq 3000K$, la tension de surface est $\sigma_{UO} = 0.1N.m^{-1}$.

À ce stade, en fixant une tension de surface et une épaisseur d'interface numérique ε , nous pouvons déterminer λ et $\kappa_{U,U}$ mais il reste encore à définir $\kappa_{Zr,Zr}$ et $\kappa_{U,Zr} = \kappa_{Zr,U}$. Dans la suite, nous construisons la matrice $\bar{\kappa}$ à partir de $\kappa_{U,U}$ et observons l'influence de cette matrice de gradient d'énergie sur les profils d'interface.

3.3 Cas d'étude

Afin de pouvoir analyser cette séparation de phase dans le système U-O-Zr et le transfert de masse qui s'y opère, nous avons défini trois configurations selon les inventaires initiaux dans la lacune de miscibilité tels que

- le *cas n°1* est situé dans la région centrale du diagramme de phase où la quantité d'uranium et celle de zirconium sont à peu près équivalentes,
- le *cas n°2* se trouve dans la région où l'uranium est majoritaire par rapport au zirconium correspondant à la région proche du cas limite binaire U-O et
- le *cas n°3* se trouve dans la région où le zirconium est majoritaire par rapport à l'uranium correspondant à la région proche du point critique.

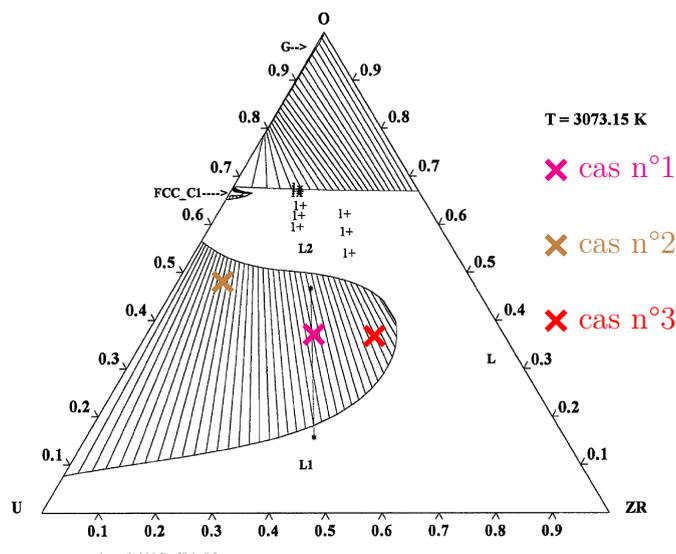


FIGURE 3.2 : Diagramme de phase du système ternaire U-O-Zr à température $T = 3073.15\text{K}$ et pression $P=1\text{bar}$ (figure adaptée de [6]) ainsi que les positions des 3 cas de configuration considérés. Les zones “hachurées” désignent la lacune de miscibilité du système et les lignes joignant les deux extrémités représentent les conodes (tie-line).

Les valeurs des compositions initiales des différentes configurations sont répertoriées dans le Tableau 3.2. Le domaine de simulation 1D est de taille L où l'état initial du système correspond à une phase oxyde au-dessus d'une phase métallique séparée par une interface plane comme montré en Figure 3.3.

TABLEAU 3.2 : Paramètres définissant l'état initial du système pour les 3 cas.

cas	phase oxyde		phase métallique		taille L (10 ⁻² m)
	x_U	x_{Zr}	x_U	x_{Zr}	
n°1	0.209	0.125	0.506	0.494	4.71
n°2	0.313	0.020	0.735	0.265	8.4
n°3	0.123	0.210	0.390	0.610	10.17

Dans toutes les simulations, la température est fixée à $T = 3000\text{K}$ et la tension de surface $\sigma_{UO} = 0.1\text{N.m}^{-1}$. Dans la suite, pour la clarté du document, tous les profils de composition sont présentés par rapport à la variable adimensionnée $z^* = \frac{z}{L}$.

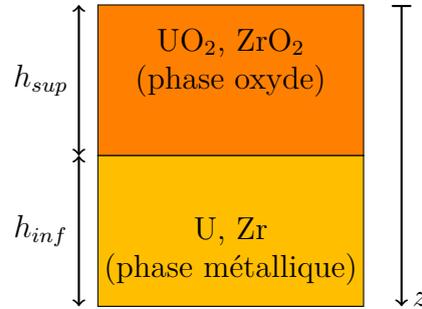


FIGURE 3.3 : Schéma en 1D du système initial.

La matrice gradient d'énergie $\bar{\kappa}$ du système ternaire U-O-Zr s'écrit comme :

$$\bar{\kappa} = \begin{bmatrix} \kappa_{U,U} & \kappa_{U,Zr} \\ \kappa_{Zr,U} & \kappa_{Zr,Zr} \end{bmatrix} \quad (3.20)$$

avec $\kappa_{U,Zr} = \kappa_{Zr,U}$ et $\kappa_{U,U}$ le coefficient de gradient d'énergie obtenu à partir du système binaire U-O. Il s'agit du seul coefficient parmi les 3 coefficients indépendants de $\bar{\kappa}$ qu'on peut obtenir au préalable via le système binaire U-O afin de garder la cohérence du système ternaire avec le binaire. De ce fait, la matrice gradient d'énergie $\bar{\kappa}$ est construite à partir du coefficient $\kappa_{U,U}$. Dans les deux sous-sections suivantes, nous reproduisons les résultats obtenus dans la thèse de C. Cardon [57] et analysons les profils de composition des éléments U et Zr à l'état d'équilibre afin d'illustrer les questions qui restaient en suspens avant d'y répondre dans la suite.

3.3.1 Non monotonie des profils de composition à l'interface

Avant toute chose, nous précisons que dans toutes les figures de profils de composition présentées dans ce chapitre, la région métallique se trouve à droite et correspond à une faible valeur de x_O .

Dans un premier temps, nous avons pris quelques formes du gradient d'énergie avec la même épaisseur d'interface numérique $\varepsilon = 4\text{mm}$ et montrons sur les Figure 3.4, Figure 3.5 et Figure 3.6 les profils de composition des éléments U et Zr à l'état stationnaire avec ces différentes valeurs de $\bar{\kappa}$ pour les 3 cas d'étude mentionnés dans le Tableau 3.2.

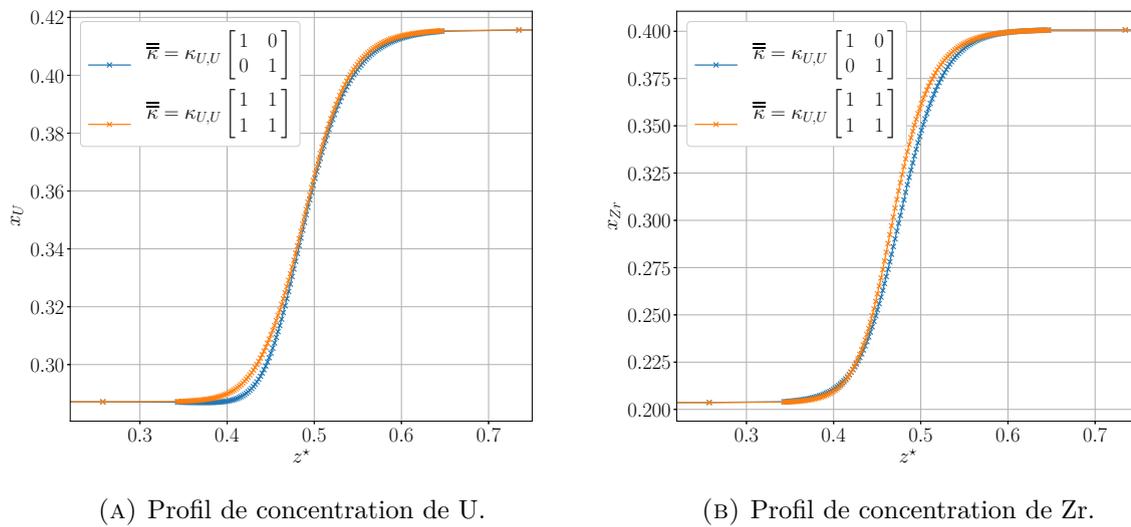
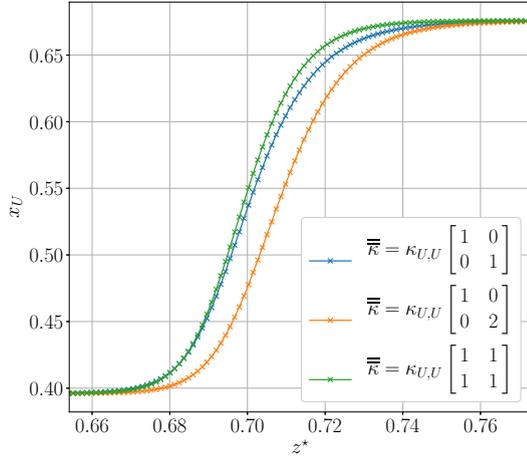
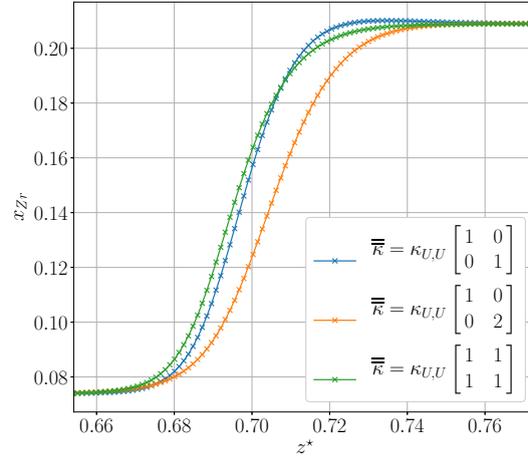


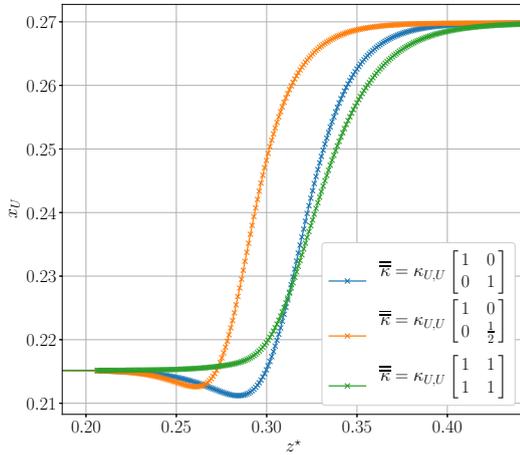
FIGURE 3.4 : Profils de concentration des éléments U et Zr à l'état stationnaire pour le cas n°1 pour différentes formes de $\bar{\kappa}$.



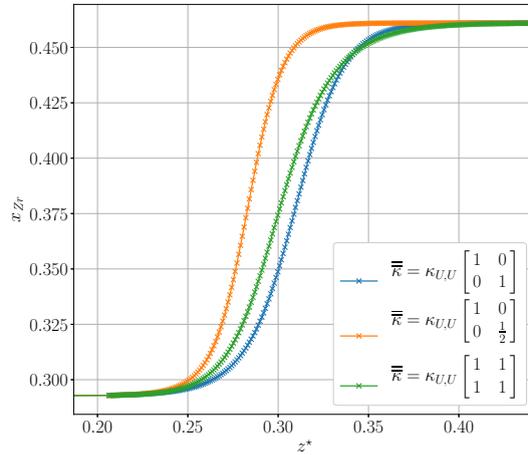
(A) Profil de concentration de U.



(B) Profil de concentration de Zr.

FIGURE 3.5 : Profils de concentration des éléments U et Zr à l'état stationnaire pour le cas n°2 pour différentes formes de $\bar{\kappa}$.

(A) Profil de concentration de U.



(B) Profil de concentration de Zr.

FIGURE 3.6 : Profils de concentration des éléments U et Zr à l'état stationnaire pour le cas n°3 pour différentes formes de $\bar{\kappa}$.

Ces figures montrent que des comportements différents du profil de composition peuvent apparaître suivant la forme de $\bar{\kappa}$, en particulier pour les cas n°2 et n°3. À l'état stationnaire, lorsque $\bar{\kappa} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix}$, on remarque un léger enrichissement en Zr dans la phase métallique pour le cas n°2 et un appauvrissement en U dans la phase oxyde pour

le cas n°3. Cette non monotonie a déjà pu être observée dans [136] où des profils non monotones peuvent apparaître suivant la valeur du paramètre de régularisation dans la fonctionnelle d'énergie dans le modèle de Cahn–Hilliard ou dans [137] sur l'étude de stabilité des phases à l'interface $\text{UO}_2/\beta\text{Zr}$ dans le système U-O-Zr. À l'échelle microscopique, ce comportement représente un phénomène physique mais à l'échelle de notre modélisation (avec l'élargissement d'interface), il peut induire des comportements non physiques. En effet, dans l'optique du couplage avec l'hydrodynamique, ce comportement non-monotone du profil de composition peut devenir problématique pour la caractérisation des phénomènes hydrodynamiques dans le sens où il peut conduire à des profils de masse volumique non monotones qui induisent des instabilités hydrodynamiques à l'interface. Il va modifier le terme source dans les instabilités de Rayleigh–Taylor et peut transformer la dynamique générale lors du transitoire de stratification.

En outre, dans le cas n°1 correspondant à la zone centrale du diagramme de phase, ce comportement non monotone du profil de composition n'est pas observé pour les deux formes de $\bar{\kappa}$ considérées. Dans cette étude, nous ne nous limitons qu'au système ternaire U-O-Zr qui n'est qu'une étape vers le système minimal U-O-Zr-Fe représentatif du corium. Dans une gamme de composition d'intérêt dans le système quaternaire, une telle non-monotonie est également observée, en particulier pour l'élément Zr comme rapporté dans [57].

3.3.2 Ecart entre les positions d'interface en U et Zr

Par ailleurs, d'après les profils de composition présentés précédemment, les positions de l'interface en U et Zr sont légèrement décalées entre elles comme l'illustre la Figure 3.7. Dans une approximation idéale d'un modèle à interface raide, comme souhaité pour la description hydrodynamique, la position d'interface de chacun des éléments doit être identique, ce qui n'est pas le cas dans un modèle à interface diffuse notamment pour les systèmes multicomposants. En effet, la présence d'une telle différence est associée à l'adsorption d'interface, un phénomène d'accumulation d'un ou plusieurs composants à l'interface. En l'occurrence, une quantité de U ou de Zr est adsorbée à l'interface.

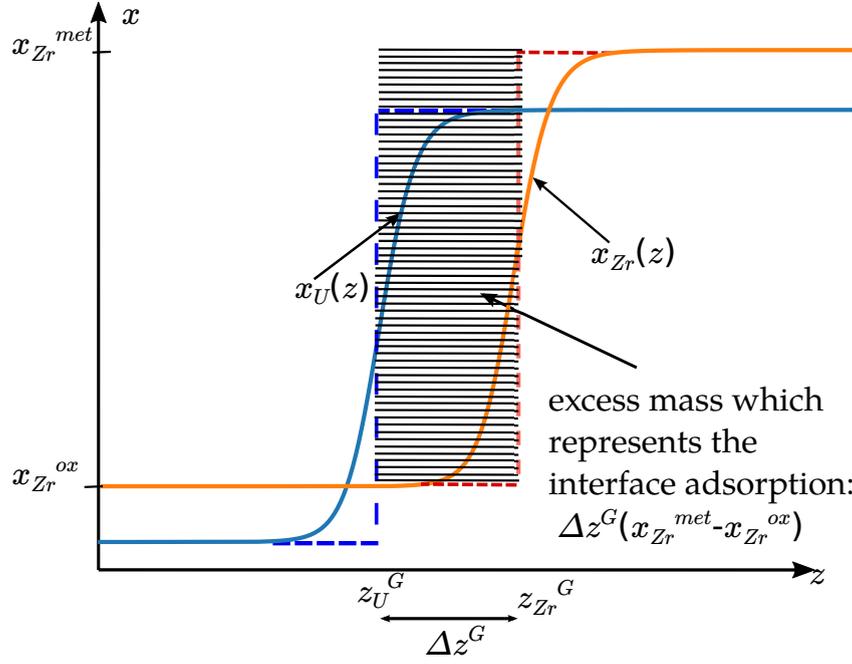


FIGURE 3.7 : Illustration du phénomène d'adsorption et des positions de l'interface dans les profils de composition en U et Zr.

Nous introduisons Δz^G comme l'écart entre la position de l'interface en U et celle en Zr, soit

$$\Delta z^G = z_U^G - z_{Zr}^G \quad (3.21)$$

avec z_U^G et z_{Zr}^G les positions de l'interface en U et Zr.

Afin d'expliquer cet écart, nous reprenons le profil de composition de l'élément i à l'équilibre thermodynamique et définissons \bar{x}_i comme la valeur moyenne de la fraction molaire de l'élément i par :

$$\bar{x}_i = \frac{1}{L} \int_0^L x_i dz \quad (3.22)$$

ce qui donne au sens de l'interface de Gibbs (\sim à interface raide)

$$\bar{x}_i = \frac{z_i^G}{L} x_i^{ox} + \frac{L - z_i^G}{L} x_i^{met} \quad (3.23)$$

Pour les éléments U et Zr, l'Eq. 3.23 s'écrit :

$$\bar{x}_U = \frac{z_U^G}{L} x_U^{ox,eq} + \left(1 - \frac{z_U^G}{L}\right) x_U^{met,eq} \quad (3.24)$$

$$\bar{x}_{Zr} = \frac{z_{Zr}^G}{L} x_{Zr}^{ox,eq} + \left(1 - \frac{z_{Zr}^G}{L}\right) x_{Zr}^{met,eq} \quad (3.25)$$

En prenant comme référence la position $z_{int} = z_U^G$ et en insérant l'écart Δz^G dans Eq. 3.25, on obtient

$$\bar{x}_{Zr} = \left[\frac{z_{int}}{L} x_{Zr}^{ox,eq} + \left(1 - \frac{z_{int}}{L}\right) x_{Zr}^{met,eq} \right] + \frac{\Delta z^G}{L} \left(x_{Zr}^{met,eq} - x_{Zr}^{ox,eq} \right) \quad (3.26)$$

L'écart Δz^G est bien mis en évidence dans Eq. 3.26, ce qui signifie que la position de l'interface en Zr est ainsi décalée de Δz^G par rapport à celle de U sur la conode dans le triangle de Gibbs. Ce décalage est absent (*i.e.* les positions de l'interface $z_U^G = z_{Zr}^G$) si et seulement si

$$\frac{z_{int}}{L} = \frac{\bar{x}_{Zr} - \bar{x}_U - (x_{Zr}^{met,eq} - x_U^{met,eq})}{(x_{Zr}^{ox,eq} - x_{Zr}^{met,eq}) - (x_U^{ox,eq} - x_U^{met,eq})} \quad (3.27)$$

Tout comme la non monotonie des profils, cet effet physique d'adsorption peut présenter un obstacle dans les simulations numériques par la CFD. Il devrait idéalement être supprimé ou du moins être réduit s'il devait être présent. La monotonie des profils sans adsorption (ou très faible adsorption) devient une condition nécessaire pour mener à bien ce couplage du modèle de Cahn–Hilliard avec l'hydrodynamique par la CFD. Le choix de la matrice $\bar{\kappa}$ devient d'une grande importance car il conditionne la monotonie et la quantité d'adsorption à l'interface.

Ces observations ont suscité des questions qui étaient restées sans réponse dans la thèse de C. Cardon [57]. Pour y répondre, nous proposons une investigation plus détaillée de ce problème en imposant comme conditions aux limites les potentiels chimiques à l'équilibre thermodynamique. Subséquemment, la résolution du système est simplifiée car l'on se place à l'état où loin de l'interface, les compositions sont à l'équilibre thermodynamique. Cela facilite l'exploration des possibilités de $\bar{\kappa}$ pour obtenir un choix optimal de $\bar{\kappa}$ pour notre modélisation.

3.4 Calcul stationnaire à potentiel imposé

Nous avons discuté des conditions aux limites de Dirichlet pour le potentiel de diffusion et des équations d'évolution à résoudre dans la première partie. Maintenant, nous abordons, dans cette section, l'adsorption d'interface dans un système multicomposant avant de détailler des différentes étapes pour la recherche du profil "optimal" pouvant satisfaire les conditions de monotonie avec une faible adsorption à l'interface. Dans la dernière partie, nous discutons des effets de ce choix sur les autres grandeurs physiques comme la tension de surface et le paysage thermodynamique.

3.4.1 Conditions aux limites

Une des conditions d'équilibre thermodynamique pour une coexistence de deux phases est l'égalité du potentiel de diffusion loin de la zone de l'interface. Pour un domaine de taille L , à l'état d'équilibre thermodynamique, cette condition se traduit par :

$$\tilde{\mu}_i(z=0) = \tilde{\mu}_i(z=L) = \tilde{\mu}_{eq} \quad (3.28)$$

avec $\tilde{\mu}_{eq}$ le potentiel de diffusion à l'équilibre thermodynamique qui reste constant dans tout le domaine (voir Annexe B). Les équations de Cahn–Hilliard à résoudre dans cette section sont

$$0 = \nabla \cdot \left(\sum_{j \in \{U, Zr\}} \frac{\mathcal{M}_{i,j}}{\lambda} \nabla \tilde{\mu}_j \right) \quad (3.29)$$

$$\tilde{\mu}_i = \frac{\lambda}{V_m} \frac{\partial \bar{G}^{liq}}{\partial x_i} - \sum_{j \in \{U, Zr\}} \kappa_{i,j} \Delta x_j \quad (3.30)$$

Imposer des conditions aux limites de type Dirichlet aux bords pour le potentiel de diffusion $\tilde{\mu}_i$ revient à résoudre uniquement l'Eq. 3.30 à l'état stationnaire de telle sorte que le système n'est plus fermé au sens des contraintes de conservation globale des compositions. Les conditions aux limites de Neumann homogène sont utilisées pour les paramètres d'ordre x_i soit :

$$\left. \frac{dx_i}{dz} \right|_{z=0} = \left. \frac{dx_i}{dz} \right|_{z=L} = 0 \quad (3.31)$$

Dans ce problème stationnaire à potentiel imposé, les potentiels de diffusion $\tilde{\mu}_i$ deviennent des données d'entrée introduites par l'utilisateur. Ils sont obtenus à partir des calculs d'équilibre *via* `OpenCalphad` tels qu'à l'équilibre thermodynamique :

$$\tilde{\mu}_i^{eq} = \frac{\lambda}{V_m} (\mu_i^{eq} - \mu_O^{eq}) \quad (3.32)$$

avec μ_i^{eq} et μ_O^{eq} sont respectivement les potentiels chimiques "standard" (voir Chapitre 2) de l'élément i et de l'élément O obtenus par calcul d'équilibre depuis `OpenCalphad`.

Tous les calculs présentés dans cette section sont obtenus à partir du modèle stationnaire de Cahn–Hilliard à potentiels imposés développé dans le cadre de cette thèse sur la plateforme `PROCOR` [59]. Dans la section suivante, nous discutons et apportons des éléments de réponses aux questions posées dans la section précédente, en particulier sur l'adsorption d'interface et la non-monotonie des profils d'interface.

3.4.2 Adsorption d'un composant à l'interface

Comme évoqué précédemment, l'excès de masse associé à l'écart Δz entre les positions de l'interface en U et en Zr représente l'adsorption d'interface. À titre d'exemple, pour le cas n°3 avec un gradient d'énergie de la forme $\bar{\kappa}_d = \kappa_{U,U} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix}$, les valeurs de z_U^G , z_{Zr}^G et l'écart Δz^G sont répertoriées dans le Tableau 3.3.

$\varepsilon(10^{-3}\text{m})$	2	4	8
z_U^G	0.027625	0.03367	0.04457
z_{Zr}^G	0.02648	0.03138	0.03999
Δz^G	0.001145	0.00229	0.00458
$\frac{\Delta z^G}{\varepsilon}$	0.5725	0.5725	0.5725

TABLEAU 3.3 : Valeurs des positions d'interface pour $\bar{\kappa}_d$.

Ce Tableau 3.3 montre que l'écart Δz^G est amplifié par la mise à l'échelle de l'interface. Du point de vue numérique, plus l'épaisseur d'interface est large, plus cet effet d'adsorption est important. En effet, il est important de noter que pour notre problème à potentiels de diffusion imposés, si l'on introduit le changement de variable $\tilde{z} = \frac{z}{\varepsilon}$ dans l'équation de Cahn–Hilliard en Eq. 3.30, on obtient un système d'équations pour x_U et x_{Zr} qui ne dépend plus directement de l'épaisseur de l'interface ε . En conséquence, la quantité

adimensionnelle associée $\Delta\tilde{z}^G = \frac{\Delta z^G}{\varepsilon}$ ne dépend que du paysage thermodynamique (au travers des $\tilde{\mu}_i$) et de la matrice $\bar{\kappa}$. Elle est constante comme le montre le Tableau 3.3. La dépendance linéaire associée de Δz^G à ε est illustrée à la Figure 3.8 pour les trois cas d'étude.

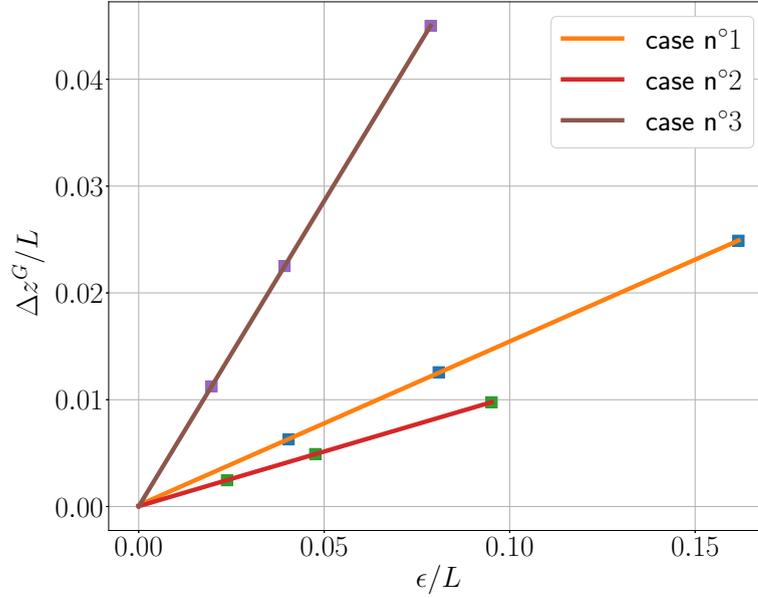


FIGURE 3.8 : Variation de l'écart entre la position de l'interface de U et celle de Zr Δz^G en fonction de ε/L pour les 3 cas d'étude avec $\bar{\kappa} = \bar{\kappa}_d$.

L'Eq. 3.26 peut donc s'écrire en fonction de $\Delta\tilde{z}^G$ comme

$$\bar{x}_{Zr} = \left[\frac{z_{int}}{L} x_{Zr}^{ox,eq} + \left(1 - \frac{z_{int}}{L}\right) x_{Zr}^{met,eq} \right] + \frac{\varepsilon}{L} \Delta\tilde{z}^G \left(x_{Zr}^{met,eq} - x_{Zr}^{ox,eq} \right) \quad (3.33)$$

Dans cette expression, le terme $\frac{\varepsilon}{L} \Delta\tilde{z}^G \left(x_{Zr}^{met,eq} - x_{Zr}^{ox,eq} \right)$ correspond à la contribution de l'adsorption de Zr à l'interface et qui varie linéairement avec $\frac{\varepsilon}{L}$. Pour un modèle à interface diffuse (*i.e.* avec une épaisseur d'interface $\varepsilon \neq 0$), cette adsorption d'interface est inévitable mais peut être minimisée au travers de $\Delta\tilde{z}^G$. Sachant que $\Delta\tilde{z}^G$ dépend uniquement de $\bar{\kappa}$ et du paysage thermodynamique au travers de $\tilde{\mu}$, $\Delta\tilde{z}^G$ devient une caractéristique du modèle. Pour notre problème à potentiel imposé, il est nécessaire de trouver la bonne forme de $\bar{\kappa}$ qui puisse à la fois donner des profils monotones et réduire $\Delta\tilde{z}^G$ le plus possible. Pour cela, afin de voir si les profils monotones riment obligatoirement avec faible adsorption ou non, nous comparons $\Delta\tilde{z}^G$ pour deux profils différents et obtenons

- pour $\bar{\kappa} = \kappa_{U,U} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix}$ correspondant à un profil non-monotone, $\Delta\tilde{z}^G = 0.572$ et
- pour $\bar{\kappa} = \kappa_{U,U} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 1 \end{bmatrix}$ correspondant à un profil monotone, $\Delta\tilde{z}^G = 0.77$.

Ces valeurs de $\Delta\tilde{z}^G$ indiquent *a priori* que non monotonie et faible Δz^G ne sont pas corrélés au sens où il existe un profil non monotone possédant un Δz^G plus faible que celui d'un profil monotone. Il faudrait par conséquent chercher un compromis afin d'obtenir un profil monotone de faible adsorption. Dans la suite, nous nous focalisons sur ces deux points : l'adsorption et la monotonie des profils afin de dégager un compromis sur le choix de $\bar{\kappa}$.

3.4.3 Recherche du profil optimal

Cette section s'intéresse à la procédure d'optimisation de $\bar{\kappa}$ afin de satisfaire les conditions de monotonie avec une faible adsorption. Pour cela, nous utilisons un simple paramétrage de $\bar{\kappa}$ par rotation afin d'explorer toutes les possibilités de la forme de la matrice et d'étudier les effets de $\bar{\kappa}$ sur l'adsorption. En effet, $\bar{\kappa}$ est une matrice symétrique positive, celle-ci est donc diagonalisable et peut être décomposée comme

$$\bar{\kappa} = \alpha R D R^T \quad (3.34)$$

tels que

$$R(\theta) = \begin{pmatrix} \cos \theta & -\sin \theta \\ \sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix} \quad (3.35)$$

$$D(d) = \begin{pmatrix} 2 & 0 \\ 0 & d \end{pmatrix} \quad (3.36)$$

$$\alpha = \frac{\kappa_{U,U}^{bin}}{2 \cos^2 \theta + d \sin^2 \theta} \quad (3.37)$$

avec R une matrice de rotation d'angle θ , R^T sa transposée, D une matrice diagonale et α un préfacteur choisi pour que $\bar{\kappa}$ soit cohérent avec $\kappa_{U,U}^{bin}$ du système binaire U-O.

En plus de $\kappa_{U,U}$, les deux paramètres d'entrée nécessaires pour construire $\bar{\kappa}$ sont le coefficient d et l'angle θ . Il est clair d'après Eq. 4.19 que $\bar{\kappa}$ est une fonction périodique de période π et qu'on peut restreindre $d \in [0, 2]$ sans perdre d'informations puisque

$\bar{\kappa}(\theta + \pi, 4/d) = \bar{\kappa}(\theta, d)$. Tenant compte de cela, nous faisons varier $d \in [0, 2]$ et $\theta \in [0, \pi]$ en enlevant la singularité (lorsque $d = 0$ pour $\theta = \frac{\pi}{2}$) due à l'expression de α afin de conserver la cohérence avec le binaire. Sans cette contrainte, la singularité serait absente.

Comme l'adsorption est inévitable dans le cas d'un modèle à interface diffuse, nous avons donc choisi la monotonie des profils de composition comme notre premier critère pour choisir $\bar{\kappa}$. En d'autres termes, nous recherchons d'abord toutes les valeurs de d et θ où les profils de composition sont monotones puis sélectionnons parmi ces valeurs le cas correspondant à la plus faible adsorption. Cela nécessite de réaliser des calculs pour toutes les valeurs de d et de θ , ce qui est assez contraignant au vu des valeurs possibles à considérer. Pour y arriver, nous procédons par quatre étapes :

1. On fait varier le paramètre $d \in [0, 2]$ pour un angle θ donné (par exemple $\theta = \frac{\pi}{4}$) afin d'identifier la gamme de d où les profils sont monotones ;
2. On compare les valeurs de $\Delta\tilde{z}^G$ dans l'intervalle de d obtenu dans l'étape 1 (les profils monotones) et on désigne par d_l la valeur de d correspondant au minimum de $\Delta\tilde{z}^G$;
3. On fait varier l'angle $\theta \in [0, \pi]$ pour $d = d_l$ de l'étape 2 afin d'identifier l'intervalle de θ où les profils sont monotones ;
4. Enfin, on compare $\Delta\tilde{z}^G$ dans l'intervalle de θ obtenu dans l'étape 3 avec $d = d_l$ et on désigne par θ_l la valeur de θ correspondant au minimum de $\Delta\tilde{z}^G$. Le choix optimal pour la construction de $\bar{\kappa}$ est $d = d_l$ et $\theta = \theta_l$.

Notons que la manière dont nous avons procédé avec ces quatre étapes ne permet pas forcément d'obtenir un minimum global. En effet, nous effectuons uniquement deux pas de minimisation dans le plan (d, θ) . En d'autres termes, il peut y avoir d'autres valeurs de d et de θ où le profil est monotone avec une plus petite adsorption que celui proposé. Cependant, cette procédure d'optimisation permet d'obtenir assez bien un profil optimal dans les gammes de d et θ considérées.

Dans la suite, nous discutons une à une de ces étapes pour *in fine* dégager les choix optimaux sur d et θ pour les cas n°2 et n°3 où l'on a observé des profils non monotones.

3.4.3.1 Etape 1 : Identification des profils monotones

Dans cette première étape, notre objectif est de trouver la gamme de d où les profils sont monotones pour un θ donné. Pour cela, nous avons choisi de fixer $\theta = \frac{\pi}{4}$ pour pouvoir

montrer les deux formes principales de $\bar{\kappa}$ qui sont $\bar{\kappa} = \kappa_{U,U} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 1 \end{bmatrix}$ pour $d = 0$ et $\theta = \frac{\pi}{4}$ et $\bar{\kappa} = \kappa_{U,U} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix}$ pour $d = 2$ et $\theta = \frac{\pi}{4}$. Les diverses simulations effectuées montrent que quelque soit la valeur de d , les profils de composition des éléments majoritaires (U pour le cas n°2 et Zr pour le cas n°3) restent monotones comme le montre les Figures 3.9a et 3.10b. Quant aux compositions minoritaires, suivant la valeur de d , les profils peuvent être monotones ou non monotones (Figures 3.9b et 3.10a). En effet, on constate d'après ces figures que l'augmentation de d favorise l'apparition de ces profils non monotones. En l'occurrence, pour $\theta = \frac{\pi}{4}$, ces non-monotonies s'observent à des valeurs de $d > 0.5$ pour le cas n°2 et $d > 0.2$ pour le cas n°3. Cela se traduit par l'existence d'une valeur seuil de d au dessus de laquelle tous les profils deviennent non-monotones indépendamment de θ .

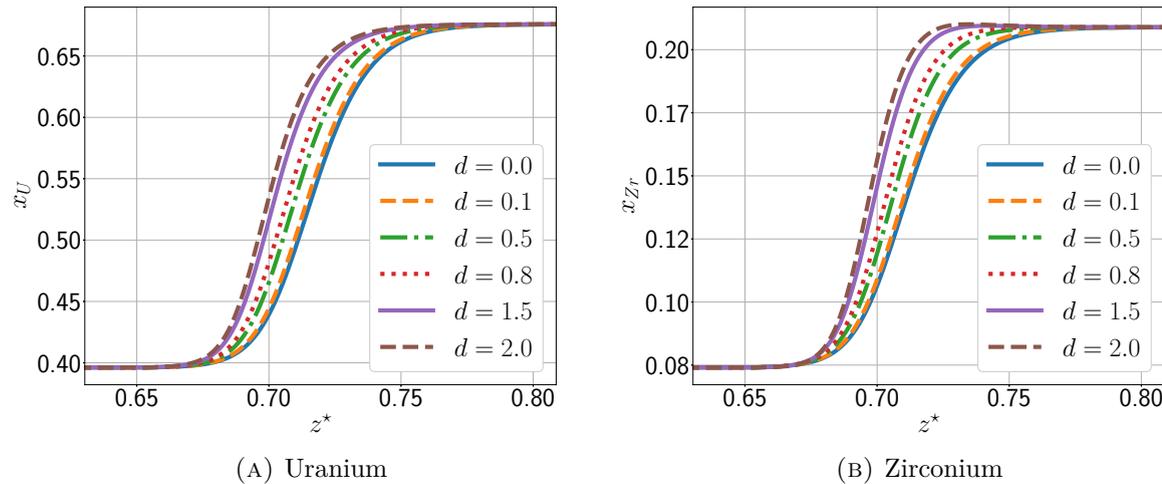


FIGURE 3.9 : Profils de composition en U et Zr à l'état stationnaire pour différentes valeurs de d tout en gardant $\theta = 45^\circ$ pour le cas n°2 avec $\varepsilon = 4\text{mm}$.

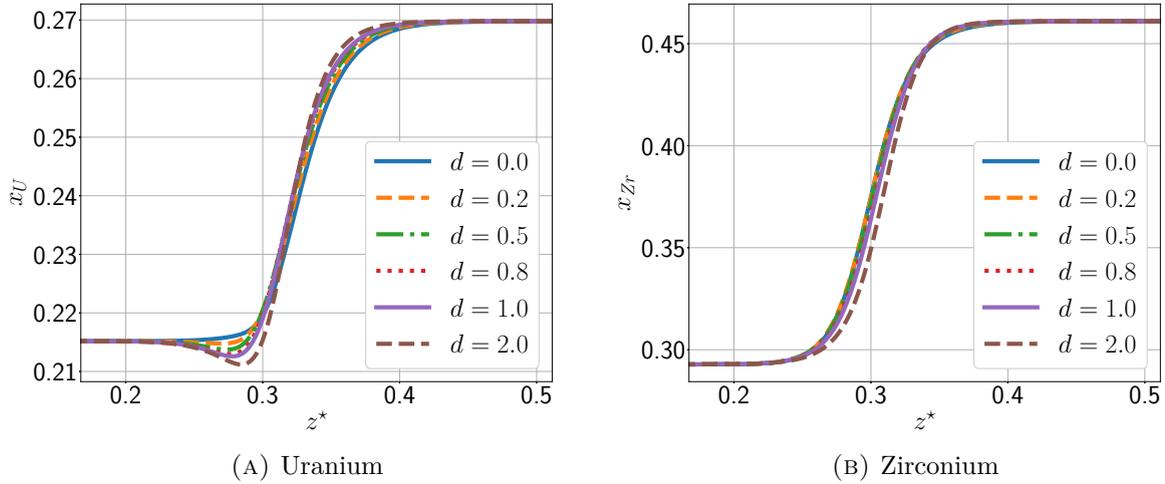


FIGURE 3.10 : Profils de composition en U et Zr à l'état stationnaire pour différentes valeurs de d tout en gardant $\theta = 45^\circ$ pour le cas n°3 avec $\varepsilon = 4\text{mm}$.

3.4.3.2 Etape 2 : Détermination de d_l

Maintenant que nous avons déterminé les intervalles de d où les profils sont monotones, dans cette deuxième étape, nous observons la variation de $\Delta\tilde{z}^G$ pour ces valeurs de d . La Figure 3.11 confirme que les profils ayant la plus faible adsorption ne sont pas monotones, du moins dans les cas n°2 et n°3 avec $\theta = \frac{\pi}{4}$. En effet, pour ces deux cas, l'adsorption diminue avec d tandis que la non monotonie des profils croît avec d . Par conséquent, pour le cas n°2 (resp. n°3), l'adsorption la plus faible dans la limite des profils monotones correspond à $d_l = 0.5$ (resp. $d_l = 0.2$).

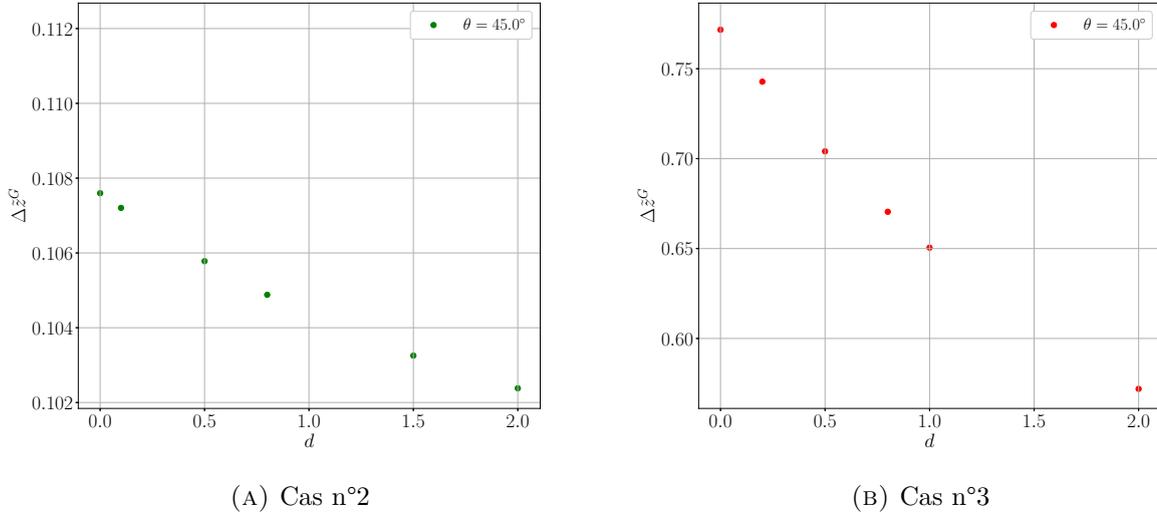


FIGURE 3.11 : Variation de l'écart adimensionné $\Delta \bar{z}^G$ entre la position de l'interface en U et celle en Zr en fonction de d pour la même valeur de $\theta = 45^\circ$.

3.4.3.3 Etape 3 : Identification des profils monotones pour $d = d_l$

Dans cette étape, nous faisons varier l'angle θ pour $d = d_l$ obtenue dans l'étape 2 afin d'identifier les valeurs de θ où les profils sont monotones. Les Figures 3.12 et 3.13 montrent les différents profils de composition en U et Zr respectivement dans les cas n°2 et n°3. Selon l'angle θ , on peut observer des profils non monotones avec un enrichissement en Zr dans la phase métallique (éventuellement avec un appauvrissement en Zr dans la phase oxyde en particulier pour $\theta = 150^\circ$) pour le cas n°2 et un appauvrissement en U dans la phase oxyde (éventuellement avec un enrichissement en U dans la phase métallique typiquement pour $\theta = \{120^\circ, 150^\circ\}$) pour le cas n°3. Les profils qui nous intéressent sont ceux monotones soit

- pour le cas n°2, $\theta \in [40^\circ, 70^\circ]$ et
- pour le cas n°3, $\theta \in [0^\circ, 40^\circ]$.

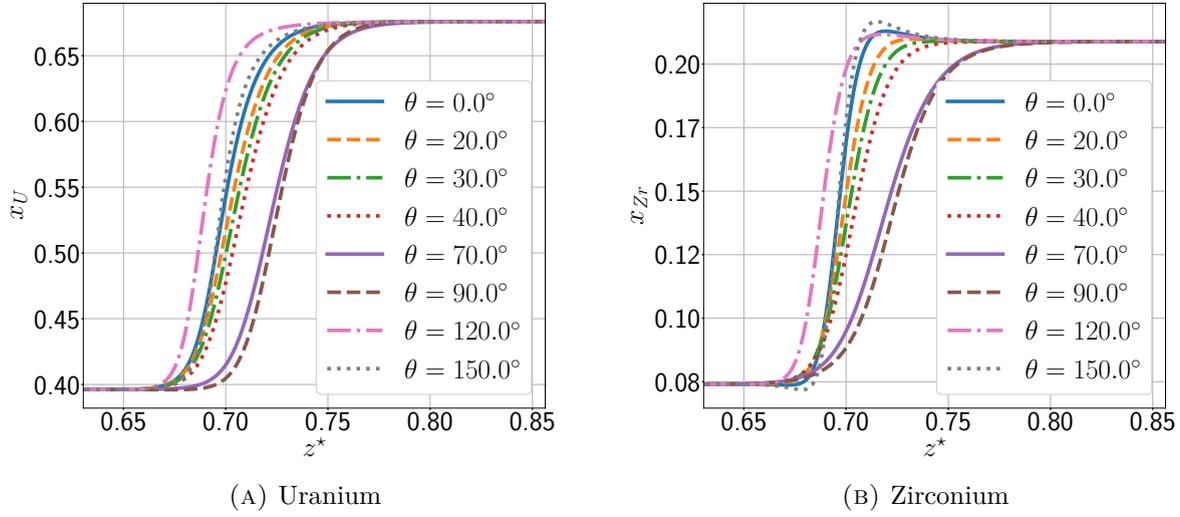


FIGURE 3.12 : Profils de composition en U et Zr à l'état stationnaire pour différentes valeurs de θ tout en gardant $d_l = 0.5$ pour le cas n°2 avec $\varepsilon = 4\text{mm}$.

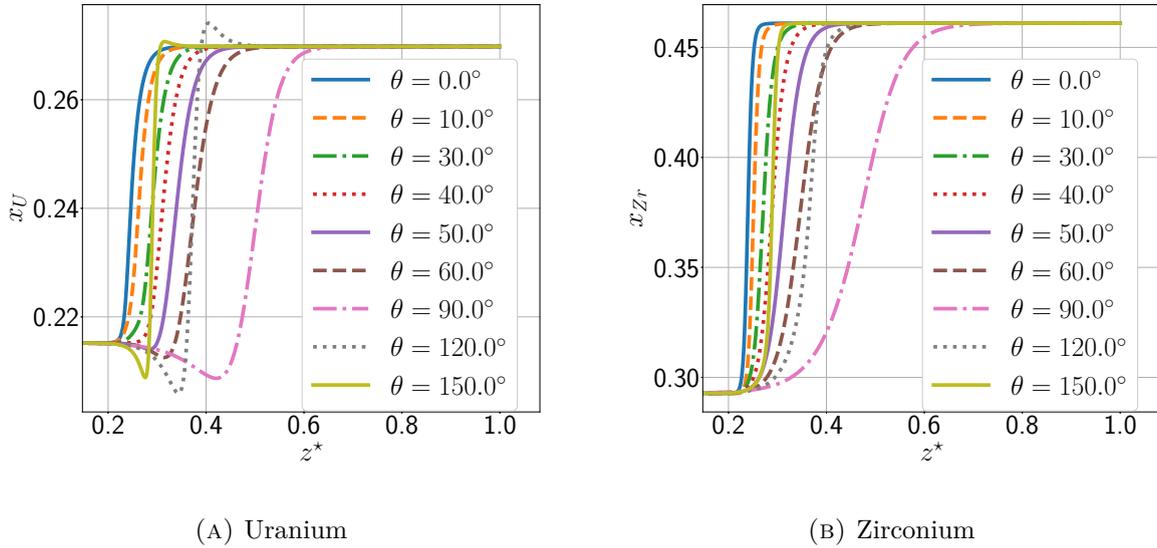


FIGURE 3.13 : Profils de composition en U et Zr à l'état stationnaire pour différentes valeurs de θ tout en gardant $d_l = 0.2$ pour le cas n°3 avec $\varepsilon = 4\text{mm}$.

3.4.3.4 Etape 4 : Détermination de θ_l

Enfin, la dernière étape consiste à déterminer θ_l correspondant à l'angle où l'adsorption est minimale parmi les profils monotones. Pour cela, nous comparons les valeurs de Δz^G pour différents angles θ comme montré en Figure 3.14 pour les cas n°2 et n°3. Les allures

de ces variations sont différentes pour les deux cas selon la valeur de θ . Pour le cas n°2, $\Delta\tilde{z}^G$ diminue lorsque $\theta \in [0^\circ, 100^\circ]$ et augmente lorsque $\theta \in [100^\circ, 180^\circ]$ tandis que pour le cas n°3, $\Delta\tilde{z}^G$ augmente lorsque $\theta \in [0^\circ, 90^\circ]$, diminue lorsque $\theta \in [90^\circ, 150^\circ]$ et augmente légèrement lorsque $\theta \in [150^\circ, 180^\circ]$. Dans l'intervalle de θ où les profils sont monotones, les tendances sont encore différentes. En effet, pour le cas n°2, $\Delta\tilde{z}^G$ diminue avec θ tandis que pour le cas n°3, celui-ci augmente dans cette zone.

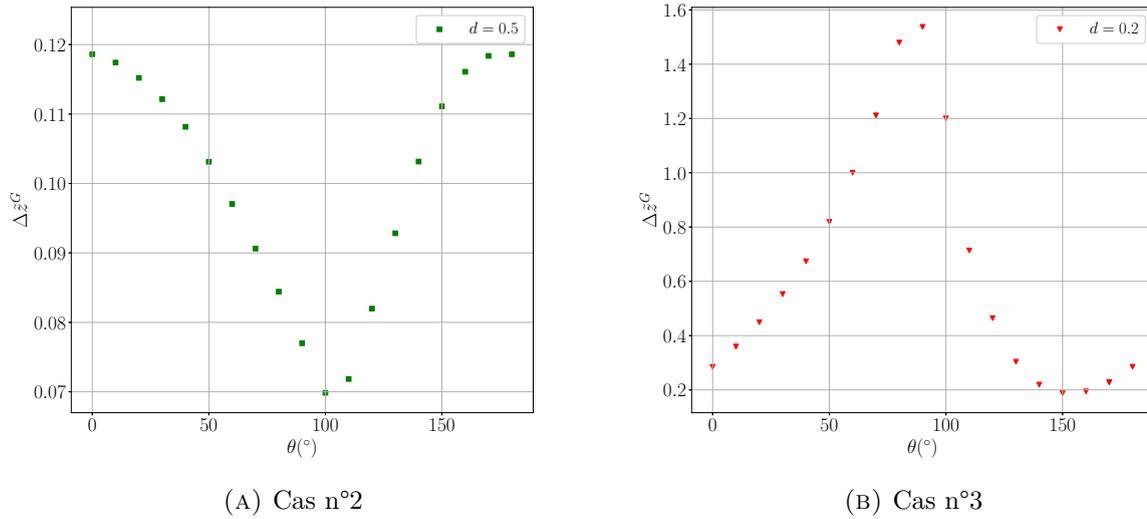


FIGURE 3.14 : Variation de l'écart adimensionné $\Delta\tilde{z}^G$ entre la position de l'interface en U et celle en Zr en fonction de θ en fixant $d = 0.5$ pour le cas 2 et $d = 0.2$ pour le cas 3.

D'après ces graphes, l'amplitude de variation de Δz^G est plus faible (jusqu'à environ 25%) lorsqu'on fait varier $d \in [0, 2]$ que lorsqu'on fait varier $\theta \in [0, \pi]$ où la valeur maximale de $\Delta\tilde{z}^G$ peut être 8 fois plus grande que sa valeur minimale, en particulier pour le cas n°3 correspondant au point plus proche du point critique. Tenant compte des résultats de ces quatre étapes pour assurer la monotonie des profils avec une faible adsorption, notre choix optimal de \bar{k} devient cas dépendant et correspond à

- $d = 0.5$ et $\theta = 70^\circ$ pour le cas n°2 et
- $d = 0.2$ et $\theta = 0^\circ$ pour le cas n°3.

Dans la suite, nous discutons des effets de ce choix sur d'autres grandeurs physiques comme la tension de surface et sur la trajectoire de l'interface dans le paysage thermodynamique.

3.4.4 Effet sur la tension de surface

Jusqu'à présent, toutes nos discussions ont porté sur la convergence du modèle vis-à-vis de l'adsorption et la monotonie des profils dans l'optique d'une modélisation fine par la CFD. Cependant, il existe d'autre paramètre important tel que la tension de surface en particulier comme montré en Section 4.3.2 au travers du critère de stabilité du modèle vis-à-vis des instabilités de Rayleigh–Taylor dans l'étude de la stratification du corium en cuve². Pour cela, dans cette section, nous discutons principalement dans un premier temps de la variation de la tension superficielle en fonction de d puis dans un second temps de son influence sur l'angle θ .

La tension de surface σ pour le système ternaire U-O-Zr peut être définie comme

$$\sigma = \int_0^L \sum_{i \in \{U, Zr\}} \sum_{j \in \{U, Zr\}} \kappa_{i,j} \left(\frac{dx_i}{dz} \right) \left(\frac{dx_j}{dz} \right) dz \quad (3.38)$$

Premièrement, nous comparons les tensions de surface pour différentes valeurs de d lorsqu'on fixe l'angle θ . La Figure 3.15 montre qu'en fixant $\theta = 45^\circ$, la tension de surface σ décroît avec d dans les cas n°2 et n°3. Indépendamment de d , les valeurs des tensions de surfaces sont en dessous de la valeur de référence $\sigma_{UO} = 0.1 \text{N.m}^{-1}$ obtenue en Eq. 3.19 à partir des tensions interfaciales liquide/gaz (par manque de données sur les tensions de surface liquide/liquide particulièrement pour les matériaux multicomposants à très haute température). Pour le cas n°3 qui est proche du point critique (à tension de surface nulle), les tensions de surfaces calculées sont à 10 fois plus petites que cette tension de surface de référence. Pour le cas n°2, cette différence est moins importante car celle-ci est jusqu'à 35% plus faible. Cela est cohérent avec le fait que le cas n°2 est proche du cas de référence binaire U-O et lorsqu'on met $\kappa_{U,Zr} = \kappa_{Zr,Zr} = 0$, la cohérence avec le binaire est assurée et cette tension de surface de référence est bel et bien reproduite.

2. Plus largement, dans d'autres applications au delà du contexte d'accident grave et du corium en plus des instabilités de Rayleigh–Taylor ou Rayleigh–Plateau qui dépendent de la tension de surface, des phénomènes de convection de Marangoni comme dans [41, 116] peuvent être observés lorsqu'il y a un gradient de tension de surface par rapport à la température ou la concentration.

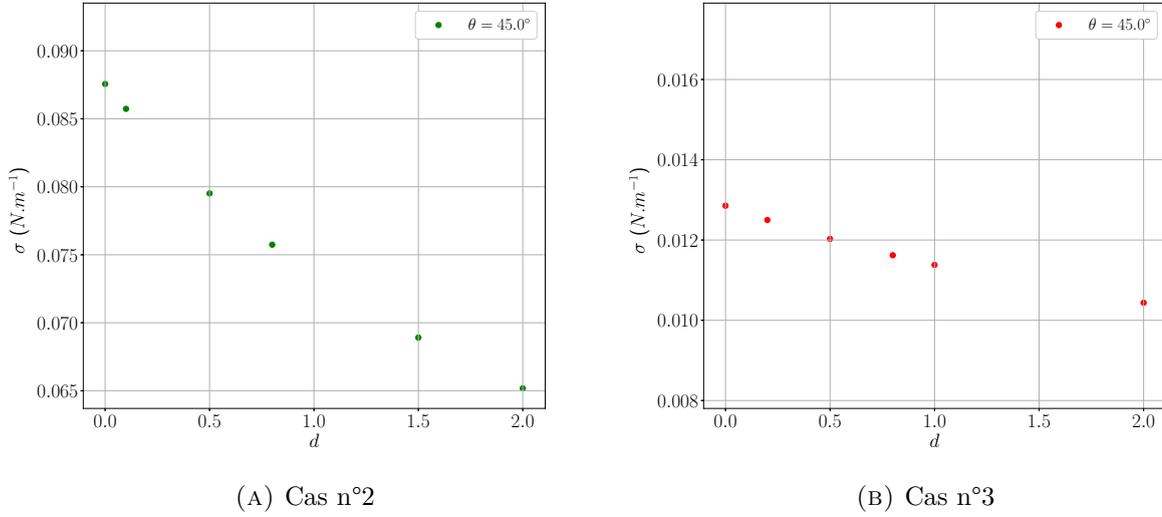


FIGURE 3.15 : Variation de la tension de surface pour différentes valeurs de d avec le même angle de rotation $\theta = 45^\circ$.

Deuxièmement, lorsqu'on fait varier les angles de rotation θ en fixant d à d_l , nous observons que les tendances sont différentes pour les deux cas n°2 et n°3. Pour le cas n°2, la tension de surface décroît entre $\theta = 70^\circ$ et $\theta = 140^\circ$ tandis que pour le cas n°3, elle décroît entre $\theta = 90^\circ$ et $\theta = 160^\circ$. Comme \bar{k} est périodique de période π , la tension de surface l'est également pour d donné. Par ailleurs, l'amplitude des variations de tension de surface est du même ordre de grandeur pour les deux cas (environ $4.10^{-2}N.m^{-1}$ pour le cas n°2 et $3.10^{-2}N.m^{-1}$ pour le cas n°3). La tension de surface pour le cas n°3 reste très faible comparée à la tension de référence $\sigma_{UO} = 0.1N.m^{-1}$, ce qui est normal par sa position proche du point critique.

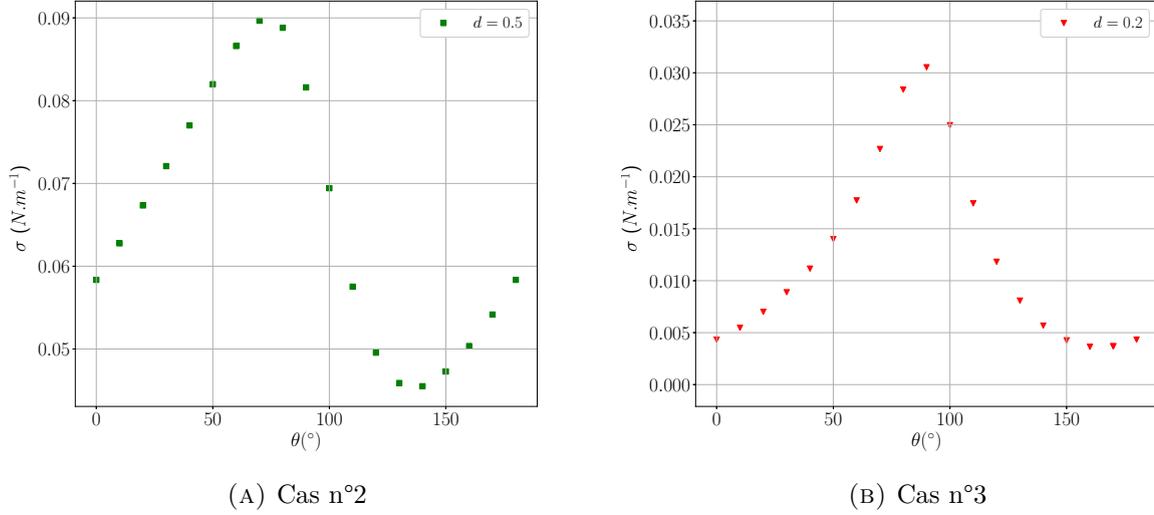


FIGURE 3.16 : Variation de la tension de surface pour différentes valeurs de θ pour $d = 0.5$ pour le cas n°2 et $d = 0.2$ pour le cas n°3.

3.4.5 Dynamique de l'interface dans le paysage thermodynamique

La monotonie ou non des profils de composition peut être représentée dans la surface d'énergie (appelée aussi paysage thermodynamique) définie par le grand potentiel

$$\frac{1}{V_m} \left(\bar{G}^{liq}(x_U, x_{Zr}) - \sum_{i \in \{U, Zr\}} (\mu_i^{eq} - \mu_O^{eq}) x_i \right) \quad (3.39)$$

La Figure 3.17 montre que le paysage thermodynamique du cas n°3 est plus aplati par rapport à celui du cas n°2. Avec des lignes de niveaux régulièrement espacées de $6.0 \times 10^5 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3}$ pour les deux cas, la distance entre les deux minima est plus courte pour le cas n°3. Ceci est cohérent avec le diagramme de phase en Figure 3.2 où le cas n°3 est proche du point critique.

Par ailleurs, la même figure montre les différents profils d'interface à l'équilibre x_{Zr} en fonction de x_U . Ces profils s'identifient comme la trajectoire de l'interface pour passer de la phase oxyde à la phase métallique. Par analogie au triangle de Gibbs, la conode est la droite qui relie les compositions d'équilibre. Afin de mettre en évidence la différence entre les trajectoires vis-à-vis de la forme des profils à l'interface, les trajectoires correspondant à un profil monotone ($d = 0, \theta = 45^\circ$), un profil non monotone ($d = 2$) et le choix optimal de la section précédente par rapport à la conode sont tracées en Figure 3.17. Ces profils

passent par un point selle (commun pour ceux ayant le même d) et présentent une petite courbure au niveau du puits associé à la phase où il y a la non monotonie du profil. Cette petite courbure peut être expliquée par le fait que il est plus favorable au système de passer par ce chemin plutôt que de prendre le chemin le plus court (ligne droite), augmentant ainsi localement sa composition notamment pour le cas n°3.

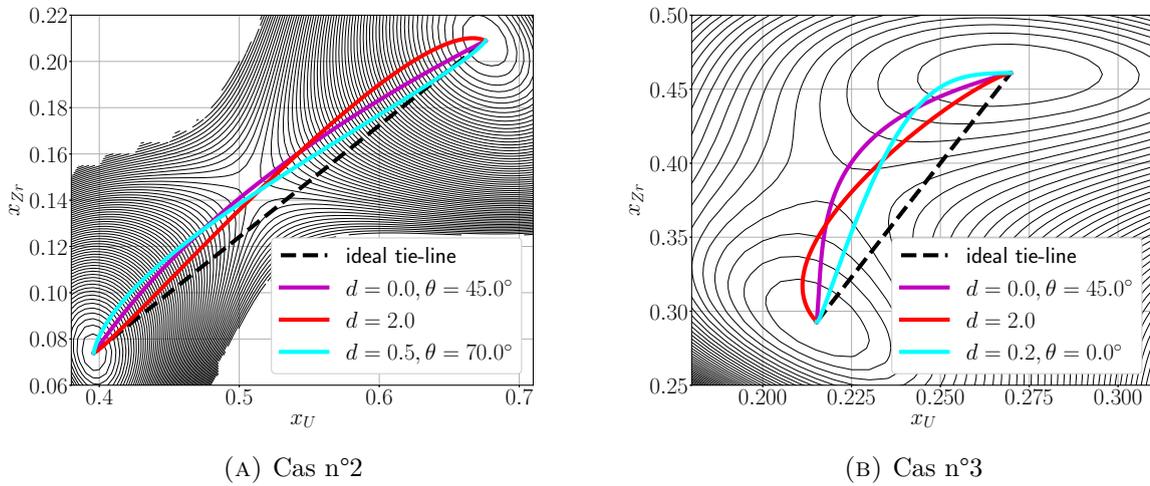


FIGURE 3.17 : Profils d'interface x_{Zr} en fonction de x_U à l'état stationnaire dans le paysage thermodynamique défini par Eq. 3.39 pour différentes formes de $\bar{\kappa}$ à $\varepsilon = 4\text{mm}$ - les lignes de contour correspondant à la densité d'énergie sont régulièrement espacées d'une valeur de $6.0 \times 10^5 \text{J}\cdot\text{m}^{-3}$

3.5 Calcul d'un système fermé

Tous les calculs effectués dans la section précédente pour un problème à potentiel chimique imposé sont à épaisseur fixe et les compositions à l'équilibre ne dépendent pas de l'épaisseur ε . Dans cette section, nous revenons au cas d'intérêt qui est le corium en cuve où aucun flux de diffusion ne passe aux bords de la cuve du réacteur. Il faut résoudre les équations instationnaires en Eqs. 3.7 et 3.8 avec des conditions aux limites de type Neumann homogène pour les potentiels de diffusion $\tilde{\mu}_i$. Dans ce cas, les compositions à l'équilibre varient suivant l'épaisseur d'interface ε considérée.

On s'intéresse particulièrement au cas n°3 car c'est le cas où les effets de non monotonie sont les plus prononcées mais les mêmes comportements sont observés pour les autres cas. Pour cela, nous fixons la matrice $\bar{\kappa}_d = \kappa_{U,U} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix}$ et analysons les compositions

des phases à l'équilibre pour différentes épaisseurs $\varepsilon_0 = 2 \times 10^{-3}\text{m}$, $\varepsilon_1 = 4 \times 10^{-3}\text{m}$ et $\varepsilon_2 = 8 \times 10^{-3}\text{m}$.

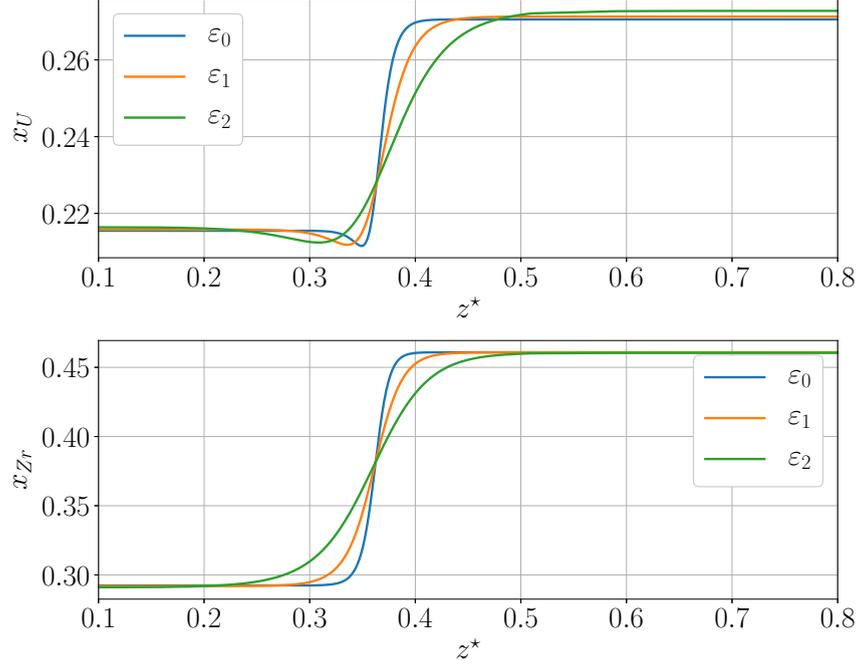


FIGURE 3.18 : Profils de composition en U et Zr de la configuration 3 avec $\bar{\kappa}_d$ pour différentes épaisseurs.

Au delà de la taille et la position de l'interface dans le système, les compositions loin de l'interface sont différentes pour les trois épaisseurs ε_0 , ε_1 et ε_2 comme le montre la Figure 3.18. En comparaison avec la composition à l'équilibre $x_i^{k,eq}$ de l'élément i dans la phase k donnée par les calculs d'équilibre, on observe une dépendance linéaire de la composition loin de l'interface avec l'épaisseur d'interface numérique ε . En effet, l'adsorption d'interface fait que les compositions à l'équilibre ne peuvent être celles données par CALPHAD. Elles sont décalées des compositions de CALPHAD avec un terme en $\frac{\varepsilon}{L}$ de telle sorte que les nouveaux points d'équilibre restent sur la conode. Cette dépendance est mise en évidence par les Figures 3.19 et 3.20 qui montrent les erreurs relatives $\Delta x_i^k(\%)$ par rapport à la valeur d'équilibre de référence $x_i^{k,eq}$ obtenue par calcul d'équilibre thermodynamique. Pour rappel, cette erreur relative s'exprime par

$$\Delta x_i^k(\%) = 100 \times \frac{(x_i^{k,eq} - x_i^k)}{x_i^{k,eq}} \quad (3.40)$$

avec x_i^k la composition loin de l'interface dans la phase k en régime permanent. Plus l'épaisseur ε est grande, plus la composition loin de l'interface s'éloigne de la composition

d'équilibre de référence. Lorsque $\frac{\varepsilon}{L} \rightarrow 0$, la composition x_i^k tend vers la composition de référence $x_i^{k,eq}$ avec une pente positive pour l'élément U et une pente négative pour l'élément Zr. Par ailleurs, ces mêmes figures montrent que le maillage a une influence sur ces écarts en particulier lorsque $\frac{\varepsilon}{L} \rightarrow 0$, la convergence vers la composition de référence $x_i^{k,eq}$ est meilleure avec un maillage suffisamment fin.

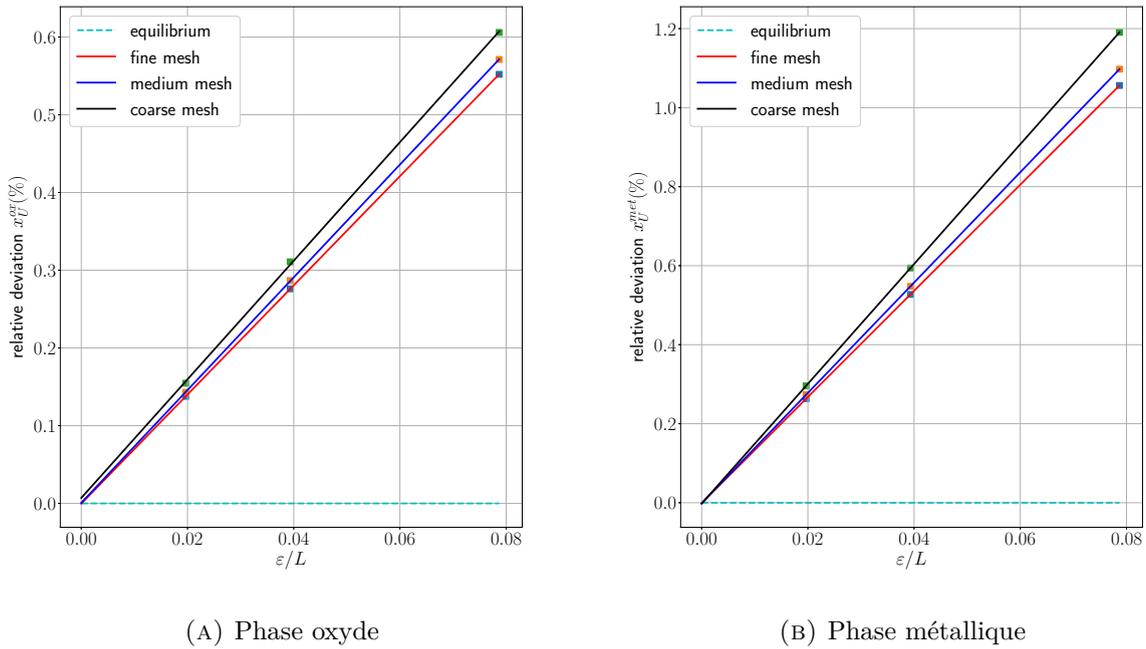


FIGURE 3.19 : Erreur relative entre la valeur d'équilibre et celle obtenue par champ de phase pour la composition U à l'état stationnaire en fonction de ε/L avec différents maillages "fine mesh" ($\Delta z = 10^{-4}$ m), "medium mesh" ($\Delta z = 2 \times 10^{-4}$ m) et "coarse mesh" ($\Delta z = 4 \times 10^{-4}$ m) - cas n°3.

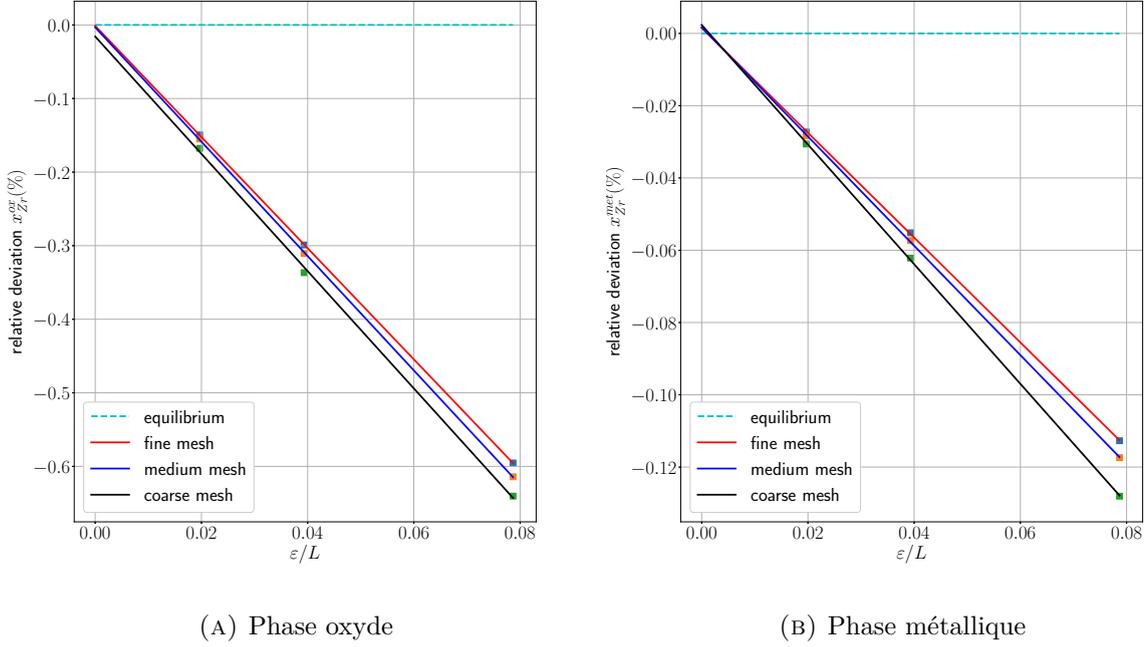


FIGURE 3.20 : Erreur relative entre la valeur d'équilibre et celle obtenue par champ de phase pour la composition Zr à l'état stationnaire en fonction de ε/L avec différents maillages "fine mesh" ($\Delta z = 10^{-4}$ m), "medium mesh" ($\Delta z = 2 \times 10^{-4}$ m) et "coarse mesh" ($\Delta z = 4 \times 10^{-4}$ m) - cas n°3.

Afin d'analyser cette dépendance linéaire par rapport à $\frac{\varepsilon}{L}$, nous reprenons les Eqs. 3.24 et 3.33 et considérons la composition loin de l'interface à l'équilibre x_i^k comme fonction de $\tilde{\mu}_U$ et $\tilde{\mu}_{Zr}$ (soit $x_i^k = X_i^{k,eq}(\tilde{\mu}_U, \tilde{\mu}_{Zr})$)

$$\begin{cases} \bar{x}_U = \Phi X_U^{ox,eq}(\tilde{\mu}_U, \tilde{\mu}_{Zr}) + (1 - \Phi) X_U^{met,eq}(\tilde{\mu}_U, \tilde{\mu}_{Zr}) \\ \bar{x}_{Zr} = \Phi X_{Zr}^{ox,eq}(\tilde{\mu}_U, \tilde{\mu}_{Zr}) + (1 - \Phi) X_{Zr}^{met,eq}(\tilde{\mu}_U, \tilde{\mu}_{Zr}) + \Delta \tilde{z}^G \frac{\varepsilon}{L} [X_{Zr}^{met,eq}(\tilde{\mu}_U, \tilde{\mu}_{Zr}) - X_{Zr}^{ox,eq}(\tilde{\mu}_U, \tilde{\mu}_{Zr})] \end{cases} \quad (3.41)$$

avec $\Phi = \frac{z_U^G}{L}$. Puis, nous considérons le développement asymptotique en $\frac{\varepsilon}{L} \ll 1$ à l'ordre 1 comme point de départ tels que

$$\begin{cases} \bar{x}_U = \bar{x}_U^0 + \frac{\varepsilon}{L} \bar{x}_U^1 \\ \bar{x}_{Zr} = \bar{x}_{Zr}^0 + \frac{\varepsilon}{L} \bar{x}_{Zr}^1 \\ \tilde{\mu}_U = \tilde{\mu}_U^{eq,0} + \frac{\varepsilon}{L} \tilde{\mu}_U^{eq,1} \\ \tilde{\mu}_{Zr} = \tilde{\mu}_{Zr}^{eq,0} + \frac{\varepsilon}{L} \tilde{\mu}_{Zr}^{eq,1} \\ \Phi = \Phi^0 + \frac{\varepsilon}{L} \Phi^1 \end{cases} \quad (3.42)$$

où l'exposant 0 désigne la limite asymptotique des différentes quantités lorsque $\frac{\varepsilon}{L} = 0$. En utilisant ces notations, $\forall i \in \{U, Zr\}$ et $\forall k \in \{ox, met\}$, par un développement limité à l'ordre 1, on peut écrire $X_i^{k,eq}$ comme

$$X_i^{k,eq}(\tilde{\mu}_U, \tilde{\mu}_{Zr}) = x_i^{k,eq,0} + \frac{\varepsilon}{L} \left(\left. \frac{\partial X_i^{k,eq}}{\partial \tilde{\mu}_U} \right|_0 \tilde{\mu}_U^{eq,1} + \left. \frac{\partial X_i^{k,eq}}{\partial \tilde{\mu}_{Zr}} \right|_0 \tilde{\mu}_{Zr}^{eq,1} \right) \quad (3.43)$$

Dans cette relation, la matrice $\frac{\partial X_i^{k,eq}}{\partial \tilde{\mu}_j}$ est l'inverse de $\frac{\partial \tilde{\mu}_i}{\partial X_j^{k,eq}} = \frac{\partial^2 \bar{G}^{liq}}{\partial X_i^{k,eq} \partial X_j^{k,eq}}$ qui correspond à la hessienne de la fonction énergie libre de Gibbs \bar{G}^{liq} donnant l'orientation de la conode dans le triangle de Gibbs. Par conséquent, le taux de convergence est directement lié à l'énergie libre et de la forme au voisinage des puits du paysage thermodynamique.

En injectant les Eqs. 3.42 et 3.43 dans Eq. 3.41, nous obtenons

$$\begin{cases} \bar{x}_U^0 &= \Phi^0 x_U^{ox,eq,0} + (1 - \Phi^0) x_U^{met,eq,0} \\ \bar{x}_{Zr}^0 &= \Phi^0 x_{Zr}^{ox,eq,0} + (1 - \Phi^0) x_{Zr}^{met,eq,0} \end{cases} \quad (3.44)$$

et

$$\begin{cases} \bar{x}_U^1 &= \Phi^0 \left(\left. \frac{\partial X_U^{ox,eq}}{\partial \tilde{\mu}_U} \right|_0 \tilde{\mu}_U^{eq,1} + \left. \frac{\partial X_U^{ox,eq}}{\partial \tilde{\mu}_{Zr}} \right|_0 \tilde{\mu}_{Zr}^{eq,1} \right) + (1 - \Phi^0) \left(\left. \frac{\partial X_U^{met,eq}}{\partial \tilde{\mu}_U} \right|_0 \tilde{\mu}_U^{eq,1} + \left. \frac{\partial X_U^{met,eq}}{\partial \tilde{\mu}_{Zr}} \right|_0 \tilde{\mu}_{Zr}^{eq,1} \right) \\ &+ \Phi^1 (x_U^{ox,eq,0} - x_U^{met,eq,0}) \\ \bar{x}_{Zr}^1 &= \Phi^0 \left(\left. \frac{\partial X_{Zr}^{ox,eq}}{\partial \tilde{\mu}_U} \right|_0 \tilde{\mu}_U^{eq,1} + \left. \frac{\partial X_{Zr}^{ox,eq}}{\partial \tilde{\mu}_{Zr}} \right|_0 \tilde{\mu}_{Zr}^{eq,1} \right) + (1 - \Phi^0) \left(\left. \frac{\partial X_{Zr}^{met,eq}}{\partial \tilde{\mu}_U} \right|_0 \tilde{\mu}_U^{eq,1} + \left. \frac{\partial X_{Zr}^{met,eq}}{\partial \tilde{\mu}_{Zr}} \right|_0 \tilde{\mu}_{Zr}^{eq,1} \right) \\ &+ \Phi^1 (x_{Zr}^{ox,eq,0} - x_{Zr}^{met,eq,0}) + \Delta \tilde{z}^G (x_{Zr}^{met,eq,0} - x_{Zr}^{ox,eq,0}) \end{cases} \quad (3.45)$$

Pour un système fermé, la valeur moyenne des compositions \bar{x}_U et \bar{x}_{Zr} est conservé à tout instant de telle sorte que $\bar{x}_U = \bar{x}_U^0$ et $\bar{x}_{Zr} = \bar{x}_{Zr}^0$, autrement dit $\bar{x}_U^1 = \bar{x}_{Zr}^1 = 0$. Néanmoins, le système d'équations en Eq. 3.45 n'est pas suffisant pour déterminer les inconnues $\{\tilde{\mu}_U^{eq,1}, \tilde{\mu}_{Zr}^{eq,1}, \Phi^1\}$. Une équation supplémentaire est nécessaire pour pouvoir fermer le système. Pour cela, nous reprenons les notations de Eq. 3.42 et développons au premier ordre le grand potentiel $\tilde{\Omega}^k$ au voisinage du point d'équilibre de la phase k

$$\tilde{\Omega}^k = \tilde{\Omega}^{k,0} + \frac{\varepsilon}{L} \left(\left. \frac{\partial \tilde{\Omega}^k}{\partial \tilde{\mu}_U} \right|_0 \tilde{\mu}_U^{eq,1} + \left. \frac{\partial \tilde{\Omega}^k}{\partial \tilde{\mu}_{Zr}} \right|_0 \tilde{\mu}_{Zr}^{eq,1} \right) \quad (3.46)$$

Sachant que $\left. \frac{\partial \tilde{\Omega}^k}{\partial \tilde{\mu}_i} \right|_0 = -x_i^{k,eq,0}$ et qu'à l'équilibre thermodynamique, on a l'égalité des grands potentiels dans les deux phases *i.e.* $\tilde{\Omega}^{ox,0} = \tilde{\Omega}^{met,0}$ et $\tilde{\Omega}^{ox} = \tilde{\Omega}^{met}$. À partir de

l'Eq. 3.46, on obtient à l'équilibre thermodynamique

$$x_U^{ox,eq,0} \tilde{\mu}_U^{eq,1} + x_{Zr}^{ox,eq,0} \tilde{\mu}_{Zr}^{eq,1} = x_U^{met,eq,0} \tilde{\mu}_U^{eq,1} + x_{Zr}^{met,eq,0} \tilde{\mu}_{Zr}^{eq,1} \quad (3.47)$$

Cette dernière équation donne naturellement la relation de Clausius-Clapeyron

$$\frac{\tilde{\mu}_U^{eq,1}}{\tilde{\mu}_{Zr}^{eq,1}} = \frac{x_{Zr}^{met,eq,0} - x_{Zr}^{ox,eq,0}}{x_U^{ox,eq,0} - x_U^{met,eq,0}} \quad (3.48)$$

Finalement, le système d'équations à résoudre est composé des Eqs. 3.45 et 3.48. La solution numérique de ce système n'a pas été évaluée mais il suffit de remarquer que cette solution $\{\tilde{\mu}_U^{eq,1}, \tilde{\mu}_{Zr}^{eq,1}, \Phi^1\}$ est directement proportionnelle à $\Delta\tilde{z}^G$ et, par conséquent, devient $\{0, 0, 0\}$ si $\Delta\tilde{z}^G$ vaut 0. En d'autres termes, le taux de convergence par rapport à $\frac{\varepsilon}{L}$ de toutes les quantités d'intérêt vers celles de référence à l'équilibre thermodynamique est proportionnel au terme lié à l'adsorption $\Delta\tilde{z}^G$. Ceci confirme l'intérêt pour notre choix de minimiser $\Delta\tilde{z}^G$ dans la recherche du profil optimal via la matrice $\bar{\kappa}$. Dans tous les cas, les écarts obtenus restent faibles avec une erreur relative maximale autour de 1.2% pour $\frac{\varepsilon}{L} \simeq 8 \times 10^{-2}$. À titre de comparaison, les simulations qualitatives dans [51] sont réalisées avec $\frac{\varepsilon}{L} \sim 5 \times 10^{-2}$. Pour notre simulation de la stratification du corium en cuve, la séparation d'échelle que l'on vise reste de cet ordre de grandeur. Somme toute, l'écart relatif à l'équilibre thermodynamique reste faible sur une vaste gamme de $\frac{\varepsilon}{L}$ et n'est pas limitant pour notre application, ce qui démontre ainsi la robustesse de notre modèle de ce point de vue.

3.6 Choix d'un potentiel analytique

Dans les sections précédentes, toutes les grandeurs thermodynamiques sont obtenues à partir des bases de données construites avec la méthode CALPHAD. Pour les systèmes binaires, il est d'usage d'exprimer l'énergie libre et le grand potentiel de façon analytique comme une fonction double puits pour simplifier la résolution du système d'équations notamment lors du couplage avec l'hydrodynamique. Pour les systèmes multicomposants $n > 2$ -aire, le branchement de l'outil `OpenCalphad` pour les bases thermodynamiques avec les outils CFD n'est pas toujours simple, tant du point de vue informatique (outils et langages informatiques différents) que numérique. De ce fait, nous proposons une expression analytique de l'énergie libre permettant d'approcher au mieux voire reproduire

les comportements des profils de composition et les propriétés physiques de l'interface telles que l'adsorption et l'énergie de surface.

Le paysage thermodynamique montré en Figure 3.17 représente deux puits correspondant aux deux points d'équilibre thermodynamique dans la surface définie par le grand potentiel Ω en Eq. 3.39. La condition d'équilibre thermodynamique impose que les valeurs du grand potentiel Ω à ces points d'équilibre sont identiques dans les deux phases. Ainsi, nous définissons le grand potentiel modifié $\Omega^* = \Omega - \Omega^{eq}$ comme

$$\Omega^* = G - \sum_{i \in \{U, Zr\}} \tilde{\mu}_i^{eq} x_i - \left(G^{eq} - \sum_{i \in \{U, Zr\}} \tilde{\mu}_i^{eq} x_i^{eq} \right) \quad (3.49)$$

tel que G la densité d'énergie libre³, G^{eq} la densité d'énergie libre à l'équilibre et $\Omega^* = 0$ aux deux points d'équilibre dans le plan (x_U, x_{Zr}) . Les lignes de contour autour de ces points d'équilibre ont la forme d'un paraboloidé soumis à une rotation d'angle ψ . Cela se traduit pour chacune des phases $k \in \{ox, met\}$ par

$$P^k = \left(\frac{\cos \psi^k (x_U - x_U^{eq,k}) + \sin \psi^k (x_{Zr} - x_{Zr}^{eq,k})}{a_x^k} \right)^2 + \left(\frac{-\sin \psi^k (x_U - x_U^{eq,k}) + \cos \psi^k (x_{Zr} - x_{Zr}^{eq,k})}{a_y^k} \right)^2 \quad (3.50)$$

avec P^k l'expression d'un paraboloidé autour de la phase $k \in \{ox, met\}$ soumis à une rotation d'angle ψ^k , $x_i^{eq,k}$ les compositions d'équilibre de l'élément i et a_j^k la largeur du puits dans les deux directions $j \in \{x, y\}$.

Dans l'optique d'exprimer analytiquement les grandeurs thermodynamiques du système, nous proposons que ce grand potentiel modifié Ω^* soit égal au produit de ces deux paraboloidés, soit

$$\Omega^* = P^{ox} \times P^{met} \quad (3.51)$$

Faisant ainsi, nous pouvons exprimer le terme non linéaire dans les équations de Cahn–Hilliard comme

3. La densité d'énergie libre G^{liq} représente directement $\frac{\bar{G}^{liq}}{V_m}$ des sections précédentes.

$$\frac{\partial G}{\partial x_i} = P^{ox} \frac{\partial P^{met}}{\partial x_i} + P^{met} \frac{\partial P^{ox}}{\partial x_i} + \tilde{\mu}_i^{eq} \quad (3.52)$$

avec $\tilde{\mu}_i^{eq}$ le potentiel à l'équilibre représentant le décalage énergétique pour les deux phases et est constant à l'équilibre thermodynamique en raison de la suppression du plan tangent. Par construction, nous fixons $\tilde{\mu}_i^{eq} = 0$ dans toute la suite. Les détails sur le développement et l'expression des différents paramètres sont disponibles en Annexe C.

Dans cette section, nous considérons le cas n°3 et ajustons son paysage thermodynamique dans la surface du grand potentiel modifié Ω^* avec l'expression analytique du produit de deux paraboloïdes en Eq. 3.51 afin de déterminer les paramètres a_j^k et ψ^k pour $k \in \{ox, met\}$ et $j \in \{x, y\}$. Dans cet ajustement (“fit”), nous nous limitons uniquement aux régions dans un rayon $R = 10^{-2}$ m autour des points d'équilibre. En utilisant l'algorithme Trust Region Reflective des moindres carrés [138], nous obtenons les valeurs des paramètres d'ajustement répertoriées dans le Tableau 3.4.

TABLEAU 3.4 : Valeurs des paramètres d'ajustement pour le paysage analytique.

Paramètres d'ajustement	Paraboloïde	
	oxyde	métallique
a_x	2.594×10^{-5}	4.084×10^{-1}
a_y	1.651×10^{-5}	1.644×10^{-1}
ψ	153.10°	107.42°

Pour notre analyse, nous avons ajouté le cas particulier “cercle” où les petits et grands axes du paraboloïde sont égaux. Les paramètres de rotation sont en conséquence sans effet dans le but de montrer l'intérêt ou non de la rotation des paraboloïdes. En l'occurrence, nous avons fixé $a_x^k = a_y^k = 2 \times 10^{-3}$. Les paysages thermodynamiques associés à la base thermodynamique CALPHAD, au produit de deux paraboloïdes (“paraboloïde” sur la Figure 3.21) et à celui de deux cercles (“cercle” sur la Figure 3.21) sont montrés en Figure 3.21. La forme et l'orientation des puits du paysage “paraboloïde” sont assez similaires à celles du paysage CALPHAD. Les valeurs de Ω^* au point selle pour le paysage de référence CALPHAD et celui du produit de deux paraboloïdes sont proches de l'ordre de $2.4 \times 10^6 \text{J}\cdot\text{m}^{-3}$ comparée à celle pour le paysage “cercle” de l'ordre de $3.6 \times 10^6 \text{J}\cdot\text{m}^{-3}$. Cependant, les positions du point selle pour les trois paysages sont assez éloignées entre elles.

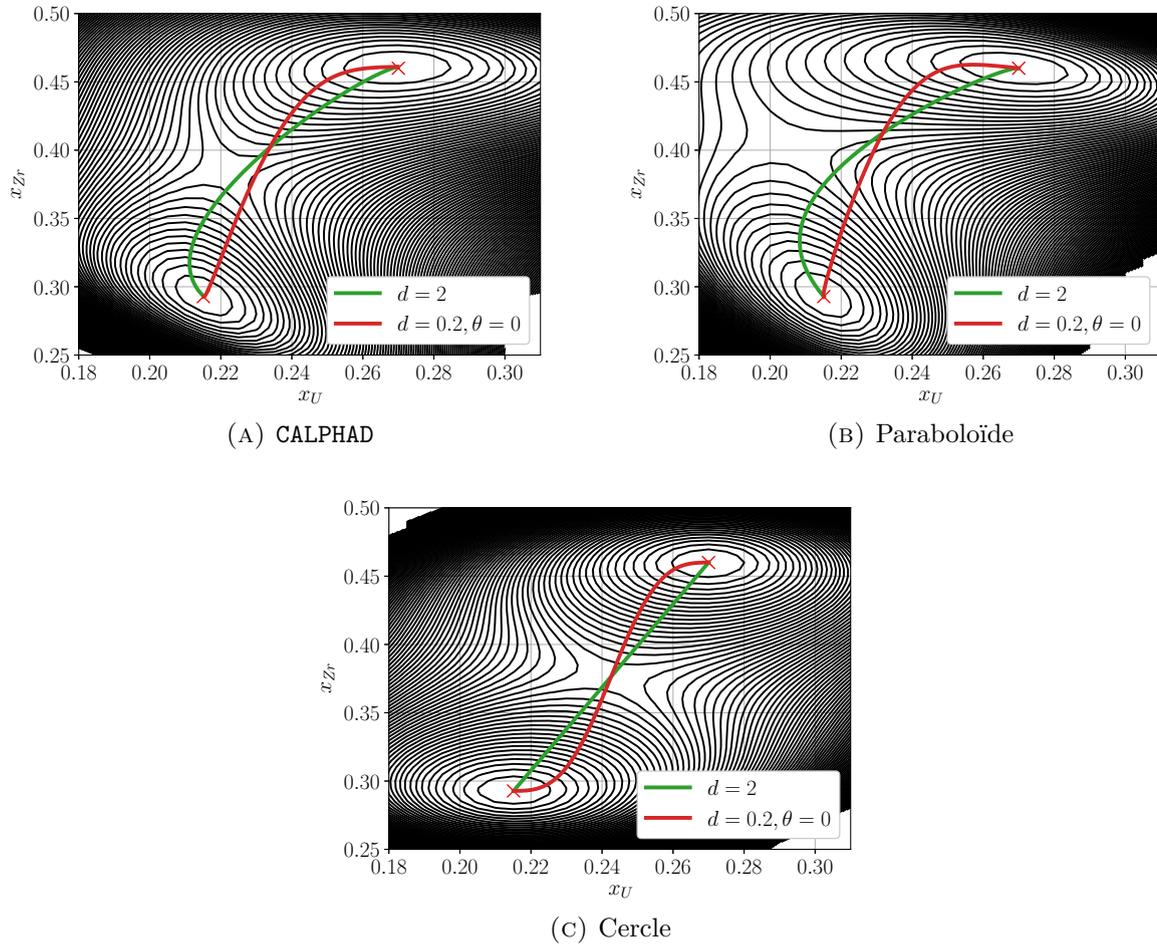


FIGURE 3.21 : Profils d'interface x_{Zr} en fonction de x_U à l'état stationnaire dans le paysage thermodynamique dans la surface d'énergie du grand potentiel modifié Ω^* issus de (A) CALPHAD, (B) du produit de deux paraboloïdes et (C) du produit de deux cercles. Les lignes de contour sont régulièrement espacées d'une valeur de $2.0 \times 10^5 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3}$ - cas n°3.

Nous avons implémenté l'expression du produit de deux paraboloïdes ainsi que les dérivées associées dans PROCOR et comparons les profils de composition des éléments U et Zr à l'état stationnaire avec ceux de CALPHAD pour une épaisseur $\varepsilon = 4\text{mm}$. En prenant l'hypothèse que les paysages thermodynamiques "paraboloïde" et "cercle" sont équivalents à celui de CALPHAD, les paramètres d'interface tels que λ et $\kappa_{U,U}^{bin}$ devraient être identiques à ceux de CALPHAD. Nous avons pris deux formes de la matrice $\bar{\kappa}$ à savoir $\bar{\kappa}_d = \kappa^{bin} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix}$ et $\bar{\kappa}_{opt} = \bar{\kappa}(d = 0.2, \theta = 0^\circ)$ la forme optimale de $\bar{\kappa}$ obtenue dans les sections précédentes. La Figure 3.22 montre que la non monotonie du profil de composition est reproduite pour $\bar{\kappa}_d$ avec le paysage thermodynamique "paraboloïde" tandis qu'avec le

paysage thermodynamique “cercle”, les profils sont toujours monotones pour les deux formes présentées $\bar{\kappa}_d$ et $\bar{\kappa}_{opt}$. En outre, pour $\bar{\kappa}_{opt}$, une non monotonie du profil de composition x_{Zr} (enrichissement) est observée dans la phase métallique. Cela confirme que le choix optimal de $\bar{\kappa}$ dépend du paysage thermodynamique considéré (cas dépendant). Les trajectoires de cette interface sont présentées dans le paysage thermodynamique correspondant en Figure 3.21. Elles sont assez similaires pour les deux paysages CALPHAD et “paraboloïde” comparées à celles pour le paysage “cercle” où la trajectoire de $\bar{\kappa}_d$ superpose la conode idéale (la ligne droite reliant les deux compositions d’équilibre).

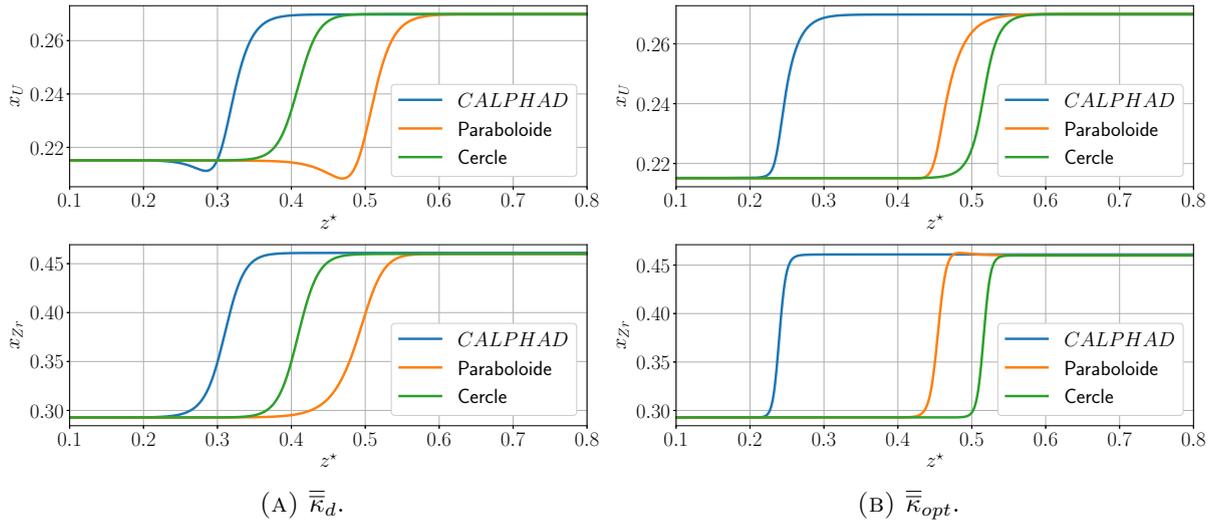


FIGURE 3.22 : Profils de composition à l’état d’équilibre thermodynamique en U et Zr du cas n°3 avec les paysages thermodynamiques CALPHAD, produit de deux paraboloïdes et produit de deux cercles pour (A) $\bar{\kappa}_d$ et (B) $\bar{\kappa}_{opt}$.

Par ailleurs, il est important de quantifier l’énergie de surface et l’adsorption associées à ce paysage thermodynamique analytique et de les comparer à celles du paysage thermodynamique de référence issu de CALPHAD. Il est montré au Tableau 3.5 que les tensions de surface du paysage thermodynamique “paraboloïde” et “cercle” sont de même ordre de grandeur que celles de référence CALPHAD. Néanmoins, l’adsorption d’interface par $\Delta\tilde{z}^G$ est nulle pour le paysage thermodynamique “cercle” et celle pour le paysage thermodynamique “paraboloïde” est environ 2 fois plus importante que celle du paysage thermodynamique de référence CALPHAD. L’objectif initial de notre choix d’utiliser une expression analytique du paysage thermodynamique est d’approcher au mieux les quantités physiques de l’interface (adsorption d’interface et tension de surface). L’absence de formules simples reliant le paysage aux profils et à l’interface rendent le contrôle des propriétés d’interface très complexe. D’autant plus que les contraintes physiques sont nombreuses

telles que la tension de surface, l'adsorption, les points d'équilibre. Dans le présent cas, le paysage “paraboloïde” semble plus adapté que le paysage “cercle” car les propriétés de l'interface en particulier l'adsorption existe, contrairement à celle du paysage “cercle”. En outre, il faut noter que les limites de la binodale (lignes de coexistence) dans le cas d'un paysage “cercle” sont des droites orthogonales à la conode (“tie-line”).

TABLEAU 3.5 : Valeurs de la tension de surface et de $\Delta\tilde{z}^G$ pour $\bar{\kappa}_d$ et $\bar{\kappa}_{opt}$ avec différents paysages thermodynamiques.

	CALPHAD		Paraboloïde		Cercle	
	$\bar{\kappa}_d$	$\bar{\kappa}_{opt}$	$\bar{\kappa}_d$	$\bar{\kappa}_{opt}$	$\bar{\kappa}_d$	$\bar{\kappa}_{opt}$
$\sigma(10^{-3}\text{N.m}^{-1})$	10.437	4.332	8.433	3.555	9.897	3.912
$\Delta\tilde{z}^G$	0.5725	0.28475	0.9685	0.5	0	0

3.7 Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons développé un modèle du champ de phase dans la plateforme PROCOR [59] afin de décrire et comprendre la diffusion multicomposant dans le système U-O-Zr. Avec l'hypothèse d'équilibre local, le système peut être décrit par uniquement deux équations de Cahn–Hilliard. La définition des paramètres d'un tel système n'est pas trivial. Typiquement pour les coefficients de gradient d'énergie $\kappa_{i,j}$, un seul coefficient parmi les trois coefficients indépendants peut être obtenu analytiquement. Suivant les valeurs de ces coefficients $\kappa_{i,j}$, la résolution de ce système d'équations a montré qu'à l'état stationnaire, on peut obtenir des profils de composition non monotones et un écart Δz entre les positions de l'interface des deux éléments U et Zr. Ces deux remarques peuvent être problématiques pour notre modélisation fine par la CFD. Pour en savoir plus, nous avons étudié trois cas dans le diagramme de phase et avons résolu le problème stationnaire en 1D.

D'une part, les résultats du problème stationnaire nous ont montré que ces écarts augmentent avec l'épaisseur d'interface. Ils sont étroitement liés aux effets d'adsorption, un phénomène d'accumulation d'un ou plusieurs composants à l'interface. Dans le modèle à interface diffuse, en particulier pour les systèmes multicomposants, ils sont inévitables mais peuvent être réduit en jouant sur les coefficients $\kappa_{i,j}$. En ce sens, nous avons proposé une stratégie de recherche des valeurs optimales de $\kappa_{i,j}$ par rotation de $\bar{\kappa}$ pour lesquelles on obtient des profils monotones avec faible adsorption. Bien que la tension de référence

considérée dans ce travail est obtenue à partir des tensions de surface liquide/gaz (par manque de données sur les tensions interfaciales liquide/liquide), les valeurs de tension de surface données par notre modèle ainsi que la trajectoire de l'interface restent cohérentes avec les propriétés des cas étudiés dans ce chapitre, en particulier vis-à-vis de leur position dans le diagramme des phases. Des travaux récents [139] et en cours [140] cherchent à améliorer l'évaluation des propriétés d'interface liquide/liquide par assimilation de données de tension de surface et permettront *in fine* un meilleur calage des coefficients de gradient $\kappa_{i,j}$. Dans tous les cas, les coefficients $\kappa_{i,j}$ optimaux pour les 3 cas étudiés dans ce chapitre sont différents et cas dépendant. Ces calculs stationnaires nous ont permis de répondre aux questions restées en suspens dans la thèse de C. Cardon [57] et de quantifier l'adsorption d'interface.

D'autre part, en revenant au problème instationnaire (le cas d'intérêt corium en cuve), nous avons constaté que les compositions loin de l'interface et les potentiels de diffusion à l'équilibre dépendent linéairement de l'épaisseur d'interface. Cette dépendance linéaire est liée à l'adsorption d'interface et à l'énergie libre de Gibbs dans le paysage thermodynamique. Il a également été montré que le maillage joue sur la pente et la précision autour de l'épaisseur nulle. Cependant, notre modèle est jugé robuste pour notre application au corium en cuve car il donne des écarts autour de 1% avec la séparation d'échelle visée. Dans la dernière partie du chapitre, nous avons proposé une expression analytique du grand potentiel sous forme de produit de deux paraboloides pour simplifier l'implémentation notamment lorsqu'on passe au couplage avec l'hydrodynamique. Les calculs effectués à partir de ce paysage thermodynamique polynomial ont montré son efficacité vis-à-vis des propriétés de l'interface. Cette approche analytique reste dépendante du cas particulier considéré. Ces travaux sur l'adsorption, la dépendance linéaire des compositions et l'optimisation du modèle au sens de $\bar{\kappa}$ présentés dans ce chapitre ont fait l'objet d'une publication intitulée "Diffuse-interface modelling of multicomponent diffusion and phase separation in the U-O-Zr ternary system" [11] dans le journal à comité de lecture *Computational Materials Science*.

CHAPITRE 4

COUPLAGE DU MODÈLE DE CAHN–HILLIARD AVEC L’HYDRODYNAMIQUE

Dans l’optique d’une modélisation détaillée à l’échelle de la CFD dans un système multicomposant, l’application `Phase_field` du code `TrioCFD` [19, 20] est utilisée dans ce manuscrit pour résoudre les équations couplées de Cahn–Hilliard/Navier–Stokes (CHNS). Le dernier développement de ce modèle `Phase_field` remonte à 2005 où une seule équation de Cahn–Hilliard (CH) peut être résolue et couplée avec les équations de Navier–Stokes (NS). D’une part, ce travail de thèse a permis de reprendre en main ce code en étudiant la capacité de `Phase_field` à résoudre le problème couplé de CHNS. D’autre part, il porte en partie sur l’extension du modèle `Phase_field` (initialement limité à un modèle binaire) à un modèle $n > 2$ -aire pour une meilleure caractérisation du couplage des phénomènes thermochimiques et hydrodynamiques observés dans le transitoire de stratification du corium en cuve.

Dans ce chapitre, nous présentons en premier lieu le modèle `Phase_field` du code `TrioCFD` [19, 20] en insistant sur les équations à résoudre ainsi que la résolution numérique de ces équations. Ensuite, nous étudions deux cas de simulations avec le modèle `Phase_field` binaire. Les résultats de ces simulations nous permettent par la suite de faire le choix de passer à `TrioCFD` pour les besoins d’extension du modèle binaire vers $n > 2$ -aire. Enfin, dans la dernière partie du chapitre, nous détaillons l’extension du modèle `Phase_field` binaire vers le modèle multicomposant $n > 2$ -aire.

4.1 Modèle `Phase_field` dans `TrioCFD`

Afin de prendre en compte les phénomènes couplés d'hydrodynamique et de transfert de masse, nous utilisons le code `TrioCFD` [19, 20] qui est un code open-source développé au CEA dédié à la résolution des différents problèmes de thermohydrauliques dans le domaine de l'énergie nucléaire, en particulier les situations incidentelles et accidentelles. Le code `TrioCFD` contient plusieurs modèles permettant de traiter des problèmes allant d'écoulements monophasiques incompressibles (avec des modèles de turbulences ou non) à des écoulements multiphasiques. Pour ces derniers, en se limitant à une approche monofluide¹, différents traitements de l'interface sont proposés avec des modèles tels que le Front Tracking, le VOF/FT [141] et le modèle de Cahn–Hilliard. Tous ces modèles se basent sur l'architecture modulaire de `TRUST` [19] qui assure le traitement de toute la partie numérique entre autres les schémas de résolution, la parallélisation et la discrétisation spatiale.

Dans `TRUST`, pour ce qui est d'une approche monofluide, deux discrétisations spatiales y sont proposées : le VDF (Volumes Différences Finies) pour les maillages structurés cartésiens et le VEF (Volumes Elements Finis) pour les maillages triangulaires ou tétraédriques. Dans les deux cas, les équations sont discrétisées et résolues sur des volumes de contrôle tandis que les flux et les opérateurs différentiels sont évalués par des approximations différences finies pour le VDF ou éléments finis pour le VEF.

Dans cette thèse, nous nous intéressons au modèle de Cahn–Hilliard qui porte le nom de `Phase_field` dans `TrioCFD` et se base sur la discrétisation VDF. Cette méthode VDF utilise un maillage décalé où les composantes normales de la vitesse sont portées sur les faces du volume de contrôle et la pression, la température ainsi que le paramètre d'ordre (fraction molaire ou concentration, etc...) sont localisés au centre de la maille. Un schéma représentatif de la structure de la méthode VDF est montré en Figure 4.1.

1. Il existe une architecture pour des modèles multfluides associés à des schémas de discrétisations sur maillage polyédriques développée récemment dans `TRUST`.

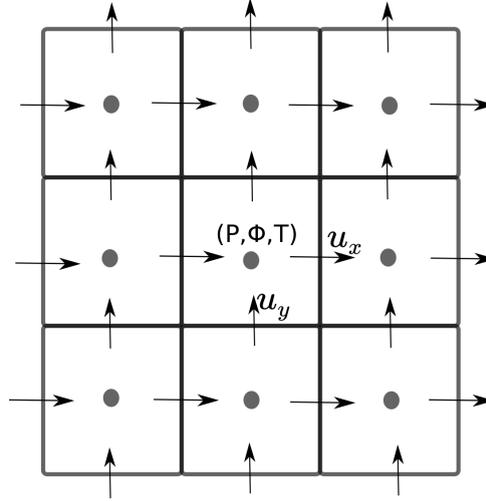


FIGURE 4.1 : Schéma représentatif en 2D de la méthode VDF utilisée dans TrioCFD.

Dans la version 1.8.4 de TrioCFD, une seule équation de Cahn–Hilliard peut être résolue et couplée avec les équations de Navier–Stokes. Dans ce système binaire, ce couplage se traduit par

- une équation de Cahn–Hilliard advective

$$\underbrace{\frac{\partial \phi}{\partial t}}_{\text{variation de } \phi} + \underbrace{\mathbf{u} \cdot \nabla \phi}_{\text{advection CH}} = \underbrace{\nabla \cdot (\mathcal{M} \nabla \tilde{\mu})}_{\text{source CH}} \quad (4.1)$$

avec

$$\tilde{\mu} = \lambda \frac{dF_H}{d\phi} - \kappa \nabla^2 \phi \quad (4.2)$$

- les équations de Navier–Stokes pour un fluide incompressible à masse volumique variable

$$\rho(\phi) \left(\underbrace{\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t}}_{\text{variation de } \mathbf{u}} + \underbrace{(\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u}}_{\text{convection NS}} \right) = \underbrace{-\nabla P}_{\text{force pression}} + \underbrace{\tilde{\mu} \nabla \phi}_{\text{force capillaire}} + \underbrace{\rho(\phi) \mathbf{g}}_{\text{force gravite}} + \underbrace{\eta \Delta \mathbf{u}}_{\text{force visqueuse}} \quad (4.3)$$

- l'équation de continuité

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (4.4)$$

avec \mathcal{M} la mobilité, $\tilde{\mu}$ le potentiel de diffusion, P la pression, $\rho(\phi)$ la masse volumique qui est fonction du paramètre d'ordre ϕ , $\rho(\phi) \mathbf{g}$ la force liée à la gravité et η la viscosité

dynamique. Le terme $\tilde{\mu}\nabla\phi$ représente une des formes possibles [101, 142] de la force de tension de surface dont nous discuterons plus en détail dans la Section 4.4.4.

Dans l'Eq. 4.3, la masse volumique est écrite dans le cas général où elle est fonction du paramètre d'ordre ϕ . Dans certaines études, lorsque la différence de masse volumique entre les deux phases n'est pas très importante, l'approximation de Boussinesq est utilisée. Les variations de masse volumique ne sont prises en compte que dans le terme de gravité. Elle peut être écrite sous la forme

$$\rho(\phi) = \rho^* (1 + \beta\phi) \quad (4.5)$$

avec $\rho^* = \rho(\phi^*)$ la masse volumique de référence correspondant à ϕ^* et $\beta = \frac{1}{\rho^*} \frac{\partial\rho}{\partial\phi}$ l'opposé du coefficient de dilatation liée au paramètre d'ordre ϕ . Les équations de Navier–Stokes à résoudre sous l'approximation de Boussinesq s'écrivent

$$\rho^* \left(\frac{\partial\mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla)\mathbf{u} \right) = -\nabla P + \tilde{\mu}\nabla\phi + \underbrace{[\rho(\phi) - \rho^*]}_{\rho^*\beta\phi} \mathbf{g} + \eta\Delta\mathbf{u} \quad (4.6)$$

où la pression P est redéfinie comme $P = P_0 + \rho^*gz$ telle que P_0 la pression hydrostatique.

4.2 Résolution numérique de l'équation de Cahn–Hilliard

Dans cette section, nous discutons de la résolution numérique des équations de Cahn–Hilliard en effectuant une description succincte et non exhaustive de certaines méthodes rencontrées dans la littérature avant de présenter celle adoptée dans le modèle `Phase_field` de `TrioCFD`.

4.2.1 Description générale

Le caractère non linéaire et son ordre élevé (4 en espace) rendent la résolution numérique de l'équation de Cahn–Hilliard difficile. En effet, cet ordre élevé de l'équation de CH impose des sévères restrictions sur le pas de temps pour les méthodes explicites, rendant, en pratique obligatoire l'utilisation d'algorithmes implicites ou semi-implicites. Le traitement semi-implicite peut être avantageux pour des mobilités constantes car le terme d'ordre 4 devient linéaire [143]. En l'occurrence, le terme de dissipation d'ordre 4 est traité de manière

implicite tandis que le terme non linéaire d'ordre 2 est traité de manière explicite [144]. Cette technique semi-implicite permet d'utiliser un pas de temps plus grand que celui dans le cas entièrement explicite tout en conservant une méthode numérique simple.

Concernant la résolution implicite, le terme non linéaire peut être résolu avec la méthode du point milieu comme rapporté dans [145, 146], de Newton-Raphson utilisée dans la plateforme PROCOR [59] ou dans [147, 148], de JFNK (Jacobian-Free Newton Krylov) [149] combinée à une méthode itérative type GMRES (Generalized Minimal RESidual) [150] comme dans les travaux de Zhang *et al.* [151], des approximations non linéaire de Eyre [152] ou de Gomez et Hughes dans [153]. Ces méthodes ont l'avantage d'assurer la stabilité du modèle car l'équation de CH est résolue de manière totalement implicite mais sont plus difficile à implémenter.

Tout en restant dans la résolution implicite, certains auteurs proposent une linéarisation du terme non linéaire. On peut citer par exemple les travaux de Guillén-González *et al.* [154] qui utilisent une approximation basée sur la méthode de quadrature de Gauss-Hermite ou de Wu *et al.* [155] dans un modèle de croissance de tumeur où la linéarisation se fait à partir d'un développement limité avec un ajout d'une stabilisation par diffusivité artificielle. Cette technique par linéarisation a l'avantage de réduire le temps de calcul lié au traitement du terme non linéaire mais donne des résultats moins précis que dans le cas où la non linéarité est conservée.

Dans la littérature, il existe différentes méthodes pour traiter la non linéarité dans l'équation de CH. Chacune de ces méthodes présente des avantages et des inconvénients vis-à-vis de la précision, de la stabilité, de la facilité d'implémentation et du coût de calcul [156]. Le choix de méthode dépend généralement de la nature du problème, de la méthode de discrétisation et de l'environnement de calculs utilisés.

4.2.2 Résolution de l'équation de CH dans `Phase_field`

Dans le modèle `Phase_field` de TrioCFD, la résolution de l'équation de Cahn–Hilliard s'effectue en deux étapes. Une première étape associée au traitement uniquement du terme diffusif et une deuxième étape dans laquelle le terme advectif est pris en compte. Le terme de diffusion calculé dans la première étape est traité ensuite comme un terme source dans la deuxième étape. Ce découpage en deux étapes de l'équation de Cahn–Hilliard s'apparente à la méthode d'“operator splitting” [157–160] qui, lorsque appliquée aux équations de diffusion-advection a l'avantage de pouvoir utiliser deux schémas et donc deux pas de temps

différents pour les termes d’advection et de diffusion tout en préservant numériquement l’équilibre entre ces termes.

D’une manière générale, la résolution implicite est préférée à l’explicite par sa stabilité inconditionnelle. Ainsi, elle présente l’avantage de pouvoir utiliser un pas de temps plus grand que celui d’une résolution explicite. Pour un traitement implicite, deux méthodes de résolution du système non linéaire sont disponibles dans le code `Phase_field` : la méthode du point fixe [161] et la méthode JFNK (Jacobian-Free Newton Krylov) [149]. Cette méthode JFNK est également utilisée dans le code de calcul par champ de phase MARMOT [162], basé sur le *framework* MOOSE² [163] dans lequel les systèmes d’équations non linéaires associées sont résolues soit par la méthode de Newton inexacte soit par la méthode JFNK.

La méthode JFNK est privilégiée par rapport à la méthode du point fixe dans les simulations avec le code `Phase_field` car elle a l’avantage de pouvoir résoudre le problème non linéaire sans calculer directement la jacobienne, sans pour autant perdre en précision. En effet, la méthode JFNK utilise une approximation par différences finies de la jacobienne avec une résolution inexacte du système linéaire à chaque itérations par une méthode GMRES (Generalized Minimal RESidual) [150]. Par ailleurs, l’étude de comparaison dans [151] montre que la méthode de Newton et la méthode JFNK donnent toutes deux la même solution (et donc la même erreur), mais la méthode JFNK nécessite plus de temps de calcul en raison des calculs nécessaires à l’approximation de la jacobienne. Le grand avantage de cette méthode est sa capacité à fournir des résultats corrects même dans le cas où la matrice jacobienne est incomplète [151]. Pour ces raisons, dans toutes les simulations qui suivent, la résolution avec la méthode JFNK est utilisée. Les détails sur la résolution de l’équation de Cahn–Hilliard avec les étapes successives et son couplage avec l’équation de Navier–Stokes, la discrétisation temporelle des équations ainsi que la mise en place des systèmes d’équations sous forme matricielle sont discutées en Annexe D et Annexe E.

4.3 Simulations préalables en binaire

Comme évoqué précédemment, ce travail de thèse a permis en partie de redonner vie au modèle `Phase_field` de TrioCFD et de vérifier sa capacité à résoudre le problème couplé de CHNS. Dans cette section, nous partons de ce code binaire et présentons deux

2. MOOSE ou Multiphysics Object-Oriented Simulation Environment est un programme développé en C++ par le laboratoire national d’Idaho pour traiter différents problèmes multiphysiques à partir de discrétisation par éléments finis.

cas d'étude afin d'observer sa capacité à traiter de tels problèmes. Pour cela, dans un premier temps, nous effectuons des simulations des instabilités de Rayleigh–Taylor (RT) en régime linéaire dans le but de comparer les taux de croissance de ces instabilités avec la théorie et les résultats issus d'un code pseudo-spectral de R. Zanella *et al.* [7]. Dans un second temps, nous effectuons des simulations de la stratification du corium pseudo-binaire (le mélange U-O-Zr représente la phase oxyde et le fer la phase métallique), de la même manière que R. Zanella *et al.* [51] afin de montrer à quel point le modèle de Cahn–Hilliard de `TrioCFD` permet de reproduire ces résultats, de voir la limite de ce code binaire pour la caractérisation du transitoire de stratification du corium et *in fine* de montrer le besoin de passer à la résolution du système $n > 2$ -aire pour des simulations quantitatives du transitoire de stratification. Dans chacun des cas, nous présentons d'abord une petite description du problème, suivie des paramètres du modèle avant de présenter les résultats des simulations dans la dernière partie.

4.3.1 Validation vis-à-vis du régime linéaire de croissance de l'instabilité de Rayleigh–Taylor

L'évolution des instabilités de Rayleigh–Taylor peut être distinguée en deux régimes : aux premiers instants, un régime linéaire où le mouvement du fluide peut se réduire en première approximation aux équations linéaires suivi d'un régime non linéaire à temps long où les effets non linéaires ne sont plus négligeables [164].

Dans cette étude, nous considérons que les fluides sont parfaits et nous nous intéressons uniquement à la première phase des instabilités de RT (régime linéaire) pour laquelle les taux de croissance sont connus de manière analytique. Dans ce régime linéaire, l'amplitude de perturbation augmente exponentiellement avec le temps. Pour deux fluides parfaits de masse volumique ρ_0 (fluide du bas) et ρ_1 (fluide du haut) séparés par une interface horizontale Δh soumise à une perturbation initiale sous forme exponentielle telle que

$$\Delta h(t) = \zeta(t) \cos(kx) \quad (4.7)$$

avec

$$\zeta(t) = \zeta_0 e^{\alpha t} \quad (4.8)$$

où $k > 0$ le nombre d'onde³, $\zeta_0 = 5 \times 10^{-5} \Lambda_0$ l'amplitude initiale de perturbation, Λ_0 la longueur d'onde de perturbation et α le taux de croissance obtenu à partir de la relation de dispersion

$$\alpha = \sqrt{\frac{\rho_1 - \rho_0}{\rho_0 + \rho_1} g k - \frac{\sigma}{\rho_0 + \rho_1} k^3} \quad (4.9)$$

D'après le critère de stabilité, le système est instable si

$$\frac{\rho_1 - \rho_0}{\rho_0 + \rho_1} g k - \frac{\sigma}{\rho_0 + \rho_1} k^3 > 0 \quad (4.10)$$

De ce fait, dans le cas où $\rho_1 > \rho_0$, l'analyse de stabilité linéaire montre que le système est instable pour tout nombre d'onde $k \in]0, k_c[$ où k_c est le nombre d'onde critique donné par

$$k_c = \sqrt{\frac{(\rho_1 - \rho_0)g}{\sigma}} \quad (4.11)$$

R. Zanella *et al.* dans [7] montre une comparaison des taux de croissance théoriques avec les résultats numériques obtenus par un modèle de Cahn–Hilliard à partir d'un code pseudo-spectral. Dans la présente étude, notre objectif est de comparer les taux de croissance obtenus par le modèle `Phase_field` de `TrioCFD` avec ceux de la théorie en Eq. 4.9 et les résultats issus du code pseudo-spectral de R. Zanella *et al.* dans [7]. En ce sens, nous nous intéressons uniquement aux nombres d'onde instables et considérons les mêmes paramètres que R. Zanella *et al.* [7] pour réaliser cette comparaison.

4.3.1.1 Paramètres du problème

Notre configuration est composée d'un domaine 2D rectangulaire de taille $[0, L_x] \times [0, L_y]$ séparé par une interface horizontale en $y = \frac{L_y}{2}$. Dans toutes les simulations, nous supposons qu'il n'y a qu'un seul mode de perturbation dans le domaine, soit $L_x = \Lambda_0 = \frac{1}{I_0} = \frac{2\pi}{k_0}$ avec I_0 un paramètre que nous faisons varier entre 1 et $\frac{k_c}{2\pi}$. En conséquence, la taille du domaine diminue lorsque I_0 augmente.

3. Le nombre d'onde k est relié à la longueur d'onde Λ par $k = \frac{2\pi}{\Lambda}$.

La masse volumique du fluide du bas (resp. du haut) est $\rho_0 = 1000\text{kg.m}^{-3}$ (resp. $\rho_1 = 1010\text{kg.m}^{-3}$), ce qui donne un nombre d'Atwood⁴ de $A_t \simeq 5 \times 10^{-3}$. Pour de telles valeurs du nombre d'Atwood ($A_t \ll 1$), l'approximation de Boussinesq est généralement utilisée.

La masse volumique s'écrit

$$\rho(\phi) = \rho^*(1 + \beta\phi) \quad (4.12)$$

avec $\beta \simeq 9.95 \times 10^{-3}$ et $\rho^* = 1005\text{kg.m}^{-3}$.

Par ailleurs, les paramètres du modèle sont construits à partir des mêmes grandeurs physiques que R. Zanella *et al.* [7] à savoir

- la tension de surface fixée à $\sigma = 5 \times 10^{-2}\text{N.m}^{-1}$,
- la mobilité $\mathcal{M} = 10^{-5}\text{J}^{-1}.\text{m}^5\text{s}^{-1}$,
- le terme non linéaire du potentiel chimique défini par $\frac{dF_H}{d\phi} = 4\phi \left(\phi - \frac{1}{2}\right) \left(\phi + \frac{1}{2}\right)$ et
- l'épaisseur d'interface numérique $\varepsilon = \frac{\Lambda_0}{64}$ correspondant à 8 mailles dans l'interface soit $\Delta x = \Delta y = \frac{\varepsilon}{8}$.

Le pas de temps associé est défini comme $\Delta t = \frac{10^{-2}\Lambda_0}{4}$ afin d'assurer la convergence lorsqu'on augmente I_0 . Afin d'éviter les effets de bords, nous mettons $L_y = 2L_x$ de telle sorte que les bords du haut et du bas sont suffisamment éloignés. Des conditions aux limites de non-pénétration ($\mathbf{u} \cdot \mathbf{n} = 0$) sont imposées aux bords. L'état initial est imposé par

$$\phi(x, y) = \frac{1}{2} \tanh \left(\frac{2 \left(y - \frac{L_y}{2} - \zeta_0 \cos(2\pi I_0 x) \right)}{\varepsilon} \right) \quad (4.13)$$

4.3.1.2 Résultats

L'évolution des instabilités de Rayleigh–Taylor à différents instants pour $I_0 = 3$ est montrée en Figure 4.2. La faible perturbation imposée à l'état initial croît de manière exponentielle à $t \in]0, 3.5]$ suivie d'une formation d'un champignon caractéristique du

4. Le nombre d'Atwood est donné par le rapport de masse volumique $A_t = \frac{\rho_1 - \rho_0}{\rho_0 + \rho_1}$.

régime non linéaire. Dans cette étude, nous nous limitons au cas régime linéaire *i.e.* entre $t = 0s$ et $t = 3.5s$ de la Figure 4.2.

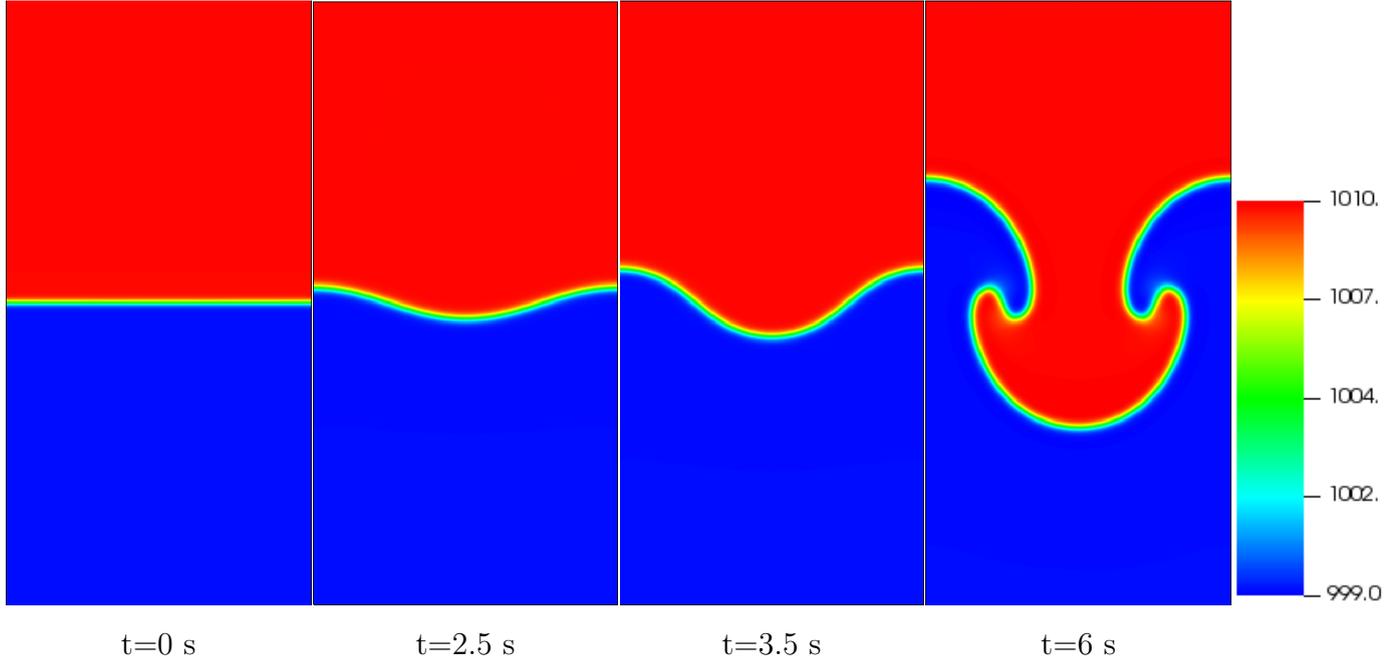


FIGURE 4.2 : Évolution de la masse volumique dans les instabilités de RT à différents instants pour $I_0 = 3$.

En régime linéaire, la croissance exponentielle de l'interface induit une croissance exponentielle de la vitesse avec le même taux de croissance. Autrement dit, la vitesse en régime linéaire des instabilités de RT est proportionnelle à $e^{\alpha t}$. Bref, nous pouvons écrire l'expression de l'énergie cinétique comme proportionnelle à $e^{2\alpha t}$

$$E_k = \frac{\int_V \frac{1}{2} \rho \|\mathbf{u}\|^2 dV}{\int_V dV} \sim e^{2\alpha t} \quad (4.14)$$

La Figure 4.3 met en évidence l'évolution de cette énergie cinétique à deux échelles différentes (linéaire et logarithmique) et confirme sa croissance exponentielle en régime linéaire. À partir d'une régression linéaire en passant à l'échelle logarithmique (voir Figure 4.3b), nous pouvons déterminer la valeur du taux de croissance de l'instabilité correspondant à la moitié de la pente de cette courbe.

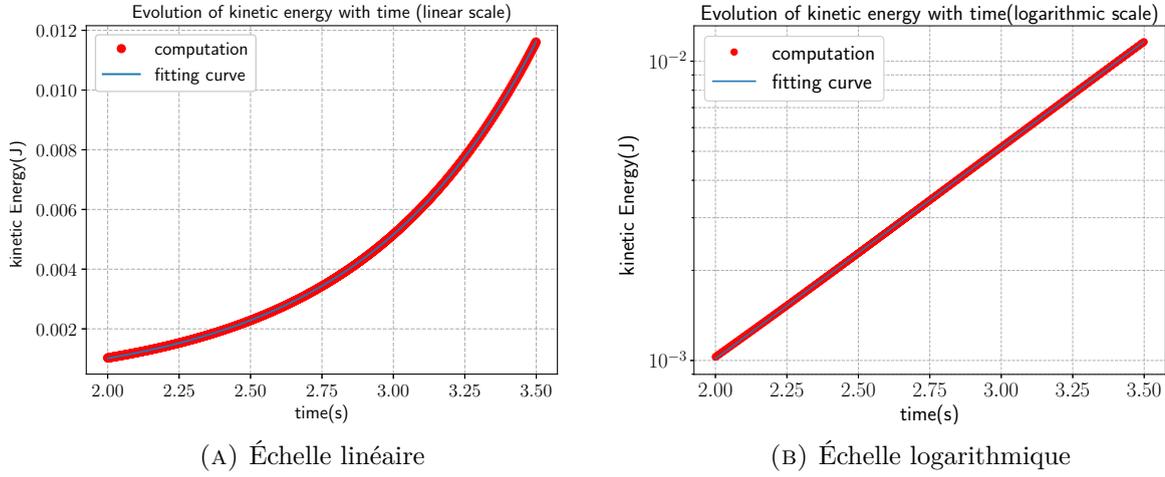


FIGURE 4.3 : Évolution de l'énergie cinétique en fonction du temps pour $I_0 = 3$ à l'échelle linéaire (A) et à l'échelle logarithmique (B).

Nous présentons en Figure 4.4 la comparaison des taux de croissance des instabilités de RT pour différentes valeurs de I_0 obtenus par TrioCFD avec leurs valeurs théoriques et numériques obtenues par R. Zanella *et al.* [7]. Il est montré que les taux de croissance du modèle `Phase_field` de TrioCFD sont en bon accord avec ceux de la théorie et du code pseudo-spectral. L'erreur relative maximale observée est d'environ 7.5% par rapport à la théorie, ce qui correspond à l'ordre de grandeur des erreurs sur les taux de croissance vis-à-vis de $\frac{\varepsilon}{L}$ comme rapporté dans R. Zanella *et al.* [7].

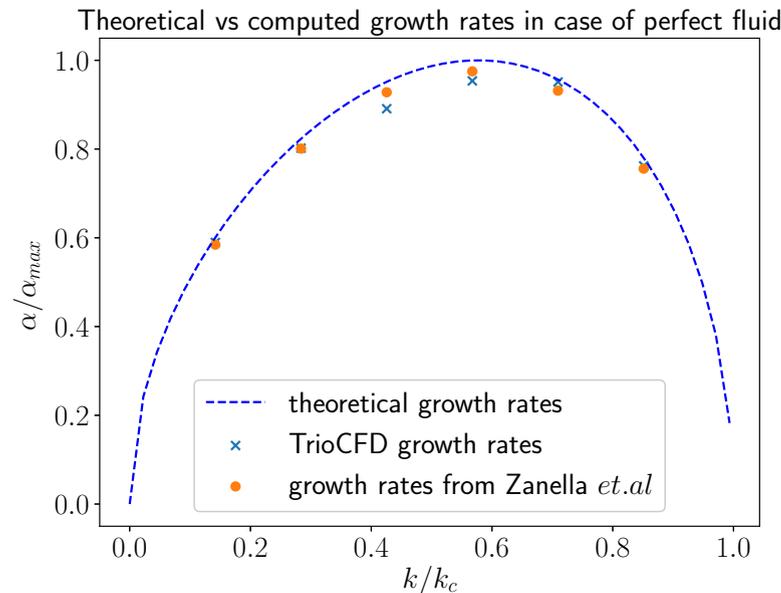


FIGURE 4.4 : Comparaison des taux de croissance des instabilités de RT obtenus par TrioCFD avec ceux de la théorie et de R. Zanella *et al.* [7].

Les résultats de comparaison des taux de croissance des instabilités de RT démontrent la capacité de l'implémentation dans TrioCFD du modèle `Phase_field` à résoudre le problème d'instabilité de RT et constituent une première étape vers la simulation de la stratification du corium en cuve.

4.3.2 Calcul démonstratif de la stratification du corium en pseudo-binaire

Dans cette étude, nous partons d'un système qui est inspiré de l'essai MASCA-RCW [4] dans lequel un corium sous oxydé d'environ 45 kg est mis en contact avec environ 5 kg d'acier dans un creuset froid à haute température. Cet essai n'a pas atteint le régime permanent et a été arrêté au bout de 20 minutes. Cependant, l'analyse post-mortem du lingot a montré le transitoire de stratification, produit du couplage des phénomènes d'hydrodynamique et de transfert de masse interfacial. Notre objectif est de reproduire cet essai afin d'observer ce comportement, en particulier la formation du métal lourd.

L'application visée pour le couplage du modèle de Cahn–Hilliard avec les équations de l'hydrodynamique est l'étude du comportement transitoire de la stratification du corium en cuve. Le système représentatif du corium est composé des éléments $\{U, O, Zr, Fe\}$ mais l'étude de ce système nécessite la résolution de plusieurs équations de Cahn–Hilliard. À

ce stade, nous considérons le corium comme un système pseudo-binaire *i.e.* le mélange (U-O-Zr) représente la phase oxyde et l'élément Fe constitue la phase métallique. Ainsi, une seule équation de Cahn–Hilliard est suffisante pour décrire le système. Ce calcul permet de montrer la faisabilité de ce modèle `Phase_field` de `TrioCFD` à traiter notre problème d'intérêt de stratification du corium en cuve dans un système simplifié.

4.3.2.1 Paramètres du problème

Pour cette étude, nous considérons un domaine 2D de taille $[0, L_x] \times [0, L_y]$ avec $L_x = 0.18\text{m}$ et $L_y = 0.26\text{m}$ séparé par une interface horizontale en $y_{int} = 0.23\text{m}$. Le système est composé de l'élément fer et le mélange corium oxydé. La composition du fer noté ϕ_{Fe} est pris comme paramètre d'ordre pour notre modèle du champ de phase. Le terme de flottabilité est écrit sous la forme $(\rho - \rho^* \vec{g})$ avec ρ^* la masse volumique de la phase oxyde à l'état initial et ρ une fonction de ϕ_{Fe} obtenue par une interpolation linéaire par morceaux des masses volumiques du Tableau 4.1. Les valeurs de ϕ_{Fe} et de la masse volumique de chacune des phases à l'état initial et à l'équilibre sont récapitulées dans le Tableau 4.1.

TABLEAU 4.1 : Composition de l'élément Fe dans chacune des phases et la masse volumique des deux phases à l'état initial et à l'état d'équilibre obtenues par calcul d'équilibre thermodynamique sous la base NUCLEA'09 [13] à $T = 3000\text{K}$.

	État Initial		État d'Équilibre	
	Phase oxyde	Phase métallique	Phase oxyde	Phase métallique
ϕ_{Fe}	0	1	1.88×10^{-3}	6.16×10^{-1}
ρ (kg.m ⁻³)	8.25×10^3	6.97×10^3	7.98×10^3	9.01×10^3

L'expression du terme non linéaire correspondant est donnée par

$$\frac{dF_H}{d\phi} = 2(\phi - \phi^{ox,eq})(\phi - \phi^{met,eq})(2\phi - \phi^{ox,eq} - \phi^{met,eq}) \quad (4.15)$$

La tension de surface peut être évaluée à partir du modèle de Girifalco [134] en supposant l'hypothèse du volume molaire constant⁵ par

5. L'hypothèse du volume molaire constant est une hypothèse forte mais admise dans notre cas. Ici, il est uniquement question d'obtenir un ordre de grandeur de la tension de surface pour réaliser des simulations démonstratives. Des études dans la littérature [57, 139] montrent qu'en supposant le volume molaire constant, la tension de surface est comparable et reste du même ordre de grandeur que celle obtenue avec un volume molaire non constant.

$$\sigma = \sigma_{UO_2} + \sigma_{Fe} - 2\sqrt{\sigma_{UO_2}\sigma_{Fe}} \simeq 0.385 N.m^{-1} \quad (4.16)$$

Dans le cas du corium, l'épaisseur d'interface est de l'ordre du nanomètre ($\varepsilon_{ref} \sim 10^{-9}m$) et la mobilité est de l'ordre de $M_{ref} \sim 10^{-18}J^{-1}.m^5s^{-1}$. Cependant, nous ne pouvons pas atteindre cette épaisseur d'interface, c'est la raison pour laquelle nous introduisons le paramètre d'*upsaling* λ discuté dans le Chapitre 2. Dans notre simulation, nous considérons que

- l'épaisseur d'interface numérique correspond à 5 mailles, soit $\varepsilon = \frac{\varepsilon_{ref}}{\lambda} = 1.125 \times 10^{-2}m$ et
- la mobilité numérique est fixée à $M = 3.125 \times 10^{-11}J^{-1}.m^5s^{-1}$ obtenue à partir de la relation $M = \frac{\varepsilon}{\varepsilon_{ref}}M_{ref}$.

Par ailleurs, nous avons constaté que des instabilités numériques peuvent apparaître lorsqu'on impose la viscosité physique du corium (de l'ordre de $[10^{-3}, 10^{-2}]Pa.s$). En effet, la viscosité donne une échelle de coupure en dessous de laquelle la dissipation est efficace. Avec le maillage considéré ici, cette échelle n'est pas résolue et la cascade d'énergie de la turbulence s'accumule aux petites échelles entraînant une instabilité numérique du code comme observée dans [165, 166]. Une des techniques pour résoudre ces instabilités numériques est la méthode de stabilisation par viscosité entropique pour les écoulements à faible viscosité qui consiste à calculer une viscosité artificielle considérée comme viscosité de sous-maille lorsque les échelles ne sont pas suffisamment résolues dans les phases [165, 166]. Dans cette étude, pour raisons de simplification et dans le but de réaliser uniquement des calculs démonstratifs, nous avons considéré, à la manière des travaux de R. Zanella [51], une viscosité plus grande $\eta = 0.1 Pa.s$ tout en assurant la séparation d'échelles entre temps de diffusion et temps associé à l'hydrodynamique.

Enfin, nous imposons des conditions aux limites de non-glissement (vitesses normale et tangentielle sont nulles) aux bords du domaine et une condition initiale de la forme

$$\phi(x, y) = \frac{1}{2} \left(1 + \tanh \left(\frac{2 \left(y - y_{int} - \zeta_0 \left(2 \frac{Rand(x)}{x} - 1 \right) \right)}{\varepsilon} \right) \right) \quad (4.17)$$

avec y_{int} la position de l'interface plane, $\zeta_0 = 5 \times 10^{-5}L_x$ l'amplitude initiale de perturbation et $Rand(x)$ un générateur de nombres pseudo-aléatoires qui donne une valeur entre 0 et x pour permettre la naissance de l'instabilité de RT lorsque l'inversion de masse volumique

sera suffisante. Cette condition initiale permet d’avoir dès l’instant initial une interface diffuse dont $\phi = 0$ dans la phase oxyde, $\phi = 1$ dans la phase métallique et $\phi \in]0, 1[$ à l’interface.

4.3.2.2 Résultats qualitatifs

Les résultats de simulation à différents instants sont présentés en Figure 4.5. La configuration initiale est composée de deux couches : une couche de fer (plus légère) au dessus du mélange sous oxydé (plus lourd). Un transfert de masse par diffusion s’effectue entre le fer et le mélange du dessous. La concentration du fer dans le mélange augmente tandis que celle dans la couche de métal supérieur diminue, ce qui modifie la masse volumique des deux phases. À un moment donné, la phase métallique du dessus devient plus lourde que la phase oxyde. Cette inversion de stratification induit une instabilité de Rayleigh–Taylor et crée par la suite des gouttes de métal qui tombent rapidement au fond de la cuve. L’accumulation de ces gouttes de métal conduit à la formation d’une deuxième couche de métal lourd en dessous de la phase oxyde. L’état initial à deux couches devient donc une configuration à trois couches. Le système étant fermé⁶, cette couche de métal lourd provient de la couche supérieure et l’épaisseur de celle-ci se retrouve plus fine, favorisant ainsi le phénomène de “focusing effect”.

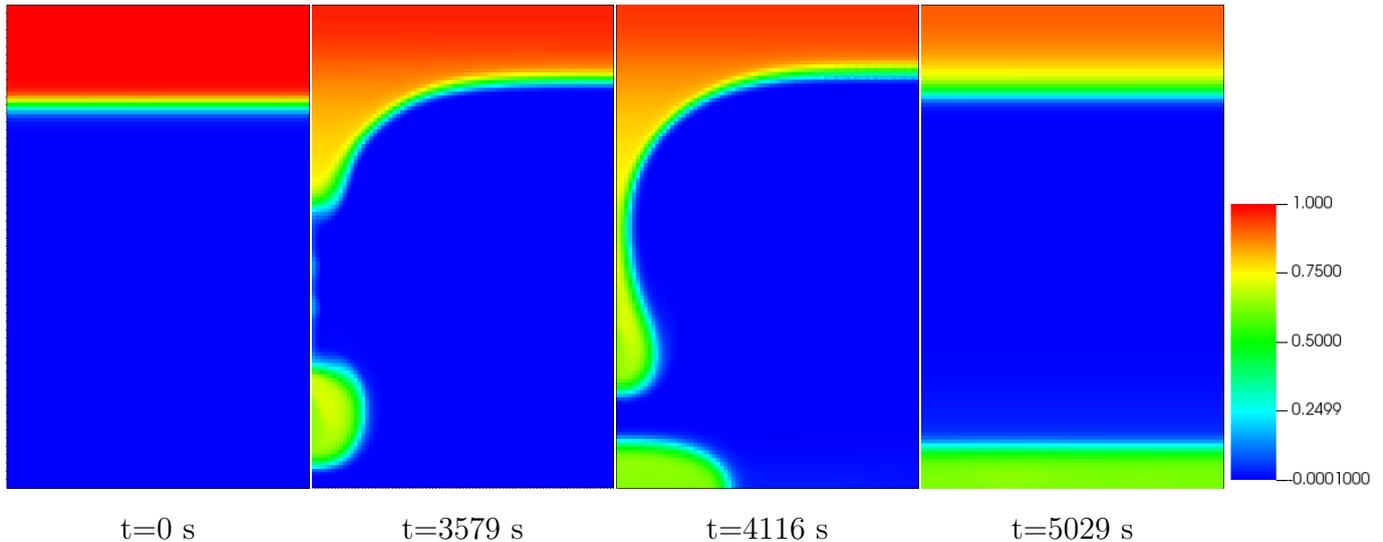


FIGURE 4.5 : Évolution de ϕ_{Fe} dans le bain de corium à différents instants pendant le premier transitoire de stratification (la formation de la couche métallique lourde).

6. Par opposition au cas réacteur où le système est ouvert dans le sens où un apport d’acier issu de la structure interne de la cuve vient s’ajouter au système.

La dynamique globale de la première phase du transitoire de stratification du corium en cuve observée dans les simulations de R. Zanella [51] a été reproduite qualitativement. Le transfert de masse à l'interface, l'instabilité de RT, le détachement et chute des gouttes métalliques et sa coalescence au fond de la cuve constituent le processus de formation de la couche métallique inférieure. Néanmoins, ces résultats restent qualitatifs et les différences (en l'occurrence la géométrie, les conditions aux limites,...) ne permettent pas de réaliser une comparaison avec les résultats de R. Zanella [51]. Les conditions de calcul pour ces simulations sont conçues de manière *ad hoc* pour obtenir des résultats qualitatifs semblables à l'essai MASCA-RCW [4] tout en ne respectant pas la physique du corium. Pour aller vers des simulations quantitatives, la résolution du système $n > 2$ -aire est indispensable en considérant le système quaternaire comme représentatif du corium. Pour ce faire, dans la deuxième partie de ce chapitre, nous améliorons la capacité du modèle `Phase_field` de `TrioCFD` afin qu'il puisse résoudre plusieurs équations de Cahn–Hilliard et prendre en compte toutes les subtilités liées au modèle multicomposant $n > 2$ -aire.

4.4 Extension du modèle binaire vers $n > 2$ -aire

Dans cette section, nous étendons la capacité du modèle `Phase_field` binaire à résoudre plusieurs équations de Cahn–Hilliard dans le but de caractériser de manière quantitative les phénomènes couplés d'hydrodynamique et de transfert de masse, en particulier dans la stratification du corium en cuve. Pour ce faire, nous apportons des modifications dans le code `Phase_field` binaire de `TrioCFD` afin qu'il soit capable de résoudre plusieurs équations de Cahn–Hilliard couplées avec les équations de Navier–Stokes. Pour préserver le code binaire existant, nous avons décidé de développer le code $n > 2$ -aire à partir d'un système d'embranchements conditionnels permettant de choisir la version utilisée (binaire ou $n > 2$ -aire). Faisant ainsi permet de simplifier la vérification du développement $n > 2$ -aire (lorsque $n=1$ équation de CH) avec le code binaire. À terme, ce système d'embranchement sera supprimé dans le code et on ne gardera que la version $n > 2$ -aire. Les développements discutés dans cette section ont été réalisés avec la version 1.8.4 de `TrioCFD` et sont déjà intégrés dans `TrioCFD 1.9.2` sorti en juin 2023. Dans la suite, nous montrons les modifications majeures apportées dans cette version $n > 2$ -aire du modèle `Phase_field` de `TrioCFD`.

4.4.1 Résolution numérique dans la version $n > 2$ -aire

Le système CHNS est résolu de la même manière que dans le modèle binaire à la différence que la matrice associée à la résolution du système est de taille $(n - 1) \times (n - 1)$ blocs associés aux $n - 1$ paramètres d'ordre du système. En effet, la version $n > 2$ -aire qui permet la résolution de $n - 1$ équations de CH nécessite de généraliser la construction de cette matrice de telle sorte que sa taille soit définie par le nombre d'équations de CH à résoudre contrairement au code binaire où elle est fixée. Les détails sur les différentes matrices de résolution du système sont donnés en Annexe E.

4.4.2 Matrice des coefficients de gradient

À la différence du cas binaire, le coefficient de gradient devient une matrice $\overline{\overline{\kappa^*}}$ de taille $(n - 1) \times (n - 1)$ dans le développement $n > 2$ -aire pour l'évaluation du potentiel chimique $\tilde{\mu}_i$

$$\tilde{\mu}_j = \lambda \left(\frac{\partial F_H}{\partial \phi_j} \right)_{\phi_l \neq j} - \sum_{l=1}^{N_c} \kappa_{j,l}^* \nabla^2 \phi_l \quad (4.18)$$

En lien avec le chapitre précédent sur la recherche du profil de composition optimal (profil monotone avec faible adsorption), nous avons implémenté dans ce modèle étendu de `Phase_field` une option permettant de prendre en compte la définition de $\overline{\overline{\kappa^*}}$ telle que

$$\overline{\overline{\kappa^*}} = \alpha R D R^T \quad (4.19)$$

avec

$$R(\theta) = \begin{pmatrix} \cos \theta & -\sin \theta \\ \sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix} \quad (4.20)$$

$$D(d) = \begin{pmatrix} 2 & 0 \\ 0 & d \end{pmatrix} \quad (4.21)$$

$$\alpha = \frac{\kappa_{ref}^{bin}}{2 \cos^2 \theta + d \sin^2 \theta} \quad (4.22)$$

Si cette option est activée, il faut définir les valeurs du préfacteur α , du paramètre d , de l'angle de rotation θ et du coefficient de gradient de référence κ_{ref}^{bin} afin d'assurer la cohérence avec le modèle binaire.

4.4.3 Matrice mobilité

La mobilité chimique devient une matrice de taille $(n - 1) \times (n - 1)$ également dans le cas multicomposant. Les coefficients de cette matrice peuvent être fixes tout au long de la simulation (mobilité constante) ou fonction des paramètres d'ordre ϕ_i (mobilité dégénérée). Dans le cas où la mobilité est constante, ce sont les valeurs de la mobilité numérique $\mathcal{M}^* = \frac{\mathcal{M}}{\lambda}$ qui sont introduites directement par l'utilisateur non pas la mobilité physique \mathcal{M} . L'équation de CH prise en compte dans la résolution numérique est de la forme

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \phi_i = \nabla \cdot \left(\sum_{j=1}^{N_c} \mathcal{M}_{i,j}^* \nabla \tilde{\mu}_j \right) \quad (4.23)$$

Dans le cas d'une mobilité dégénérée, elle est définie comme

$$\mathcal{M}_{i,j} = \frac{V_m}{RT} \sum_{k=1}^{N_c+1} (\delta_{i,k} - \phi_i) (\delta_{j,k} - \phi_j) \phi_k D_k \quad (4.24)$$

avec $R = 8.314 \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ (fixé dans le code). Les valeurs du volume molaire V_m en $\text{m}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$ et de la température T en K , de tous les coefficients d'auto-diffusion D_k (pour tous les n composants du système) doivent être définis. Dans l'équation de CH à résoudre, cette mobilité physique sera divisée par λ , soit

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \phi_i = \nabla \cdot \left(\sum_{j=1}^{N_c} \frac{\mathcal{M}_{i,j}}{\lambda} \nabla \tilde{\mu}_j \right) \quad (4.25)$$

Il faut souligner qu'indépendamment du choix de résolution de l'équation de CH, la mobilité est toujours évaluée au temps t^n dans le code `Phase_field` de `TrioCFD`. Cette évaluation de la mobilité au temps t^n simplifie l'algorithme de résolution numérique du système à résoudre mais peut devenir une contrainte vis-à-vis de la stabilité numérique.

4.4.4 Traitement du terme *force capillaire*

Dans la littérature [101, 142, 167], la force de tension de surface peut avoir plusieurs formes. Dans notre modèle $n > 2$ -aire, nous avons choisi d'opter pour la forme proposée dans [101]

$$\text{force capillaire} = \sum_{i=1}^{n-1} \tilde{\mu}_i \nabla \phi_i \quad (4.26)$$

qui nous permet d'obtenir la même expression que dans le système binaire en Eq. 4.3 lorsqu'on ne considère qu'une seule équation de Cahn–Hilliard. Par ailleurs, ce terme *force capillaire* apparaît dans

$$\nabla \left(\sum_{i=1}^{n-1} \tilde{\mu}_i \phi_i \right) = \sum_{i=1}^{n-1} \phi_i \nabla \tilde{\mu}_i + \sum_{i=1}^{n-1} \tilde{\mu}_i \nabla \phi_i \quad (4.27)$$

Avec la résolution par méthode de projection de l'équation de NS dans `TrioCFD` et en prenant en compte l'Eq. 4.27, le terme *force capillaire* peut prendre des formes différentes modifiant ainsi la pression utilisée dans l'équation de Poisson

$$-\nabla P + \sum_{i=1}^{n-1} \tilde{\mu}_i \nabla \phi_i = -\nabla \left(P - \sum_{i=1}^{n-1} \tilde{\mu}_i \phi_i \right) - \sum_{i=1}^{n-1} \phi_i \nabla \tilde{\mu}_i \quad (4.28)$$

Dans `TrioCFD`, d'autres formes qui sont équivalentes au niveau continu existent mais peuvent potentiellement donner des résultats différents au niveau discret du fait de la discrétisation spatiale et de la résolution numérique. La forme la plus utilisée présentant l'avantage numérique d'avoir un terme source nul à l'équilibre (car $\tilde{\mu} = \text{cste}$) est celle proposée en Eq. 4.28. Quelques autres formes possibles de ce terme de pression et *force capillaire* sont données en Annexe D.

4.4.5 Approximation de Boussinesq et loi de densité

Dans la version $n > 2$ -aire de `Phase_field`, nous nous sommes limités à l'approximation de Boussinesq dans notre développement pour le traitement de la masse volumique dans les équations de Navier–Stokes⁷. Sous l'hypothèse du volume molaire constant⁸ (*i.e.* le volume molaire de l'élément i est indépendant de la composition ϕ_i pour chaque élément i), à partir d'un développement limité d'ordre 1 autour d'une masse volumique de référence $\rho^* = \rho(\phi_1^*, \phi_2^*, \dots, \phi_{n-1}^*)$, la masse volumique vaut

$$\rho(\phi_1, \phi_2, \dots, \phi_{n-1}) = \rho^* + \frac{\partial \rho}{\partial \phi_1} (\phi_1 - \phi_1^*) + \frac{\partial \rho}{\partial \phi_2} (\phi_2 - \phi_2^*) + \dots + \frac{\partial \rho}{\partial \phi_{n-1}} (\phi_{n-1} - \phi_{n-1}^*) \quad (4.29)$$

7. Dans la version binaire, la masse volumique est écrite dans sa forme générale *i.e.* elle peut être soumise à l'approximation de Boussinesq ou non.

8. L'hypothèse du volume molaire constant est une hypothèse forte car l'effet des réactions chimiques est négligé.

qu'on peut également écrire comme

$$\rho(\phi_1, \phi_2, \dots, \phi_{n-1}) = \rho^* \left(1 + \underbrace{\frac{1}{\rho^*} \frac{\partial \rho}{\partial \phi_1} (\phi_1 - \phi_1^*) + \frac{1}{\rho^*} \frac{\partial \rho}{\partial \phi_2} (\phi_2 - \phi_2^*) + \dots + \frac{1}{\rho^*} \frac{\partial \rho}{\partial \phi_{n-1}} (\phi_{n-1} - \phi_{n-1}^*)}_{\sum_{i=1}^{n-1} \beta_i (\phi_i - \phi_i^*)} \right) \quad (4.30)$$

où ρ^* est la masse volumique de référence et $\beta_i = \frac{1}{\rho^*} \frac{\partial \rho}{\partial \phi_i}$ représente l'opposé du coefficient de dilatation en fonction de la composition ϕ_i .

Comme ϕ_i^* est une fonction linéaire de ϕ_i , on peut alors écrire

$$\sum_{i=1}^{n-1} \beta_i (\phi_i - \phi_i^*) = \sum_{i=1}^{n-1} \beta_i^* \phi_i \quad (4.31)$$

avec $\beta_i^* = \beta_i$ dans le cas particulier où $\phi_i^* = 0$.

L'expression de la masse volumique linéarisée devient

$$\rho = \rho(\phi_1, \phi_2, \dots, \phi_{n-1}) = \rho^* \left(1 + \sum_{i=1}^{n-1} \beta_i^* \phi_i \right) \quad (4.32)$$

Finalement, sous l'approximation de Boussinesq, l'équation du bilan de quantité de mouvement s'écrit dans TrioCFD comme

$$\rho^* \left(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \right) = -\nabla P + \sum_{i=1}^{n-1} \tilde{\mu}_i \nabla \phi_i + \underbrace{\rho^* \sum_{i=1}^{n-1} \beta_i^* \phi_i \mathbf{g}}_{(\rho - \rho^*)} + \eta \Delta \mathbf{u} \quad (4.33)$$

avec une redéfinition de la pression P telle que

$$-\nabla P = -\nabla (P_0 + \rho^* g z) \quad (4.34)$$

où P_0 est la pression hydrostatique et \mathbf{g} dérive d'un potentiel soit $\mathbf{g} = -\nabla(gz)$.

4.4.6 Terme non linéaire du potentiel chimique

Pour ce modèle étendu de `Phase_field`, le terme non linéaire est obtenu à partir d'une fonction double puits analytique sous forme de *produit de deux paraboloïdes* comme discuté

en Section 3.6

$$\Omega^* = P^\alpha \times P^\beta \quad (4.35)$$

avec Ω^* le grand potentiel modifié⁹, P^α et P^β les paraboloides associés aux deux phases α et β . Par conséquent, en considérant $\tilde{\mu}_i^{eq} = 0$, on a

$$\frac{\partial F_H}{\partial \phi_i} = \frac{\partial \Omega^*}{\partial \phi_i} = P^\alpha \frac{\partial P^\beta}{\partial \phi_i} + P^\beta \frac{\partial P^\alpha}{\partial \phi_i} \quad (4.36)$$

tel que pour un système ternaire composé des paramètres d'ordre ϕ_A et ϕ_B auxquels on fixe un couple de points d'équilibre $(\phi_A^{eq,k}, \phi_B^{eq,k})$, on a $\forall k \in \{\alpha, \beta\}$

$$\begin{aligned} \frac{\partial P^k}{\partial \phi_A} = 2(\phi_A - \phi_A^{eq,k}) & \left[\frac{\cos^2 \psi^k}{(a_1^k)^2} + \frac{\sin^2 \psi^k}{(a_2^k)^2} \right] \\ & + 2(\phi_B - \phi_B^{eq,k}) \left[\frac{\cos \psi^k \sin \psi^k}{(a_1^k)^2} - \frac{\sin \psi^k \cos \psi^k}{(a_2^k)^2} \right] \end{aligned} \quad (4.37)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial P^k}{\partial \phi_B} = 2(\phi_A - \phi_A^{eq,k}) & \left[\frac{\cos \psi^k \sin \psi^k}{(a_1^k)^2} - \frac{\sin \psi^k \cos \psi^k}{(a_2^k)^2} \right] \\ & + 2(\phi_B - \phi_B^{eq,k}) \left[\frac{\sin^2 \psi^k}{(a_1^k)^2} + \frac{\cos^2 \psi^k}{(a_2^k)^2} \right] \end{aligned} \quad (4.38)$$

Dans cette section, nous ne présentons que le cas du système ternaire mais dans le développement $n > 2$ -aire, le terme non linéaire pour un système quaternaire a été implémenté également. Les détails sur ces équations sont présentés en Annexe C.

4.4.7 Test de vérification de l'implémentation $n > 2$ -aire

Afin de vérifier l'implémentation effectuée dans la version $n > 2$ -aire, nous considérons un potentiel chimique correspondant à la *somme des doubles puits binaires* soit

$$F_H = \sum_{i=1}^{n-1} (\phi_i - \phi_i^{\alpha,eq})^2 (\phi_i - \phi_i^{\beta,eq})^2 \quad (4.39)$$

9. $\Omega^* = \Omega - \Omega^{eq}$ avec Ω le grand potentiel et Ω^{eq} le grand potentiel à l'équilibre thermodynamique.

ce qui donne

$$\left(\frac{\partial F_H}{\partial \phi_i}\right) = 2(\phi_i - \phi_i^{\alpha,eq})(\phi_i - \phi_i^{\beta,eq})(2\phi_i - \phi_i^{\alpha,eq} - \phi_i^{\beta,eq}) \quad (4.40)$$

avec $\phi_i^{\alpha,eq}$ et $\phi_i^{\beta,eq}$ les deux points d'équilibre dans la phase α et la phase β associés à l'élément i .

La mobilité et la matrice des coefficients de gradient sont de la forme

$$\overline{\overline{\mathcal{M}^*}} = M_{bin} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (4.41)$$

$$\overline{\overline{\kappa}} = \kappa_{bin} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (4.42)$$

avec M_{bin} et κ_{bin} la mobilité et le coefficient du gradient de référence dans le binaire. Faisant ainsi et en gardant les mêmes propriétés physiques pour le système, cela équivaut à résoudre deux équations de Cahn–Hilliard de manière séparées comme

$$\begin{cases} \frac{\partial \phi_1}{\partial t} = \nabla \cdot (M_{bin} \nabla \tilde{\mu}_1) \\ \frac{\partial \phi_2}{\partial t} = \nabla \cdot (M_{bin} \nabla \tilde{\mu}_2) \end{cases} \quad (4.43)$$

avec

$$\tilde{\mu}_1 = \lambda \frac{dF_H}{d\phi_1} - \kappa_{bin} \nabla^2 \phi_1 \quad (4.44)$$

$$\tilde{\mu}_2 = \lambda \frac{dF_H}{d\phi_2} - \kappa_{bin} \nabla^2 \phi_2 \quad (4.45)$$

En effet, comme le terme non linéaire pris dans ce test est sous forme d'une somme de deux fonctions polynômes et que la mobilité et l'énergie de gradient sont des matrices diagonales, il n'y a donc pas de couplage entre les 2 équations de Cahn–Hilliard.

En utilisant la version $n > 2$ -aire du code `Phase_field` de `TricCFD` avec ces conditions de calculs, nous avons obtenu exactement les mêmes résultats que pour le cas de référence avec le code "binaire". Ces calculs nous ont permis de vérifier que les matrices de résolution ainsi que les implémentations effectuées dans cette généralisation sont cohérentes et le système à plusieurs équations de CH est bien résolu. Dans le prochain chapitre, nous discuterons des calculs avec le potentiel chimique issu d'un produit de deux paraboloïdes

en Eq. 4.36 dans lequel le couplage entre les équations de Cahn–Hilliard est inévitable (car le couplage est inclus directement dans l’expression analytique du terme non linéaire).

4.5 Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons montré le couplage des équations de CH avec celles de NS afin de caractériser les phénomènes à la fois de transfert de masse et d’hydrodynamique. Basé sur la méthode VDF, le modèle `Phase_field` de `TrioCFD` a été choisi dans ce travail pour notre modélisation fine et détaillée du comportement du bain de corium en transitoire de stratification.

Dans la première partie de ce chapitre, nous avons discuté du modèle `Phase_field` en présentant les méthodes de résolution de CH, en particulier la méthode JFNK [149] pour traiter le terme non linéaire. Avant ce travail de thèse, l’application `Phase_field` ne pouvait résoudre qu’une seule équation de CH couplée avec NS. Cette thèse a permis de reprendre en main ce code en réalisant deux cas de simulations pour montrer la capacité de `Phase_field` à résoudre le problème couplé de CHNS. D’une part, les taux de croissance des instabilités de Rayleigh–Taylor en régime linéaire obtenus par ce code binaire montre un bon accord avec les valeurs théoriques et numériques de R. Zanella *et al.* [7] issues d’un code pseudo-spectral. Cette étude comparative constitue une première étape vers la simulation du transitoire de stratification du corium en cuve. Par la suite, la formation du métal lourd a été reproduit au travers des simulations de la stratification du corium dans un système pseudo-binaire mais les conditions de calcul sont différentes de la physique du corium et ces résultats restent qualitatifs à ce stade. Néanmoins, ces résultats nous ont montré que le code `Phase_field` pouvait donner des résultats intéressants, ce qui a appuyé notre choix d’améliorer sa capacité à résoudre plusieurs équations de CH pour aller vers des simulations plus quantitatives. Les résultats obtenus dans la première partie de ce chapitre ont fait l’objet d’un article intitulé “Two-dimensional Numerical Simulation of Rayleigh–Taylor Instabilities in Immiscible Fluids Using the `Phase_field` Model of `TrioCFD` code” présenté à la conférence internationale *NUTHOS-13* (Nuclear Reactor Thermal-Hydraulics, Operation and Safety) [168] et constitue la première communication sur le modèle `Phase_field` de `TrioCFD`.

Dans la seconde partie de ce chapitre, nous avons montré les différentes modifications majeures apportées au code `Phase_field` binaire à savoir la taille des matrices, la généralisation de la résolution numérique, le traitement des différents termes dans les équations

CHNS et l'ajout d'une nouvelle expression analytique du terme non linéaire sous forme de produit de deux paraboloides correspondant au système ternaire et quaternaire. Des tests de vérification de l'implémentation du code $n > 2$ -aire avec le cas binaire à partir d'un potentiel chimique simple sans couplage sont présentés à la fin de ce chapitre. Les développements implémentés sont déjà disponibles dans la version *1.9.2* de `TriocFD` sortie en juin 2023.

CHAPITRE 5

SIMULATIONS D'UNE GOUTTE MULTICOMPOSANT SOUMISE À UN TRANSFERT DE MASSE

Afin de caractériser les phénomènes couplés d'hydrodynamique et de transfert de masse avec l'implémentation du modèle $n > 2$ -aire de `Phase_field` de `TrioCFD`, nous réalisons des simulations de la dynamique d'une goutte multicomposant soumise à un transfert de masse dans un domaine fluide. Ce cas de simulation inspiré du travail expérimental de Rao *et al.* [8] a été choisi car les phénomènes physiques rencontrés sont similaires à ceux d'une goutte d'acier dans un bain de corium lors du transitoire de stratification [169].

Ce chapitre est divisé en deux parties. D'abord, une première partie dans laquelle nous ne simulons pas directement un cas de l'expérience de Rao *et al.* [8] mais effectuons une étude paramétrique vis-à-vis de la mobilité en gardant la même configuration générale que le dispositif expérimental. Elle a pour but d'investiguer et d'analyser les phénomènes couplés que simule ce modèle $n > 2$ -aire de manière à vérifier son bon comportement. Puis, dans la seconde partie, à partir de la Section 5.6, nous simulons un cas de l'expérience de Rao *et al.* [8] et comparons les résultats numériques avec ceux de l'expérience pour initier la démarche vers la validation du modèle $n > 2$ -aire de `Phase_field`.

5.1 Description générale du problème

Les simulations réalisées dans ce chapitre sont inspirées du travail expérimental de Rao *et al.* [8] dans lequel une goutte composée d'acétonitrile (élément miscible dans l'eau et plus léger que l'eau) et de chlorobenzène (élément immiscible dans l'eau et plus lourd

que l'eau) est éjectée dans une colonne d'eau (Figure 5.1a). La goutte est soumise à un transfert de masse de l'élément miscible avec la phase continue qui induit par la suite un mouvement ascendant et descendant de la goutte dans la colonne d'eau.

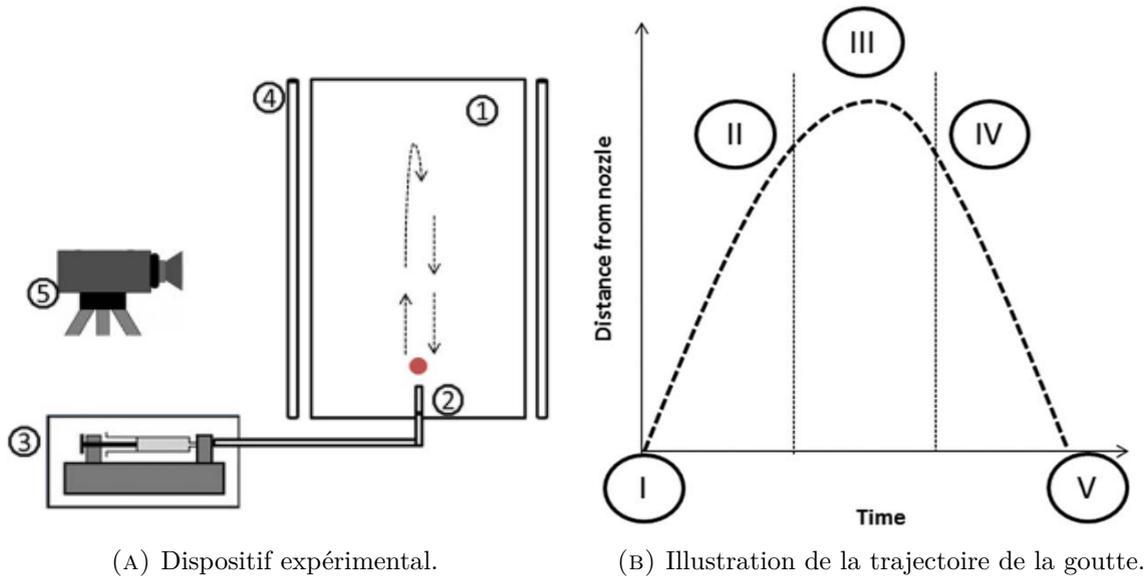


FIGURE 5.1 : (A) Schéma de l'installation expérimentale avec (1) réservoir en verre rempli d'eau, (2) embout en borosilicate, (3) pompe à seringue, (4) système d'éclairage et (5) une caméra rapide. (B) Illustration de la trajectoire de la goutte en fonction du temps. Figure adaptée de Rao *et al.* [8]

De la même manière que le travail de Rao *et al.* [8], nous considérons dans ce chapitre une goutte composée d'un élément A miscible (plus léger que l'eau) et d'un élément B immiscible (plus lourd que l'eau) que l'on place dans un domaine rempli d'eau. Selon sa composition initiale, la goutte peut se déplacer vers le haut ou vers le bas. Ainsi, si la composition de la goutte est suffisamment riche en élément léger, elle sera poussée vers le haut par la force de flottabilité. Toutefois, en raison de la diffusion de l'élément miscible dans l'eau, la quantité d'élément A dans la goutte va diminuer tandis que la quantité d'élément lourd B reste constante. Cela implique que la masse volumique de la goutte augmente jusqu'à devenir supérieure à celle de l'eau.

Avec une goutte initiale plus légère que l'eau, cela se traduit schématiquement en Figure 5.1b par

- une première phase d'ascension de la goutte due à l'effet de la poussée d'Archimède (entre I et II de la Figure 5.1b),

- suivie d'une deuxième phase où la goutte atteint un point seuil lorsque les masses volumiques des deux phases sont égales (zone III de la Figure 5.1b) et
- enfin, une phase descendante où la masse volumique de la goutte augmente jusqu'à atteindre celle de l'élément B (entre IV et V de la Figure 5.1b).

De ce fait, deux phénomènes couplés sont observés : le transfert de masse au travers de la diffusion de l'élément A dans l'eau et l'hydrodynamique au travers du mouvement ascendant et descendant de la goutte. Considérer que le transfert de masse est le même que pour une goutte au repos est incorrect car cela néglige l'advection qui affecte la composition autour de la goutte. Inversement, l'approximation où ce transfert de masse est calculé en considérant une goutte dans l'eau pure conduit à un comportement différent de la goutte car elle néglige la couche de diffusion qui se forme autour de celle-ci. Ces deux approximations opposées aboutissent pour la première à une sous-estimation du transfert de masse et pour la seconde à une surestimation. Pour reproduire quantitativement la dynamique souhaitée, il faut prendre en compte les phénomènes couplés d'hydrodynamique avec un changement de masse volumique induit par le transfert de masse des composants. L'étude du problème entièrement couplé est indispensable en résolvant les équations de Cahn–Hilliard advectives pour les phénomènes de transfert de masse avec les équations de Navier–Stokes pour l'hydrodynamique. Avec ϕ_i la composition de l'élément $i \in \{A, B\}$ comme paramètre d'ordre, on a

$$\begin{aligned} \frac{\partial \phi_i}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \phi_i &= \nabla \cdot \left(\sum_{j \in \{A, B\}} \mathcal{M}_{i,j} \nabla \tilde{\mu}_j \right) \\ \tilde{\mu}_i &= \lambda \frac{\partial G}{\partial \phi_i} - \sum_{j \in \{A, B\}} \kappa_{i,j} \Delta \phi_j \end{aligned} \quad (5.1)$$

$$\rho^* \frac{d\mathbf{u}}{dt} = -\nabla P + \sum_{i \in \{A, B\}} \tilde{\mu}_i \nabla \phi_i + \left(\rho(\phi_A, \phi_B) - \rho^* \right) \mathbf{g} + \eta \Delta \mathbf{u} \quad (5.2)$$

avec \mathbf{u} la vitesse, $\tilde{\mu}_j$ le potentiel chimique de l'élément j , G l'énergie libre, $\mathcal{M}_{i,j}$ les coefficients de la matrice mobilité numérique, λ le paramètre d'*upscaling*, $\kappa_{i,j}$ les coefficients de gradient. P la pression, η la viscosité dynamique, \mathbf{g} la gravité, ρ^* la masse volumique de référence et le terme avec $\tilde{\mu}_i$ représente la force capillaire.

5.2 Paysage thermodynamique

Pour traiter ce système ternaire, du point de vue du paysage thermodynamique, nous utilisons le modèle analytique sous forme de produit de deux paraboloïdes introduit dans le précédent chapitre (et dont les détails sont en Annexe C). Le terme non linéaire $\frac{\partial G}{\partial \phi_i}$ s'écrit

$$\frac{\partial G}{\partial \phi_i} = P^{dis} \frac{\partial P^{cont}}{\partial \phi_i} + P^{cont} \frac{\partial P^{dis}}{\partial \phi_i} + \tilde{\mu}_i^{eq} \quad (5.3)$$

avec $\tilde{\mu}_i^{eq} = 0$ et

$$P^k = \left(\frac{\cos \psi^k (\phi_A - \phi_A^{eq,k}) + \sin \psi^k (\phi_B - \phi_B^{eq,k})}{a_x^k} \right)^2 + \left(\frac{-\sin \psi^k (\phi_A - \phi_A^{eq,k}) + \cos \psi^k (\phi_B - \phi_B^{eq,k})}{a_y^k} \right)^2 \quad (5.4)$$

où $\forall k \in \{dis, cont\}$, $\forall i \in \{A, B\}$, P^{dis} (resp. P^{cont}) correspond à la fonction du paraboloïde soumis à une rotation d'angle ψ^{dis} pour la phase dispersée *i.e.* la goutte (resp. ψ^{cont} pour la phase continue) et a_j^k les paramètres correspondant aux largeurs du puits de la phase k dans les deux directions $j \in \{x, y\}$.

Dans cette première partie d'investigation et d'analyse de la capacité de notre modèle $n > 2$ -aire, nous considérons le paysage thermodynamique dans sa forme la plus simple en mettant de côté les difficultés associées au choix du paysage thermodynamique de l'expérience de Rao *et al.* [8]. C'est-à-dire que pour chacune des phases k et chaque élément i , nous imposons $\psi^k = 0^\circ$ et $a_j^k = 1$ (Figure 5.2). Cela correspond au paysage "cercle" discuté en Section 3.6 où les grands et petits axes du paraboloïde sont égaux et l'angle de rotation ψ^k n'a plus d'effet sur le paysage thermodynamique. En l'occurrence, les effets d'adsorption sont absents et les profils de composition restent monotones.

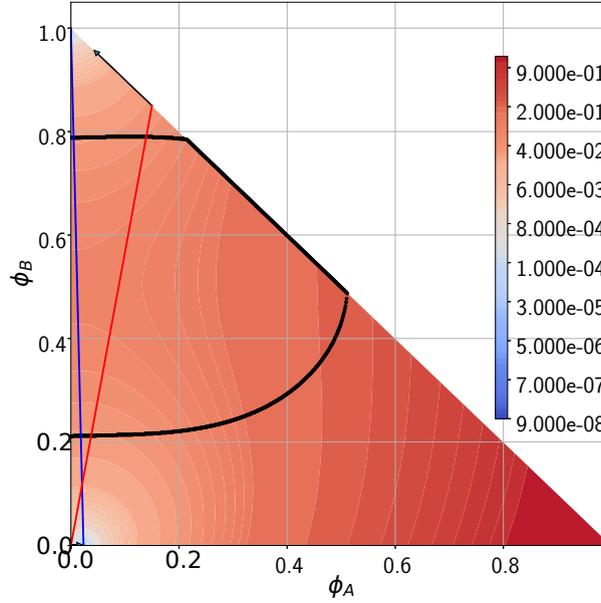


FIGURE 5.2 : Paysage thermodynamique représenté à l'échelle logarithmique dans la surface d'énergie du grand potentiel modifié Ω^* . La ligne bleue (resp. rouge) relie les compositions d'équilibre (resp. compositions initiales) et la ligne noire représente la limite de la zone spinodale.

Nous montrons sur la Figure 5.2 le paysage thermodynamique “cerle” dans la surface d'énergie du grand potentiel modifié Ω^* dans le plan (ϕ_A, ϕ_B) . La ligne spinodale au travers de la ligne noire représente la limite de la région instable de la lacune de miscibilité dans laquelle la séparation de phase peut se produire. Pour rappel, dans le cas binaire discuté dans le Chapitre 2, cette région spinodale peut être définie comme la zone correspondant à $\frac{dG}{d\phi} < 0$ où $G(\phi)$ est l'énergie libre de Gibbs fonction de l'unique paramètre d'ordre ϕ [110]. Par analogie avec le cas binaire, pour un système $n > 2$ -aire, cette zone instable correspond à la région de compositions dans laquelle toutes les valeurs propres de la matrice hessienne \mathbb{H} de coefficients $\mathbb{H}_{i,j} = \frac{\partial^2 G}{\partial \phi_i \partial \phi_j}$ sont négatives [170, 171]. Dans cette région, toute petite fluctuation de la composition diminue l'énergie libre et conduit à une séparation spontanée des phases du mélange vers les compositions d'équilibre par décomposition spinodale.

5.3 Conditions initiales et à l'équilibre

Sous l'hypothèse de volume molaire constant, nous utilisons l'approximation de Boussinesq comme loi de densité telle que

$$\rho(\phi_A, \phi_B) = \rho^* \left(1 + \sum_{i \in \{A, B\}} \beta_i^* \phi_i \right) = \rho^* (1 + \beta_A^* \phi_A + \beta_B^* \phi_B) \quad (5.5)$$

où β_A^* , β_B^* et ρ^* sont déterminés à partir de la masse volumique de chaque élément dans le système, soit

$$\begin{cases} \rho(\phi_A = 0, \phi_B = 0) = \rho^* = \rho_{eau} \\ \rho(\phi_A = 0, \phi_B = 1) = \rho^* (1 + \beta_B^*) = \rho_B \\ \rho(\phi_A = \phi_A^{ini,dis}, \phi_B = 1 - \phi_A^{ini,dis}) = \rho^* (1 + \beta_A^* \phi_A^{ini,dis} + \beta_B^* \phi_B^{ini,dis}) = \rho_{dis}^{ini} \end{cases} \quad (5.6)$$

$\phi_A^{ini,dis}$ et $\phi_B^{ini,dis}$ sont respectivement la composition initiale de l'élément A et celle de B dans la goutte, ρ_{eau} est la masse volumique de l'eau, ρ_B est celle de l'élément B (légèrement plus dense que l'eau) et ρ_{dis}^{ini} est celle de la goutte à l'état initial (légèrement plus faible que l'eau).

Les compositions initiales $\phi_A^{ini,dis}$ et $\phi_B^{ini,dis}$ des éléments dans la goutte doivent satisfaire certaines conditions. La goutte est supposée ne subir aucune déformation, ce qui signifie qu'aucune séparation de phases ne doit se produire dans la goutte. Par conséquent, les compositions initiales doivent se trouver en dehors de la région spinodale et la trajectoire des compositions vers les valeurs d'équilibre ne doivent pas traverser cette région instable. Si le point $(\phi_A^{ini,dis}, \phi_B^{ini,dis})$ se trouve dans la région spinodale, la goutte va se séparer immédiatement. Par ailleurs, si $(\phi_A^{ini,dis}, \phi_B^{ini,dis})$ se trouve hors de la lacune de miscibilité mais du même côté que le point d'équilibre de la phase continue, le système va tendre vers un système monophasique. Nous présentons plus en détail avec des exemples dans la deuxième partie de ce chapitre. Dans tous les cas, des compositions initiales dans ces zones induisent des changements topologiques de la goutte. En conséquence, pour obtenir la dynamique souhaitée, les compositions initiales des deux phases doivent nécessairement se trouver de part et d'autre de la région spinodale.

Dans notre cas, nous imposons $\phi_A^{ini,dis} = 0.15$ et $\phi_B^{ini,dis} = 0.85$ dont les directions pour atteindre leurs compositions d'équilibre sont illustrées par les flèches sur la Figure 5.2. Celles-ci sont obtenues à partir de l'orientation des gradients de Ω^* aux points de compositions

initiales. Ainsi, nous assurons qu'aucune quantité d'eau ne rentre dans la goutte. Pour des masses volumiques $\rho_{eau} = 999.5\text{kg.m}^{-3}$, $\rho_B = 1050\text{kg.m}^{-3}$ et $\rho_{dis}^{ini} = 980\text{kg.m}^{-3}$, nous obtenons $\beta_A^* = -0.416$ et $\beta_B^* = 0.05$.

En outre, d'une part, à l'état d'équilibre, tout l'élément miscible est supposé dissout dans la phase continue tandis que la goutte est composée uniquement de l'élément B. Dans ce cas, le volume de la goutte à l'équilibre devient $(1 - \phi_A^{ini,dis})V_{dis}^{ini}$. Avec $\phi_A^{ini,dis} = 0.85$, cela correspond à une réduction de volume de 15% et de rayon de 7.8%.

D'autre part, la fraction molaire de l'élément A dans cette phase continue à l'équilibre, sous l'hypothèse de volume molaire constant et par conservation de la masse, doit dépendre de la taille du domaine et est donnée par

$$\phi_A^{eq,cont} = \frac{\phi_A^{ini,dis} \times V_{dis}^{ini}}{V_{tot} - (1 - \phi_A^{ini,dis})V_{dis}^{ini}} \quad (5.7)$$

avec V_{tot} le volume total du domaine, $\phi_A^{ini,dis}$ la masse volumique de l'élément A dans la phase dispersée (goutte) à l'état initial et V_{dis}^{ini} le volume initial de la goutte. Par l'Eq. 5.7, nous avons $\phi_A^{eq,cont} \rightarrow 0$ si $V_{tot}/V_{dis}^{ini} \rightarrow \infty$.

Enfin, afin d'éviter le gradient de composition trop élevé dans les premiers instants, nous imposons comme condition initiale une interface diffuse entre la goutte et la phase continue. La composition initiale ϕ_i dans le domaine est donnée par

$$\phi_i(x, y, t = 0) = \frac{\phi_i^{ini,dis} + \phi_i^{ini,cont}}{2} + \frac{\phi_i^{ini,cont} - \phi_i^{ini,dis}}{2} \tanh\left(\frac{\sqrt{(x - x_0)^2 + (y - y_0)^2} - R}{\varepsilon}\right) \quad (5.8)$$

avec (x_0, y_0) les coordonnées du centre de la goutte dans le domaine 2D. Les compositions des éléments A et B ainsi que la masse volumique de chacune des phases à l'état initial et à l'équilibre sont récapitulées dans le Tableau 5.1.

TABLEAU 5.1 : Récapitulatif des compositions des éléments A et B ainsi que la masse volumique de chacune des phases à l'état initial et d'équilibre.

phase	état initial	état d'équilibre
phase dispersée (goutte)	$\phi_A^{ini,dis} = 0.15$ $\phi_B^{ini,dis} = 0.85$ $\rho_{dis}^{ini} = 980\text{kg.m}^{-3}$	$\phi_A^{eq,dis} = 0$ $\phi_B^{eq,dis} = 1$ $\rho_{dis}^{eq} = \rho_B = 1050\text{kg.m}^{-3}$
phase continue	$\phi_A^{ini,cont} = 0$ $\phi_B^{ini,cont} = 0$ $\rho_{cont}^{ini} = 999.5\text{kg.m}^{-3}$	$\phi_A^{eq,cont} = \frac{\phi_A^{ini,dis} \times V_{dis}^{ini}}{V_{tot} + (\phi_A^{ini,dis} - 1)V_{dis}^{ini}}$ $\phi_B^{eq,cont} = 0$ $\rho_{cont}^{eq} = \rho_{eau} \left(1 + \beta_A^* \phi_A^{eq,cont}\right)$

5.4 Paramètres de simulation

Dans cette section, nous décrivons les paramètres de simulations en commençant par la taille du domaine et de la goutte, le maillage et les propriétés du fluide. Ensuite, nous présentons les paramètres d'interface tels que les coefficients de gradient et le paramètre d'*upscaling* avec leurs expressions respectives. Enfin, nous discutons de la matrice de mobilité utilisée comme paramètre de contrôle dans notre étude.

5.4.1 Configuration

La configuration est constituée d'un domaine rectangulaire 2D de largeur $L_x = 54 \times 10^{-3}$ m et de longueur $L_y = 95 \times 10^{-3}$ m dans lequel est étudié le mouvement d'une goutte circulaire de rayon initial $R = 3.3 \times 10^{-3}$ m. Celle-ci est placée suffisamment loin des parois pour éviter les effets de bord. La Figure 5.3 montre une image de la goutte afin de mettre en évidence sa position vis-à-vis des bords latéraux (gauche et droite). Des conditions aux limites sans glissement (les deux composantes des vitesses sont nulles) sont imposées aux bords du domaine. Un maillage uniforme est considéré dans cette étude et est fixé à 2×10^{-4} m de telle sorte qu'il y a 4 mailles dans l'interface.

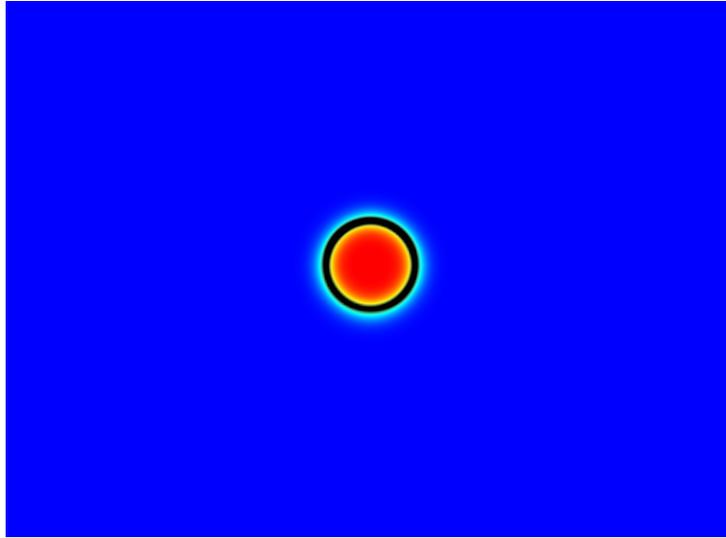


FIGURE 5.3 : Position de la goutte par rapport au largeur du domaine.

Dans cette étude, nous considérons que la diffusion de l'élément A n'affecte pas les propriétés des deux phases. Ainsi, la viscosité est supposée constante dans tout le domaine et vaut $\eta = 10^{-3}$ Pa.s. Avec une telle viscosité pour une goutte de $\sim 10^{-3}$ m se déplaçant à des vitesses de l'ordre de 10^{-2} m/s, le nombre de Reynolds correspondant est de l'ordre de 10, ce qui signifie que les effets d'inertie ne peuvent pas être négligés. Cela confirme la nécessité de résoudre les équations de Navier-Stokes car le système ne peut pas être réduit aux écoulements de Stokes.

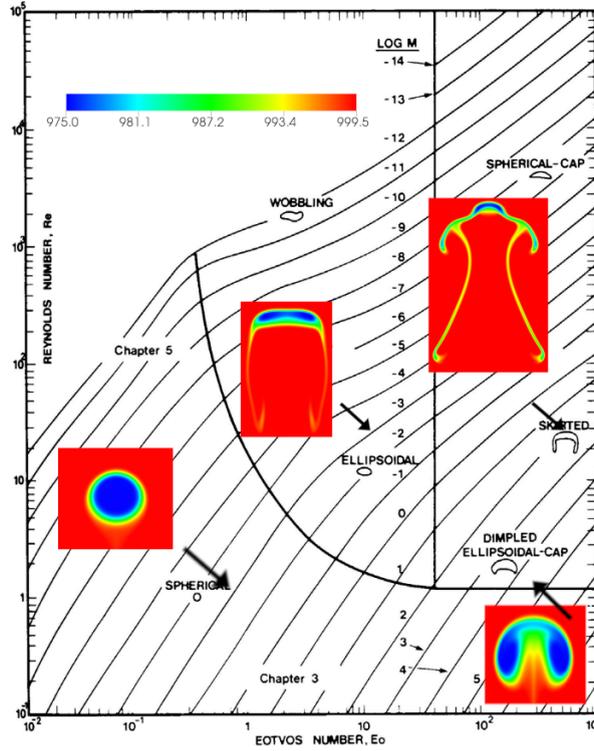


FIGURE 5.4 : Diagramme de Clift [9] décrivant la forme des bulles et gouttes en fonction des nombres d'Eötvös (Bond), de Morton et de Reynolds. Quelques formes typiques de goutte issues des calculs réalisés dans le cadre du stage de Clément Plumecocq [10] avec le modèle `Phase_field` y sont représentées.

Nous considérons la même tension de surface $\sigma = 36 \times 10^{-3}$ N/m comme dans le travail de Rao *et al.* [8]. Avec ce choix de tension de surface et les propriétés de la goutte, celle-ci reste circulaire tout au long de son mouvement. Sa forme est conditionnée par le nombre de Bond Bo (appelé aussi nombre d'Eötvös) qui représente le rapport entre les forces gravitationnelles et de tension de surface ainsi que le nombre de Morton Mo défini uniquement par les propriétés du fluide sans dépendre de la taille de la goutte.

$$Bo = \frac{\Delta\rho g D^2}{\sigma} \quad (5.9)$$

$$Mo = \frac{g \Delta\rho \eta^4}{(\rho_{cont}^2 \sigma^3)} \quad (5.10)$$

avec $\Delta\rho$ la différence de masse volumique entre les deux phases, D la longueur caractéristique qui correspond au diamètre de la goutte et ρ_{cont} la masse volumique de la phase

continue. Dans notre cas, nous avons $Bo \sim 10^{-1}$ et $Mo \sim 10^{-10}$, ce qui correspond au régime sphérique comme montré en Figure 5.4 à partir du diagramme de Clift [9].

5.4.2 Paramètres d'interface

Comme discuté dans le Chapitre 3, la construction de la matrice des coefficients de gradient $\bar{\bar{\kappa}}$ pour un système $n > 2$ -aire doit assurer la cohérence avec le système binaire. Pour cela, nous fixons les coefficients de gradient $\kappa_{i,j}$ de la matrice $\bar{\bar{\kappa}}$ et le paramètre d'*upscaling* λ à partir de la tension de surface σ et l'épaisseur d'interface ε obtenues dans le cas binaire (*i.e.* une goutte monocomposant dans une phase continue). Physiquement, ces coefficients de gradient représentent l'interaction interatomique entre les éléments. Dans notre cas, comme nous n'avons pas d'information sur cette propriété, nous supposons qu'il n'y a pas d'interaction interatomique entre l'élément A et l'élément B. Avec le paysage thermodynamique "cerle" où le profil reste toujours monotone, nous choisissons de considérer la matrice $\bar{\bar{\kappa}}$ sous sa forme diagonale

$$\bar{\bar{\kappa}} = \begin{bmatrix} \kappa^{bin} & 0 \\ 0 & \kappa^{bin} \end{bmatrix} \quad (5.11)$$

avec κ^{bin} le coefficient de gradient obtenu à partir du cas binaire.

Avec le paysage thermodynamique sous forme de produit de deux paraboloïdes, nous pouvons obtenir κ^{bin} et λ par

$$\kappa = \frac{\sigma\varepsilon}{\xi_1\xi_2} \quad (5.12)$$

$$\lambda = \frac{\xi_2\sigma}{2\varepsilon\xi_1} \quad (5.13)$$

avec ξ_1 et ξ_2

$$\xi_1 = \sqrt{\Gamma} \left(\frac{(\phi_B^{eq,dis})^3 - (\phi_B^{eq,cont})^3}{6} + \frac{\phi_B^{eq,dis}(\phi_B^{eq,cont})^2 - (\phi_B^{eq,dis})^2\phi_B^{eq,cont}}{2} \right) \quad (5.14)$$

$$\xi_2 = \left| \frac{\phi_B^{eq,cont} - \phi_B^{eq,dis}}{\max(\sqrt{\Gamma}(\phi_B - \phi_B^{eq,dis})(\phi_B - \phi_B^{eq,cont}))} \right| \quad (5.15)$$

où Γ est une constante obtenue à partir des paramètres du paysage thermodynamique telle que

$$\Gamma = \left[\left(\frac{\cos \psi^{dis}}{a_x^{dis}} \right)^2 + \left(\frac{\sin \psi^{dis}}{a_y^{dis}} \right)^2 \right] \left[\left(\frac{\cos \psi^{cont}}{a_x^{cont}} \right)^2 + \left(\frac{\sin \psi^{cont}}{a_y^{cont}} \right)^2 \right] \quad (5.16)$$

Les détails des calculs et développements de ces équations sont en Annexe C.

5.4.3 Paramètre cinétique

Les coefficients de la matrice de mobilité doivent être correctement définis, dans le sens où ce paramètre cinétique donne une mesure des temps de transfert de masse diffusif qui sont à comparer aux temps hydrodynamiques. Par souci de simplicité, nous utilisons la forme non dégénérée (constante) dans cette étude de la même manière que pour la matrice des coefficients de gradient $\bar{\bar{\kappa}}$, soit

$$\bar{\bar{\mathcal{M}}} = \begin{bmatrix} M & 0 \\ 0 & M \end{bmatrix} \quad (5.17)$$

avec M un paramètre de contrôle que l'on fait varier entre 10^{-8} ; 5×10^{-9} , 2.5×10^{-9} , 1×10^{-9} et 5×10^{-10} . Dans la suite, pour alléger le corps du texte et simplifier la lecture, le paramètre M est parfois écrit sans unité mais il faut noter qu'il est exprimé en $\text{J}^{-1}\text{m}^5\text{s}^{-1}$. Nous discuterons plus en détail de l'effet de ce paramètre sur les résultats de simulations dans la prochaine section.

5.5 Résultats

Dans cette section, nous présentons les résultats de simulations en commençant par la trajectoire de la goutte. Ensuite, nous discutons de sa vitesse en soulignant les différences et similitudes avec un modèle réduit. Enfin, dans la dernière partie, nous discutons de l'effet de Gibbs–Thomson avec quelques clichés du domaine à différents instants.

5.5.1 Trajectoire

Tout d'abord, la goutte se distingue de la phase continue par la quantité d'élément immiscible présente puisqu'il n'y a quasiment pas de transfert de masse d'élément immiscible

vers la phase continue. Ainsi, nous pouvons définir la position de la goutte (x_G, y_G) à partir de la position du centre de masse par

$$x_G = \frac{\int_V \phi_B x dV}{\int_V \phi_B dV} \quad (5.18)$$

$$y_G = \frac{\int_V \phi_B y dV}{\int_V \phi_B dV} \quad (5.19)$$

Comme prévu, les calculs montrent que x_G reste constant durant toute la simulation. La goutte suit alors une trajectoire rectiligne qui se résume à la variation de y_G , comme montré en Figure 5.5 pour différentes mobilités. Sa trajectoire comprend une phase ascendante suivie d'une phase descendante. Dans la phase d'ascension, la goutte, initialement plus légère que l'eau environnante, commence à monter pendant que le composant miscible se diffuse progressivement dans l'eau. Après un certain temps, la goutte atteint une hauteur maximale, devient plus lourde que la phase continue et finit par retomber dans celle-ci. Qualitativement, ce comportement est en bon accord avec les résultats expérimentaux de Rao *et al.* [8].

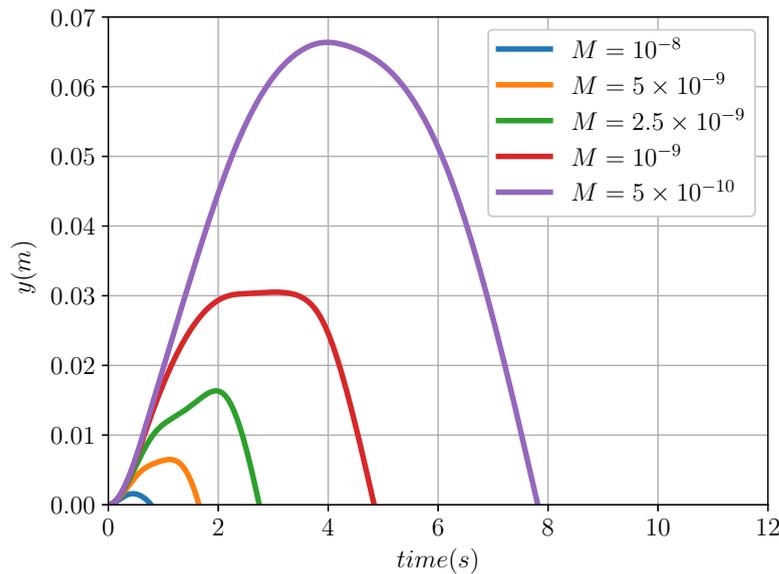


FIGURE 5.5 : Position de la goutte en fonction du temps pour différentes mobilités.

La Figure 5.5 met en évidence le rôle de la mobilité dans la dynamique générale de la goutte. Celle-ci caractérise la compétition entre les termes d'advection et de diffusion dans le modèle du champ de phase. En effet, l'amplitude et la durée de son mouvement dépendent fortement de la mobilité. Pour $M = 10^{-8}$, la hauteur maximale de la goutte est d'environ $\sim R/2$ (R étant le rayon de la goutte) alors que pour $M = 5 \times 10^{-10}$, elle est d'environ $\sim 20R$. Ceci est cohérent avec le fait que le temps caractéristique de diffusion τ obtenu par adimensionnement des équations de Cahn–Hilliard est proportionnel à l'inverse de la mobilité *i.e.* $\tau \sim \frac{1}{M}$. Pour des mobilités plus faibles, la diffusion est plus lente. Par conséquent, la goutte monte assez haut. Inversement, lorsque la mobilité M est plus grande, la diffusion devient plus rapide et la goutte n'a pas le temps de monter plus haut.

5.5.2 Vitesse

Afin de mieux analyser ce comportement vis-à-vis de la mobilité, nous examinons en détail dans cette section l'évolution de la vitesse de la goutte obtenue à partir de la courbe d'évolution de la position en Figure 5.5. Pour cela, nous présentons dans un premier temps une description qualitative du comportement de la goutte avant de discuter de la variation de la vitesse pour différentes mobilités, en particulier des singularités observées avec certaines valeurs.

5.5.2.1 Description qualitative

Nous présentons dans un premier temps en Figure 5.6 une courbe typique (en l'occurrence $M = 5.10^{-9}$) de l'évolution temporelle de la vitesse de la goutte. Libérée sans vitesse initiale, celle-ci subit une phase d'accélération dès les premiers instants, atteint une vitesse maximale puis décélère jusqu'à atteindre la vitesse terminale. Nous montrons également sur la même Figure 5.6 les champs de masse volumique aux instants correspondant à l'état initial, la vitesse maximale, la vitesse nulle et la vitesse terminale. La masse volumique de la goutte augmente au cours du temps et lorsque la goutte atteint sa vitesse terminale, sa masse volumique est égale à celle de l'élément immiscible, ce qui est cohérent avec les conditions à l'équilibre imposées dans notre problème. À ce stade, ces champs de masse volumique illustrent d'ores et déjà l'interaction entre les phénomènes de diffusion et d'hydrodynamique dans la dynamique d'une goutte multicomposant.

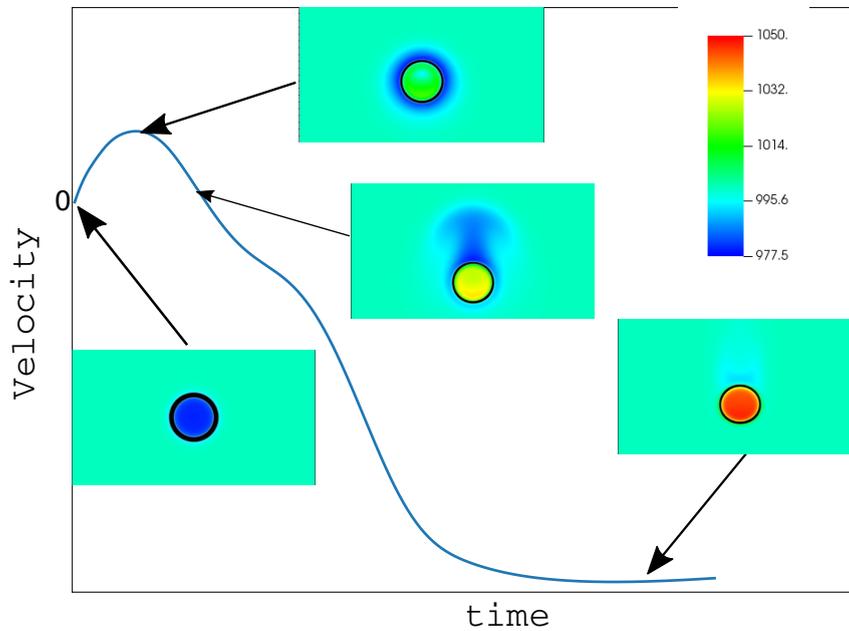


FIGURE 5.6 : Évolution typique de la vitesse de la goutte en fonction du temps avec le champ de masse volumique correspondant à l'état initial de la goutte, à sa vitesse maximale, à sa hauteur maximale et à sa vitesse terminale pour $M = 5.10^{-9}$.

En faisant varier la mobilité M , nous montrons en Figure 5.7 l'évolution de la valeur absolue de la vitesse verticale de la goutte pour différentes valeurs de M . Comme pour la trajectoire, la mobilité influe sur la vitesse en particulier son amplitude dans la phase d'accélération et la durée associée à cette phase. Pour $M = 10^{-8}$, cette vitesse maximale est d'environ $\sim 5 \times 10^{-3}$ m/s tandis que pour une mobilité plus faible $M = 5 \times 10^{-10}$, elle est autour de 25×10^{-3} m/s. Par ailleurs, pour des valeurs de $M \in [5 \times 10^{-9}, 5 \times 10^{-10}]$, des comportements non monotones de la vitesse sont observés notamment pour $M = 2.5 \times 10^{-9}$ où cette non monotonie est très prononcée.

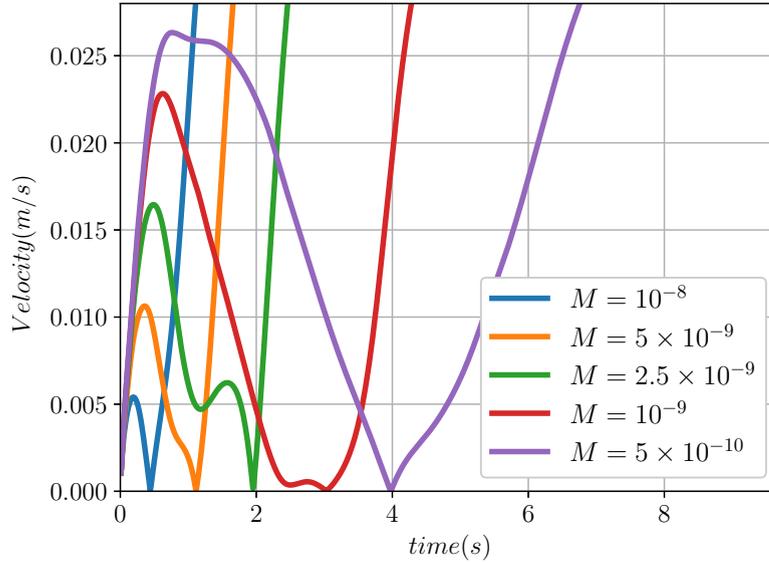


FIGURE 5.7 : Valeur absolue de la vitesse de la goutte en fonction du temps pour différentes valeurs de M .

5.5.2.2 Modèle réduit

Afin de mieux comprendre les phénomènes observés dans la dynamique de la goutte, nous effectuons notre analyse par rapport à $t \times M$ comme montré en Figure 5.8a. En effet, en considérant une goutte immobile ($\mathbf{u} = \mathbf{0}$) et une mobilité sous forme diagonale que l'Eq. 5.17, l'évolution des compositions ϕ_i est régie par les équations de Cahn–Hilliard purement diffusives

$$\frac{1}{M} \frac{\partial \phi_i}{\partial t} = \nabla \cdot (\nabla \tilde{\mu}_i) \quad (5.20)$$

où $\frac{1}{M}$ est proportionnel au temps caractéristique de diffusion de la composition de la goutte. En d'autres termes, pour différentes valeurs de mobilité M , le même comportement est attendu après une remise à l'échelle du temps par $\frac{1}{M}$ dans le cas où seule la diffusion est présente dans le système.

Pour cela, à partir de la dynamique d'une sphère 1D dans un écoulement fluide, nous proposons un modèle "réduit"¹ tel que le mouvement de la goutte est régi par

$$m \frac{du}{dt} = f(Mt) - \gamma u \quad (5.21)$$

1. Le modèle réduit est un modèle très simplifié permettant de reproduire la phénoménologie générale d'un solide ayant un mouvement ascendant suivi d'une phase descendante.

où m est une masse effective, $f(Mt) = a \left(1 - \frac{Mt}{\xi_0}\right)$ représente une fonction décrivant les forces motrices et γ est un coefficient de frottement. Ce modèle simple peut être résolu analytiquement et a pour solution particulière

$$u_p = \frac{a}{\gamma} \left(1 + \frac{mM}{\gamma\xi_0} - \frac{Mt}{\xi_0}\right) \quad (5.22)$$

Avec la condition initiale $u(t=0) = 0$, on obtient la solution analytique de l'Eq. 5.21

$$u(t) = \frac{a}{\gamma} \left[\left(1 + \frac{mM}{\gamma\xi_0}\right) (1 - e^{-\gamma t/m}) - \frac{Mt}{\xi_0} \right] \quad (5.23)$$

En prenant $a = 0.035\text{N}$, $\xi_0 = 2.5 \times 10^{-9}\text{J}^{-1}\text{m}^5$, $m = 0.04\text{kg}$ et $\gamma = 0.08\text{kg/s}$, nous obtenons les courbes présentées en Figure 5.8b pour différentes valeurs de M . Ces paramètres ont été choisis de manière à ce que l'instant où la vitesse s'annule pour la mobilité la plus élevée $M = 10^{-8}$ soit approximativement le même que dans les calculs numériques et que la vitesse maximale pour la mobilité la plus faible $M = 5 \times 10^{-10}$ soit également en accord avec les calculs numériques.

Intéressons-nous d'abord au modèle réduit présenté en Figure 5.8b. Dans ce type de modèle, il y a deux temps caractéristiques : un temps inertiel fixe $t_{inert} = \frac{m}{\gamma} = 0.5\text{s}$ et un temps de diffusion dépendant de la mobilité M donné par $t_{diff} = \frac{\xi_0}{M}$. Pour $M = 5 \times 10^{-9}$, les temps inertiel et de diffusion sont égaux. Pour des mobilités plus faibles $M = \{0.5, 1, 2.5\} \times 10^{-9}$, le temps de diffusion est plus long que le temps inertiel. En revanche, il est deux fois moins important que le temps inertiel pour la mobilité plus élevée $M = 10^{-8}$.

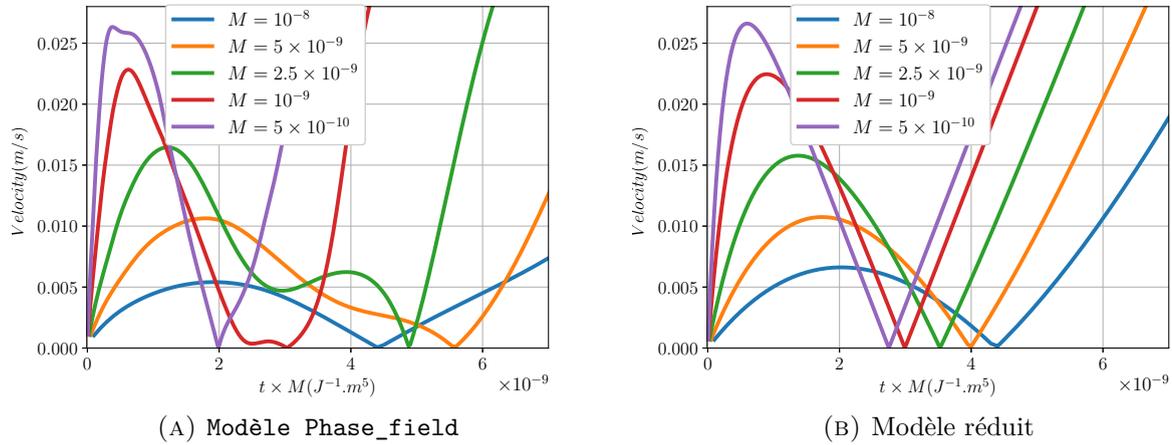


FIGURE 5.8 : Valeur absolue de la vitesse en fonction de $t \times M$ pour différentes valeurs de mobilité - (A) calculs effectués avec le modèle `Phase_field` et (B) avec le modèle réduit.

En comparant les courbes numériques de notre simulation avec celles du modèle réduit, on constate qu'indépendamment de M , la vitesse maximale atteinte dans la phase d'accélération initiale ainsi que le temps associé sont en bon accord avec notre modèle réduit. Cependant, une fois la phase d'accélération passée, le comportement général est sensiblement différent en particulier pour les mobilités plus faibles.

D'une part, les temps auxquels la vitesse s'annule dans nos simulations sont plus petits que ceux du modèle réduit pour $M = 10^{-9}$ et $M = 5 \times 10^{-10}$ tandis qu'ils sont plus grands que ceux du modèle réduit pour $M = 5 \times 10^{-9}$ et $M = 2.5 \times 10^{-9}$. En effet, la goutte se déplace dans de l'eau quasi pure car c'est l'advection qui domine pour des faibles valeurs de M . La couche de diffusion est fine et le transport diffusif est plus rapide.

D'autre part, une présence de non monotonie de vitesse ou d'un léger plateau de vitesse est observée dans la phase ascendante pour les valeurs de $M = 5 \times 10^{-9}$ et $M = 2.5 \times 10^{-9}$, ce qui retarde l'instant où la vitesse s'annule. Pour illustrer ce comportement, nous traçons les vecteurs vitesse dans le champ de masse volumique en Figure 5.9 et montrons le champ de vitesse verticale en Figure 5.10 à différents instants pour $M = 2.5 \times 10^{-9}$. La non monotonie de vitesse est la plus prononcée à cette valeur de M . À $t = 1.2$ s, la répartition de la masse volumique autour de la goutte devient inhomogène en raison de la couche de diffusion qui se déplace vers le haut plus rapidement que la goutte. Par conséquent, la distance entre les deux augmente et ainsi crée une force d'aspiration qui tire la goutte vers le haut réduisant la traînée comme la technique de "drafting" dans un peloton [172]. Ce même effet a été observé dans une étude récente sur les gains procurés par l'effet

d'aspiration dont bénéficie un coureur de marathon précédé d'un "lièvre" [173]. Cela entraîne une légère accélération de la goutte à ces instants avant de retomber avec une vitesse négative jusqu'à sa vitesse terminale lorsque sa masse volumique est suffisamment plus grande que celle de la phase continue environnante.

Cette étude comparative des résultats de `Phase_field` avec ceux du modèle réduit nous montre que les effets mis en jeu dans la goutte sont complexes et dépendent de la valeur de la mobilité M . Les phénomènes de diffusion sont fortement couplés avec l'advection et les effets inertiels ne sont pas négligeables. Pour bien modéliser tous ces effets physiques dans le mouvement de la goutte ainsi que le corium en cuve, nous ne pouvons pas utiliser le modèle réduit. Le couplage des équations de Cahn–Hilliard et de Navier–Stokes est nécessaire.

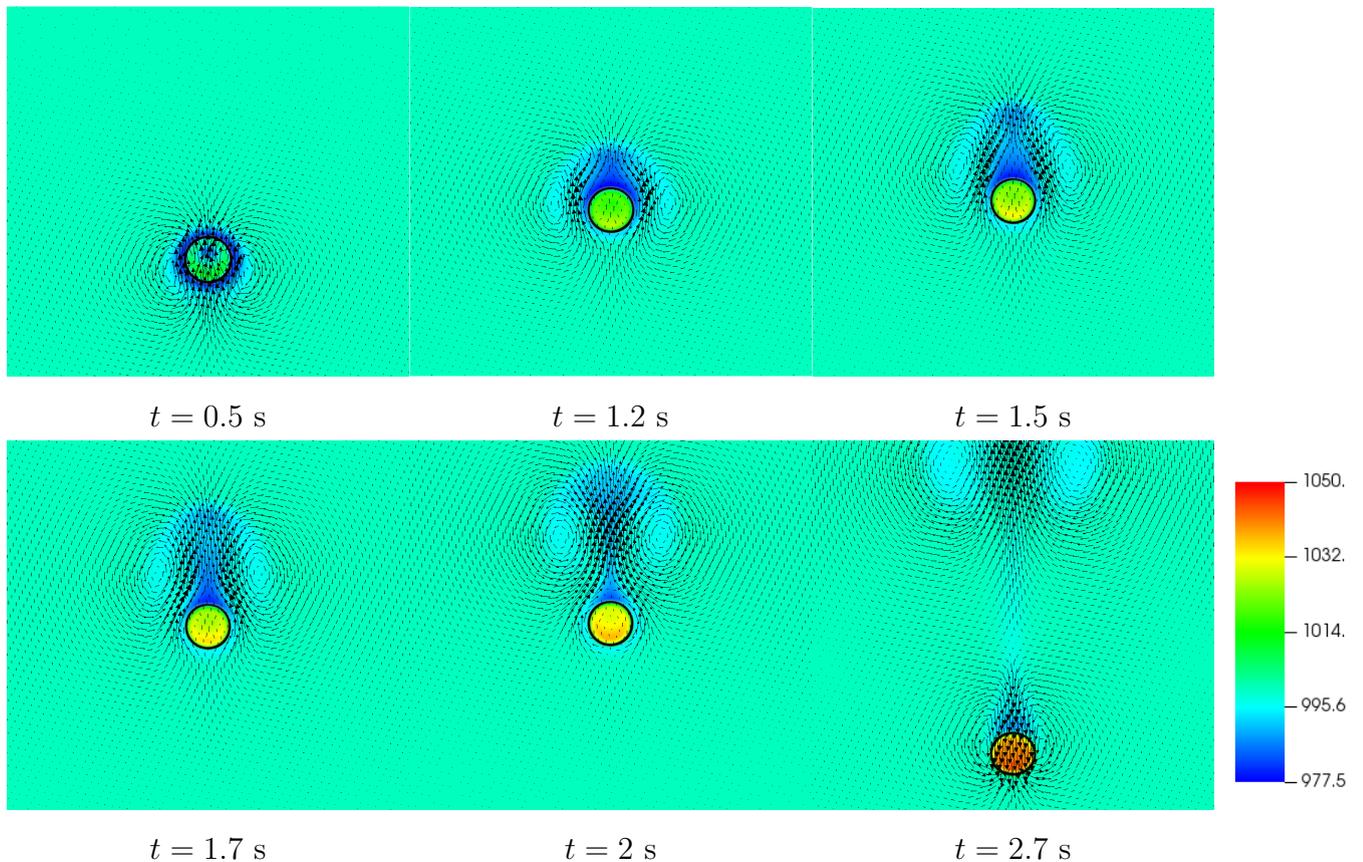


FIGURE 5.9 : Vecteurs vitesse dans le champ de masse volumique à différents instants pour $M = 2.5 \times 10^{-9} \text{J}^{-1} \text{m}^5 \text{s}^{-1}$.

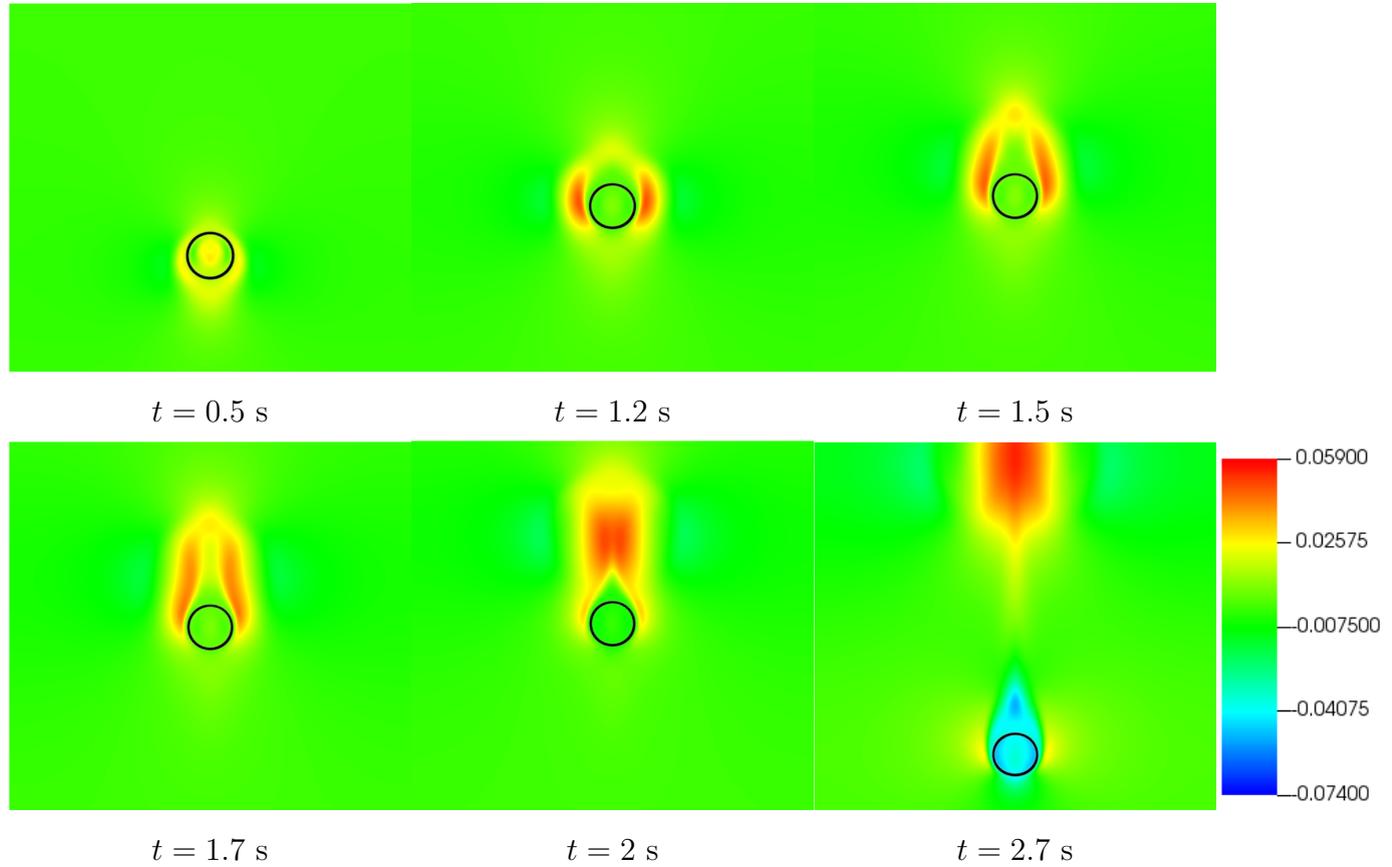


FIGURE 5.10 : Champ de vitesse verticale à différents instants pour $M = 2.5 \times 10^{-9} \text{ J}^{-1} \text{ m}^5 \text{ s}^{-1}$.

5.5.3 Distribution spatiale des paramètres d'ordre

Comme dit précédemment, à $t \times M$ fixé, le même comportement devrait être obtenu pour toutes les valeurs de M si et seulement si seule la diffusion était présente. Dans notre cas, la diffusion est fortement couplée aux effets advectifs qui modifient le champ de diffusion par rapport au cas sans écoulement. Cela est mis en évidence sur la Figure 5.11 où le champ de concentration de l'élément A est montré pour $t \times M = 10^{-9} \text{ J}^{-1} \text{ m}^5$ à différentes mobilités. Indépendamment de M ($M \in [5 \times 10^{-10}, 10^{-8}]$), la goutte est dans sa phase ascendante à cette valeur de Mt . Cependant, la répartition de l'élément miscible dans la goutte et sa diffusion dans l'eau sont différentes suivant la valeur de M . En effet, pour des valeurs de M plus grand (*i.e.* $M = \{5 \times 10^{-9}, 10^{-8}\}$), c'est la diffusion qui domine et la goutte a quasiment le même comportement pour ces deux valeurs. En revanche, son comportement est sensiblement différent par rapport aux plus faibles mobilités $M \leq 2.5 \times 10^{-9}$ où la diffusion est plus lente. Le champ de diffusion est alors modifiée par l'écoulement.

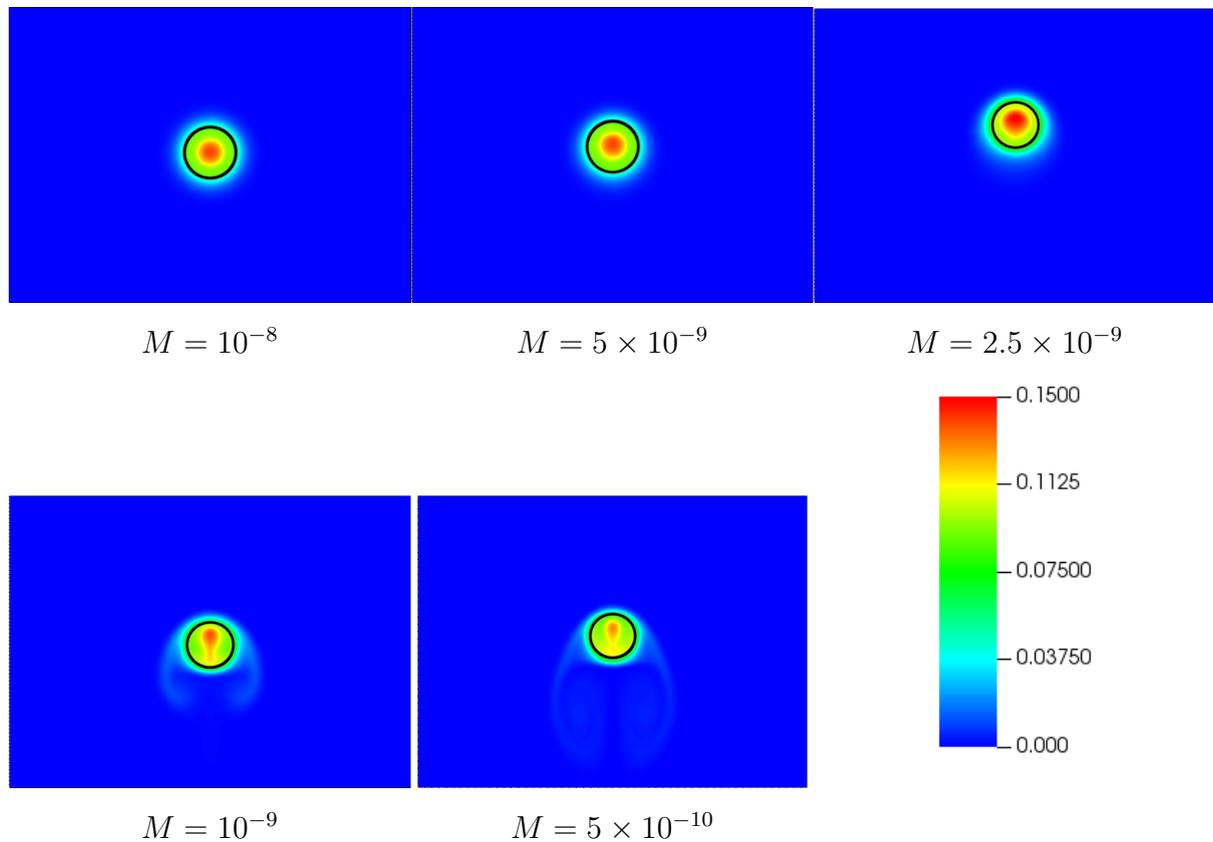


FIGURE 5.11 : Champ de concentration de l'élément A pour $t \times M = 10^{-9} \text{ J}^{-1}\text{m}^5$ à différentes mobilités.

Nous discutons à présent de l'évolution de la répartition des éléments dans le système pour $M = 2.5 \times 10^{-9}$. À l'état initial, tout l'élément miscible est confiné dans la goutte, puis se diffuse progressivement dans l'eau de manière non uniforme. La couche diffusive est plus fine à la base de la goutte qu'à son sommet. Cela conduit à un transport diffusif plus efficace de l'élément A vers le haut et une diminution rapide de la quantité d'élément A dans la partie inférieure de la goutte. Cela est mis en évidence à $t = 0.5 \text{ s}$ sur la Figure 5.12 lorsque la goutte atteint sa vitesse maximale dans sa phase d'accélération. Elle continue de monter tandis que la couche de diffusion se détache partiellement de la goutte. Par conséquent, un panache de fluide léger (eau+élément A) se forme et se développe au-dessus de la goutte. Lorsque celle-ci atteint son altitude maximale, elle commence à descendre en laissant derrière elle le panache de fluide léger jusqu'à disparaître de la goutte et se mélanger à la phase continue.

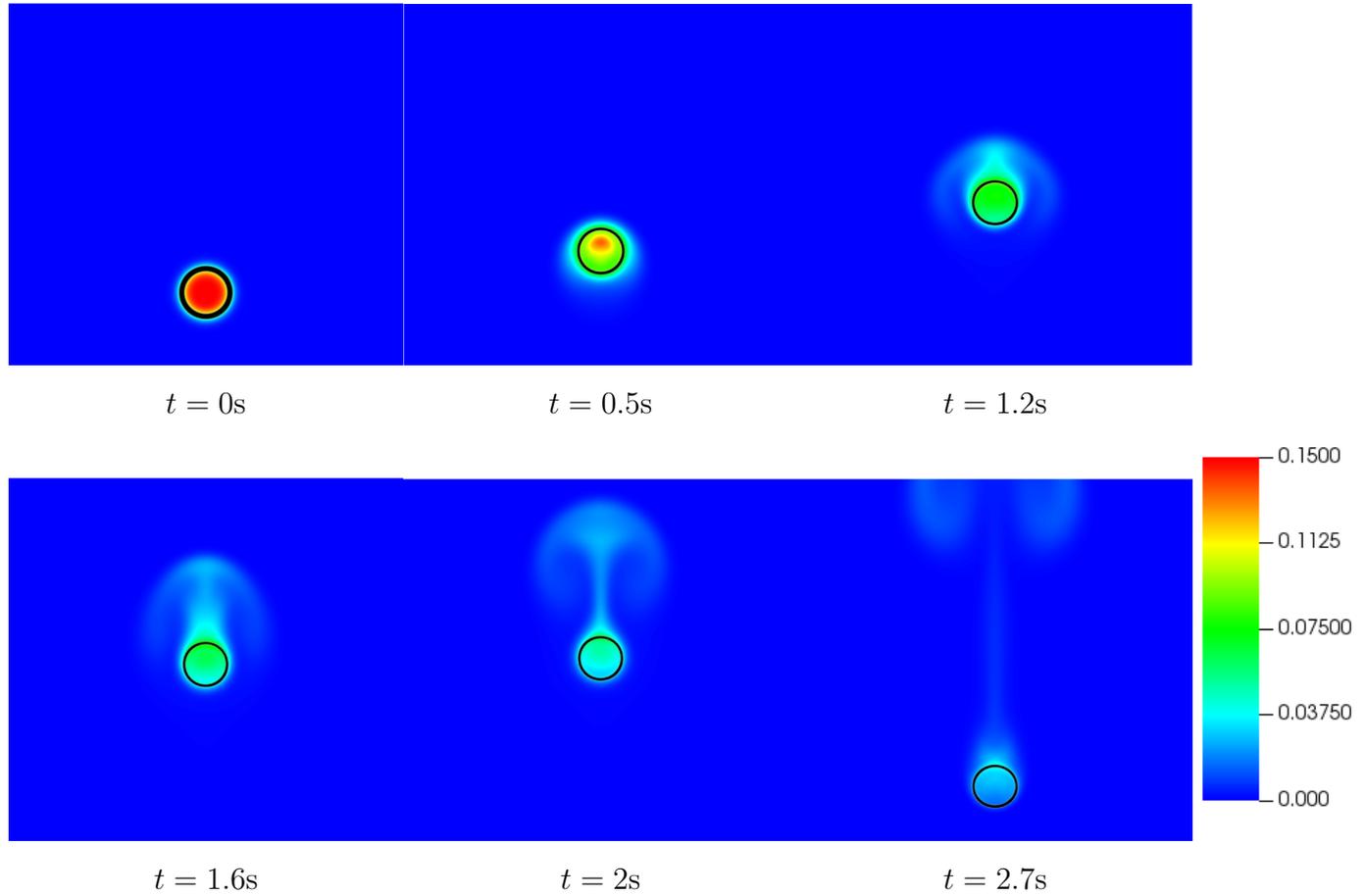


FIGURE 5.12 : Champ de concentration de l'élément A à différents instants pour $M = 2.5 \times 10^{-9} \text{J}^{-1} \text{m}^5 \text{s}^{-1}$.

5.5.4 Effet de Gibbs–Thomson

Notons que les paramètres du modèle de Cahn–Hilliard ont été définis en considérant les compositions d'équilibre et la tension de surface pour une interface plane. Pour une interface courbée, l'énergie de surface est modifiée et les valeurs d'équilibre atteintes après calculs sont légèrement différentes de celles pour une interface plane. Cet écart de composition est proportionnel à la courbure moyenne de l'interface résultant de l'effet de Gibbs–Thomson [113, 174, 175]. L'excès de tension de surface conduit à une surpression dans la goutte entraînant une augmentation des compositions d'équilibre dans les deux phases. Autrement dit, les compositions d'équilibre pour une interface courbée $\forall i \in \{A, B\}$ et $\forall k \in \{dis, cont\}$ deviennent $\phi_i^{eq,k,courbée} > \phi_i^{eq,k,plane}$. Ainsi, lors de sa phase descendante, $\phi_B^{eq,dis,courbée}$ peut dépasser la valeur 1 et la composition de l'élément B hors de la goutte devient non nulle. Une redéfinition des compositions initiales et à l'équilibre en considérant

une interface courbée permet de garder ces compositions en dessous de 1 durant toute la simulation. Dans le présent cas, le couplage entre le transfert de masse et le mouvement de la goutte rend complexe l'évaluation de l'écart dû à l'effet de Gibbs–Thomson. Pour illustrer notre propos, nous montrons en Figure 5.13 l'évolution de ϕ_B le long de la ligne horizontale $y = 0$ à différents instants lors de la descente de la goutte. On observe qu'une petite quantité d'élément immiscible est présente en dehors de la goutte. Sa concentration décroît avec la distance séparant la goutte de cette ligne horizontale. L'influence de l'effet de Gibbs–Thomson est alors plus significative aux alentours de la goutte que loin de l'interface.

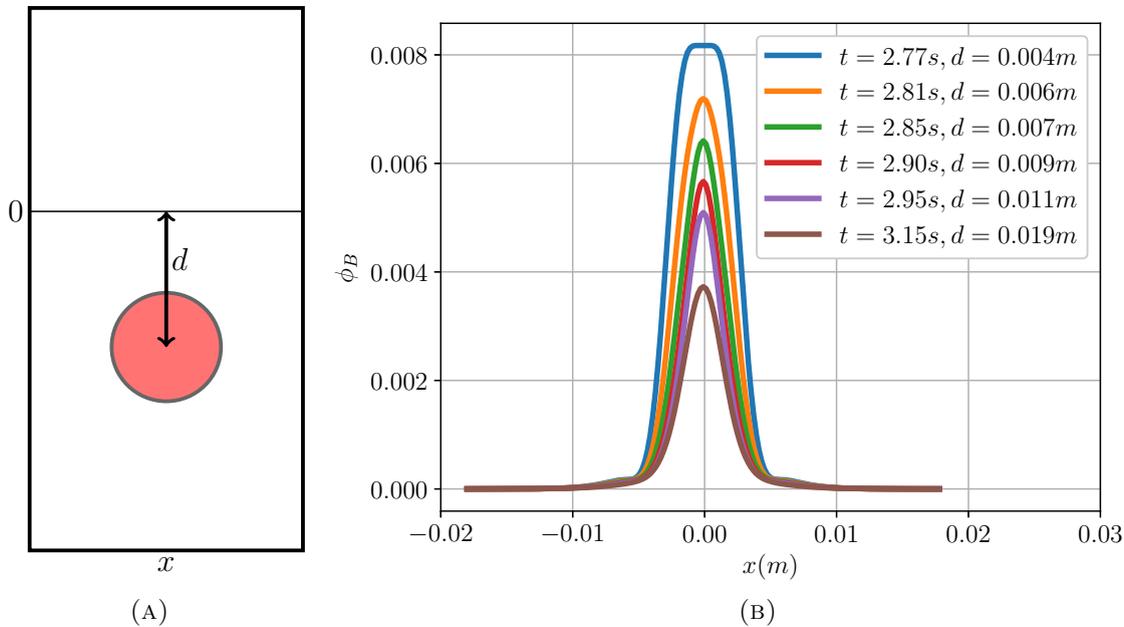


FIGURE 5.13 : (A) Schéma illustratif du domaine et de la distance d - (B) Évolution de ϕ_B le long de la ligne horizontale $y = 0$ à différents instants pour $M = 2.5 \times 10^{-9} \text{J}^{-1} \text{m}^5 \text{s}^{-1}$.

5.6 Vers la validation du modèle avec l'expérimental

Dans cette deuxième partie du chapitre, nous nous intéressons à l'expérience n°4 de Rao *et al.* [8] où une goutte composée d'acétonitrile (miscible dans l'eau) et de chlorobenzène (immiscible) se déplace dans un domaine rempli d'eau². Le choix du paysage thermodynamique est effectué selon des critères dépendant des conditions initiales de l'expérience,

2. Les mêmes notations que dans la première partie pour désigner la goutte (phase dispersée), les éléments miscible (élément A) et immiscible (élément B) sont utilisées.

contrairement à la première partie où le paysage thermodynamique “cercle” est choisi avant de définir les conditions initiales. Pour cela, après avoir présenté les conditions de l'expérience, nous montrons dans cette deuxième partie les difficultés associées au choix de ce paysage thermodynamique à partir des exemples. Puis, nous discutons de ces critères de choix avant de donner le paysage choisi pour ce problème. Enfin, nous terminons par les résultats, l'analyse associée et la conclusion du chapitre.

L'étude présentée dans cette section est le fruit du travail de stage de Clément Plumecocq [10] que j'ai encadré et constitue ma première expérience d'encadrement dans la recherche.

5.6.1 Conditions de calcul

Comme dans la première partie, la loi de densité implémentée dans le modèle $n > 2$ -aire de `Phase_field` sous l'hypothèse de volume molaire constant est

$$\rho(\phi_A, \phi_B) = \rho^* \left(1 + \sum_{i \in \{A, B\}} \beta_i^* \phi_i \right) = \rho^* (1 + \beta_A^* \phi_A + \beta_B^* \phi_B) \quad (5.24)$$

où β_A^* , β_B^* et ρ^* sont déterminés à partir de la masse volumique de chacun des éléments dans le système présenté dans le Tableau 5.2. Nous avons considéré autant que faire se peut les mêmes propriétés physiques que celles de l'expérience n°4.

TABLEAU 5.2 : Masse volumique des éléments dans le système et de la goutte initiale de l'expérience de Rao *et al.* [8].

Masse volumique	ρ_{eau}	ρ_A	ρ_B	ρ_{dis}^{ini}
(kg.m ⁻³)	999.5	791	1104	975

Les masses volumiques des corps purs du système sont données par

$$\begin{cases} \rho(\phi_A = 0, \phi_B = 0) = \rho^* = \rho_{eau} \\ \rho(\phi_A = 1, \phi_B = 0) = \rho^* (1 + \beta_A^*) = \rho_A \\ \rho(\phi_A = 0, \phi_B = 1) = \rho^* (1 + \beta_B^*) = \rho_B \end{cases} \quad (5.25)$$

Avec les valeurs du Tableau 5.2, nous obtenons $\beta_A^* = -0.208$ et $\beta_B^* = 0.104$. À l'état initial, la goutte est composée d'éléments A et B telle que sa masse volumique est donnée par

$$\rho(\phi_A = \phi_A^{ini,dis}, \phi_B = 1 - \phi_A^{ini,dis}) = \rho_{dis}^{ini} \quad (5.26)$$

À partir de l'Eq. 5.26, nous obtenons les compositions initiales des éléments présents dans la goutte à l'état initial $\phi_A^{ini,dis} = 0.41$ et $\phi_B^{ini,dis} = 0.59$. Notons que ces compositions initiales sont différentes de celles dans le travail de Rao *et al.* [8] où la composition initiale de l'élément miscible vaut 0.32. Avec cette valeur de Rao *et al.* [8], en utilisant la loi de densité linéaire en Eq. 5.24, la masse volumique initiale de la goutte serait 1003kg.m^{-3} , ce qui est supérieure à celle de la phase continue. La goutte suivrait alors une trajectoire et aurait une dynamique différente de celle que nous voudrions reproduire dans cette étude. La loi de densité sous l'approximation de Boussinesq en Eq. 5.24 ne permet pas de garantir à la fois la même composition initiale de l'élément miscible et la même masse volumique initiale de la goutte que dans Rao *et al.* [8]. Dans cette étude, les mêmes masses volumiques que celles de Rao *et al.* [8] ont été considérées au détriment de ses compositions initiales pour pouvoir reproduire la même dynamique générale.

Par ailleurs, la composition initiale ϕ_i dans le domaine à l'état initial est répartie selon l'Eq. 5.8. Tout comme dans la première partie, les compositions à l'équilibre $\phi_A^{eq,cont}$ dépend de la taille du domaine (voir Eq. 5.7). Un récapitulatif des compositions et des masses volumiques à l'état initial et d'équilibre est donné au Tableau 5.3. La viscosité est supposée constante dans tout le domaine et est fixée à celle de l'eau $\eta = 10^{-3}\text{Pa.s}$ puisque les viscosités des éléments du système restent proches dans notre étude.

TABLEAU 5.3 : Récapitulatif des compositions des éléments miscible et immiscible ainsi que la masse volumique de chacune des phases à l'état initial et d'équilibre pour le cas n°4.

phase	état initial	état d'équilibre
phase dispersée (goutte)	$\phi_A^{ini,dis} = 0.41$ $\phi_B^{ini,dis} = 0.59$ $\rho_{dis}^{ini} = 975\text{kg.m}^{-3}$	$\phi_A^{eq,dis} = 0$ $\phi_B^{eq,dis} = 1$ $\rho_{dis}^{eq} = \rho_B = 1104\text{kg.m}^{-3}$
phase continue	$\phi_A^{ini,cont} = 0$ $\phi_B^{ini,cont} = 0$ $\rho_{cont}^{ini} = 999.5\text{kg.m}^{-3}$	$\phi_A^{eq,cont} = \frac{\phi_A^{ini,dis} \times V_{dis}^{ini}}{V_{tot} + (\phi_A^{ini,dis} - 1)V_{dis}^{ini}}$ $\phi_B^{eq,cont} = 0$ $\rho_{cont}^{eq} = \rho_{eau} \left(1 + \beta_A^* \phi_A^{eq,cont}\right)$

Par delà les hypothèses susmentionnées, la principale raison nous empêchant de réaliser de la vraie validation du modèle `Phase_field` $n > 2$ -aire est la différence de conditions de calcul. En effet, nos calculs sont effectués dans une configuration 2D cartésienne contrairement aux études expérimentales en 3D et numériques de Rao *et al.* [8] en 2D

axisymétrique. À ce stade, les calculs ne peuvent se faire qu'en 2D cartésien et les conditions aux limites de type symétrie ne sont pas encore au point dans le modèle `Phase_field`.

5.6.2 Paramètres de simulation

Nous réalisons nos simulations dans un domaine rectangulaire 2D cartésien dans lequel une goutte multicomposant de rayon initial $R = 2.45 \times 10^{-3}\text{m}$ est libérée sans vitesse initiale. La goutte est placée au centre du domaine de telle sorte que la largeur du domaine fait au moins³ $L_x = 10R$. Des conditions aux limites sans glissement (les deux composantes des vitesses sont nulles) sont imposées aux bords du domaine.

Avec les propriétés physiques de l'expérience n°4 de Rao *et al.* [8], nous avons le nombre de Bond $Bo \sim 10^{-1}$ et celui de Morton $Mo \sim 10^{-10}$, ce qui correspond à une goutte sphérique selon le diagramme de Clift [9] en Figure 5.4. Le maillage est considéré uniforme dans le domaine avec $\Delta x = \Delta y = 2 \times 10^{-4}\text{m}$. La tension de surface est fixée à $\sigma = 36 \times 10^{-3}\text{N.m}^{-1}$ et l'interface numérique ε contient 4 mailles.

Comme dans la première partie de ce chapitre, nous considérons des matrices diagonales pour les matrices de mobilité et de coefficients de gradient

$$\overline{\overline{\mathcal{M}}} = \begin{bmatrix} M & 0 \\ 0 & M \end{bmatrix} \quad (5.27)$$

et

$$\overline{\overline{\kappa}} = \begin{bmatrix} \kappa^{bin} & 0 \\ 0 & \kappa^{bin} \end{bmatrix} \quad (5.28)$$

avec M un paramètre cinétique de contrôle à ajuster vis-à-vis de l'expérience n°4 et κ^{bin} le coefficient de gradient obtenu à partir du cas binaire. Le coefficient de gradient κ^{bin} et le paramètre d'*upscaling* λ sont alors obtenus à partir des Eqs. 5.12 et 5.13 dépendant des paramètres du paysage thermodynamique.

5.6.3 Paysage thermodynamique

Tout d'abord, la base thermodynamique pour le système ternaire {acétonitrile, chlorobenzène, eau} est inexistante. L'ajustement avec un paysage thermodynamique de référence issu d'une base thermodynamique comme dans le cas du corium en cuve réalisée dans

3. L'effet de la largeur du domaine est étudié plus en détail en Section 5.6.4.

le Chapitre 3 ne peut alors être réalisée. De ce fait, un choix convenable du paysage thermodynamique qui permet de reproduire le comportement général et la physique de la goutte multicomposant dans un fluide est important. Il doit respecter certains critères afin d'éviter des comportements non souhaités que nous illustrons avec des exemples dans la suite.

Dans un premier temps, nous reprenons le paysage thermodynamique "cercle" discuté précédemment tel que $\forall k \in \{dis, cont\}$ et $j \in \{x, y\}$, les paramètres $a_j^k = 1$. En l'occurrence, l'angle de rotation ψ^k n'a plus d'effet. À partir d'un calcul sans couplage avec l'hydrodynamique tout en considérant les compositions initiales $\phi_A^{ini,dis} = 0.41$ et $\phi_B^{ini,dis} = 0.59$ dans la goutte, il est montré en Figure 5.14a que dès l'état initial, la goutte se retrouve dans la lacune de miscibilité, plus précisément dans la région spinodale. Cela conduit à une séparation de phase de manière spontanée comme le montre la Figure 5.14b avec une nouvelle goutte contenant de l'eau qui se forme à l'intérieur de la goutte initiale. Ce paysage thermodynamique "cercle" est alors inadapté à notre cas d'étude d'où l'intérêt de passer à un paysage plus complexe qui tient compte de la rotation ψ^k .

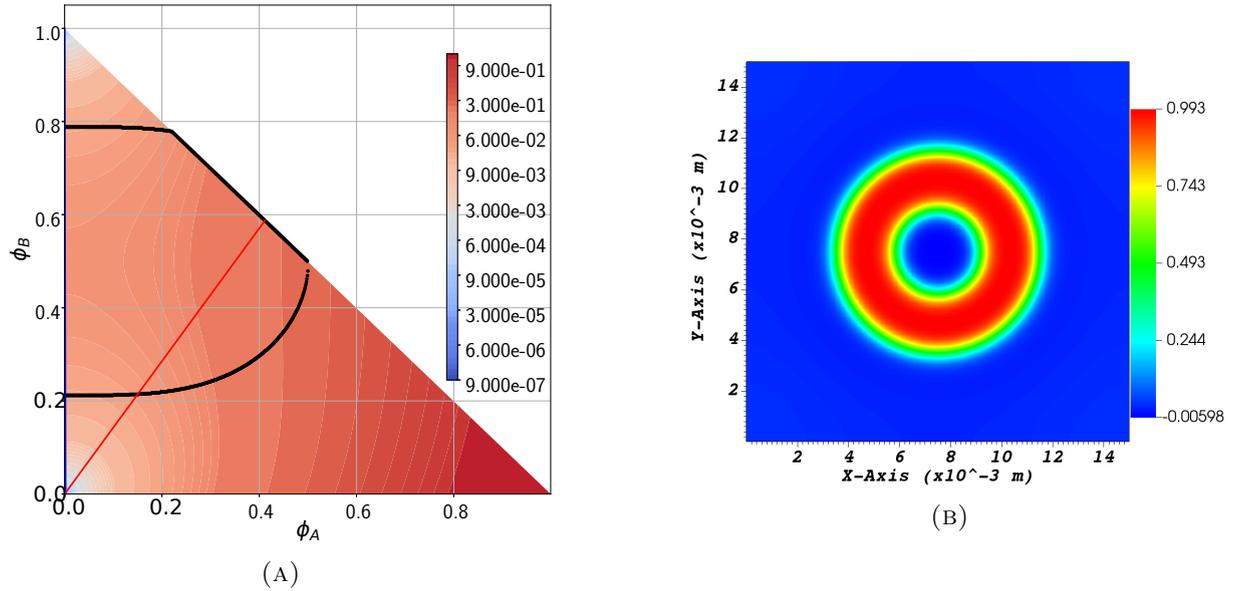


FIGURE 5.14 : (A) Paysage thermodynamique "cercle" dans la surface d'énergie Ω^* avec $a_j^k = 1$ ($k \in \{dis, cont\}$ et $j \in \{x, y\}$). La droite en bleu (resp. rouge) relie les deux compositions d'équilibre (resp. compositions initiales) dans chacune des phases - (B) Composition de l'élément immiscible dès les premiers instants.

Dans un second temps, nous utilisons un paysage thermodynamique dont les puits sont soumis à une rotation de telle sorte que les compositions initiales sont en dehors

de la région spinodale. Il s'agit de celui montré en Figure 5.15a tel que pour la phase k , les paramètres $a_x^k = 0.5$, $a_y^k = 1$ et $\psi^k = 10^\circ$. Avec un tel paysage thermodynamique, contrairement aux simulations qu'on souhaiterait réaliser, les calculs sans couplage avec l'hydrodynamique nous montrent que de l'eau rentre dans la goutte dès les premiers instants, ensuite les compositions de la goutte se retrouvent dans la région spinodale entraînant une séparation de la goutte en deux avant de converger vers les points d'équilibre imposés (voir Figure 5.15b). En effet, le chemin que suit la composition initiale vers la composition d'équilibre dépend de l'orientation du gradient du grand potentiel modifié Ω^* dans le plan (ϕ_A, ϕ_B) . Dans notre cas, le chemin privilégié est celui indiqué par la flèche noire sur la Figure 5.15a. Idéalement, ce chemin devrait suivre la ligne limite diagonale $\phi_B = 1 - \phi_A$.

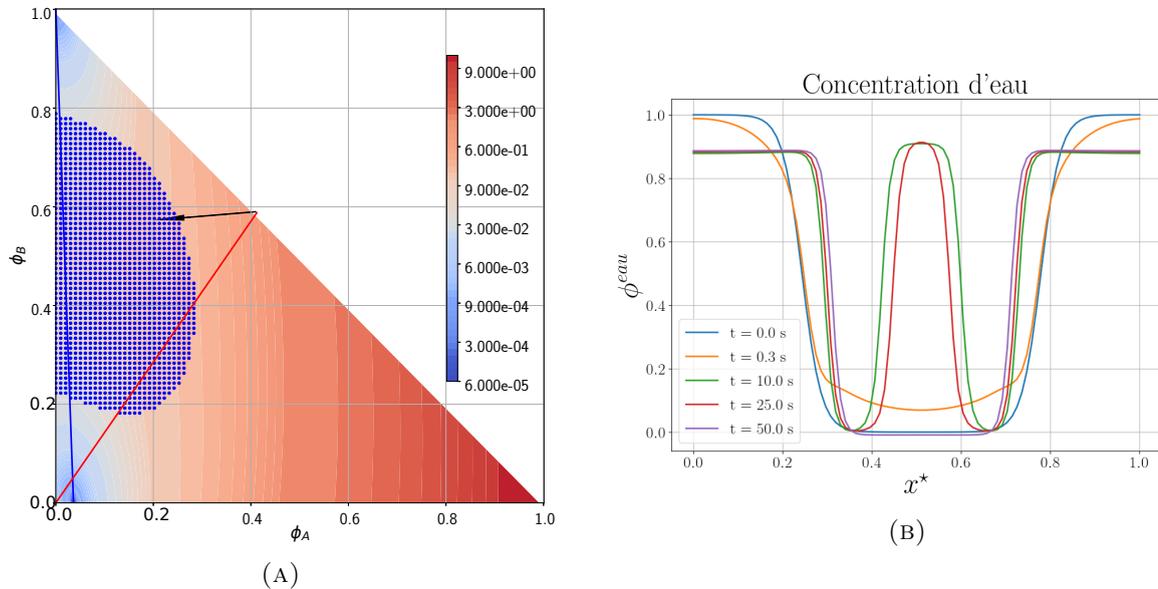


FIGURE 5.15 : (A) Paysage thermodynamique dans la surface d'énergie Ω^* avec $a_x^k = 0.5$, $a_y^k = 1$ et $\psi^k = 10^\circ$ ($k \in \{dis, cont\}$). La droite en rouge relie les deux compositions initiales et la flèche noire indique le chemin que prend le système pour aller vers les points d'équilibre. La zone en pointillé représente la région spinodale - (B) Profils de composition de l'eau à différents instants le long de l'axe horizontal $x^* = \frac{x}{L_x}$.

Au vu des exemples et observations précédentes, le paysage thermodynamique convenable à notre problème doit répondre à certains critères tels que :

1. les compositions initiales doivent être hors de la lacune de miscibilité,
2. les compositions initiales doivent être de part et d'autre de la région spinodale pour éviter une séparation de phase dans la goutte lors de sa trajectoire vers les points d'équilibre et

3. l'orientation du gradient de la surface d'énergie du grand potentiel modifié Ω^* doit limiter l'entrée d'eau en suivant la diagonale $\phi_B = 1 - \phi_A$.

Bien qu'il ne soit pas immédiat de trouver un paysage thermodynamique qui remplit ces critères, notons tout de même qu'il n'existe pas un seul et unique paysage possible. Une multitude de paysages thermodynamiques remplissent ces critères parmi lesquels celui en Figure 5.16. C'est le paysage thermodynamique choisi pour cette étude dont les paramètres des paraboloïdes sont donnés au Tableau 5.4. Avec ce paysage thermodynamique, aucune séparation de phases n'apparaît dans la goutte et celle-ci est dépourvue d'eau dans son chemin vers les compositions d'équilibre.

TABLEAU 5.4 : Valeurs des paramètres des paraboloïdes pour le paysage thermodynamique choisi.

a_x^{dis}	a_y^{dis}	a_x^{cont}	a_y^{cont}	ψ^{dis}	ψ^{cont}
0.25	1	0.6	1	45°	0°

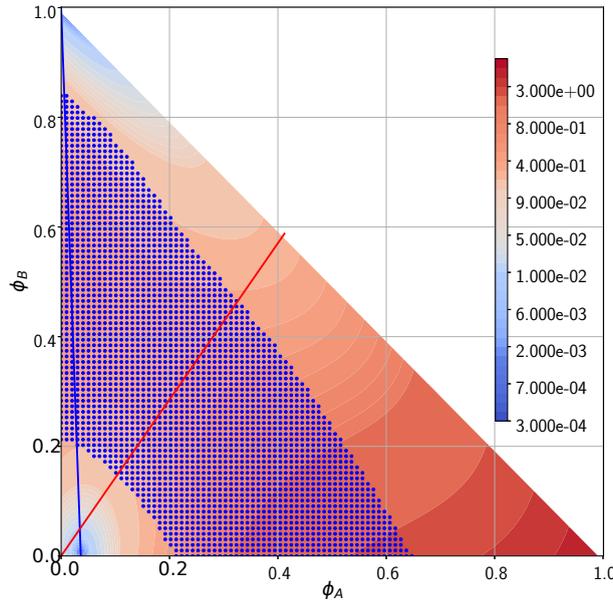


FIGURE 5.16 : Paysage thermodynamique dans la surface d'énergie Ω^* avec $a_x^{dis} = 0.25$, $a_y^{dis} = 1$, $a_x^{cont} = 0.6$, $a_y^{cont} = 1$, $\psi^{dis} = 45^\circ$ et $\psi^{cont} = 0^\circ$ ($k \in \{dis, cont\}$). La droite en rouge relie les deux compositions initiales et la flèche noire indique le chemin que prend le système pour aller vers les points d'équilibre. La zone en pointillé représente la région spinodale.

5.6.4 Résultats de simulation

Comme vu dans la première partie, le paramètre cinétique M joue un rôle important sur l'amplitude et la forme de la trajectoire de la goutte. Il s'agit d'un paramètre d'ajustement pour se rapprocher des résultats expérimentaux de Rao *et al.* [8]. À cet égard, dans un domaine de largeur $L_x = 10R$, nous avons réalisé des simulations avec différentes valeurs de M et en déduisons la valeur de M qui est cohérente avec l'expérience. Il s'est avéré qu'avec $M = 4 \times 10^{-9}$, le temps auquel la goutte repasse à son point de départ coïncide avec celui de l'expérience (voir Figure 5.17a). En revanche, la hauteur maximale obtenue avec notre modèle `Phase_field` est deux fois moins importante que celle de l'expérience.

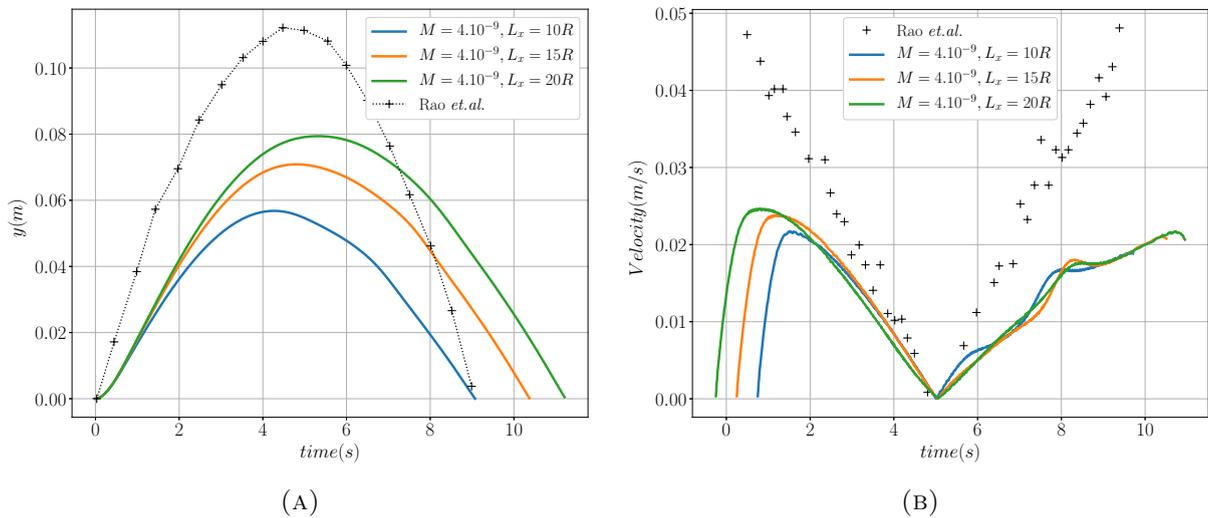


FIGURE 5.17 : Comparaison de la trajectoire (A) et de la vitesse (B) de la goutte pour $M = 4 \times 10^{-9}$ avec celles de l'expérience n°4 de Rao *et al.* [8].

Intéressons-nous maintenant à l'impact de la taille du domaine sur la trajectoire de la goutte. La Figure 5.17 montre l'effet de la largeur L_x du domaine sur sa trajectoire et sa vitesse⁴ en fixant la valeur de $M = 4 \times 10^{-9}$. L'amplitude du mouvement ainsi que la vitesse maximale de la goutte croît avec cette largeur L_x .

D'une part, certes, la composition à l'équilibre dépend de la taille du domaine mais l'écart sur les compositions à l'équilibre de l'élément miscible reste négligeable dans notre cas pour modifier significativement le comportement de la goutte. La raison principale est que pour des domaines moins larges avec une mobilité plus faible $M \sim 10^{-9}$, l'écoulement est confiné et les bords du domaine perturbent le mouvement de la goutte entraînant son

4. Pour la comparaison, la vitesse est représentée en superposant les courbes expérimentales et numériques à l'instant auquel la vitesse devient nulle.

ralentissement. À mobilité égale, le temps auquel la goutte revient à sa position initiale est alors plus long pour un domaine plus large car elle monte plus haut et les effets de bords sont moins importants.

D'autre part, les courbes de vitesse montrent qu'autour de l'instant où la vitesse devient nulle, les résultats numériques et expérimentaux sont assez similaires. Les mêmes comportements que dans la première partie de ce chapitre sont observés avec une phase d'accélération aux premiers instants. Celle-ci est absente de la courbe expérimentale de Rao *et al.* [8] car dans leurs travaux, la vitesse n'est mesurée qu'après cette phase d'accélération. Une fois la phase d'accélération passée, l'influence de la taille du domaine est bien mise en évidence sur la Figure 5.17b par la présence d'un léger plateau dans la phase descendante pour les domaines moins larges. Ce plateau n'est pas observé lorsque le domaine devient suffisamment large.

Il est important de souligner que la présence de plateau et non monotonie de vitesse dans la phase ascendante discutée dans la première partie de ce chapitre vient de la force d'aspiration. Le domaine est suffisamment large pour que les effets de bords n'apparaissent dans l'étude présentée dans la première partie. Cela prouve encore une fois la complexité du problème étudié vis-à-vis des phénomènes physiques présents, des paramètres de simulation et du paysage thermodynamique considéré.

Finalement, rappelons que ces calculs ont été effectués en géométrie 2D cartésienne de telle sorte que la comparaison aux résultats expérimentaux de Rao *et al.* [8] reste limitée. Néanmoins, cette étude nous a permis de reproduire qualitativement et semi-quantitativement l'expérience de Rao *et al.* [8]. L'influence d'autres paramètres tels que la vitesse initiale, les conditions aux bords ou le maillage a été étudiée dans ce stage e C. Plumecocq [10] mais l'effet de la taille du domaine reste le plus important par delà la mobilité comme paramètre de contrôle. Cette étude nous a permis de mieux comprendre le couplage entre les phénomènes de transfert de masse et d'hydrodynamique, ce qui représente un premier pas vers la validation de notre modèle.

5.7 Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons réalisé des simulations en 2D cartésien de la dynamique d'une goutte multicomposant dans une colonne d'eau. Composée d'un élément miscible et d'un élément immiscible, la goutte se déplace verticalement dans le domaine fluide tout en diffusant l'élément miscible dans l'eau, ce qui induit un changement de masse volumique

des deux phases. Ce chapitre étudie le couplage des phénomènes de transfert de masse et d'hydrodynamique à partir de la version $n > 2$ -aire de `Phase_field` en utilisant le paysage thermodynamique sous forme de produit de deux paraboloïdes. Sous l'approximation de Boussinesq, une loi de densité linéaire est utilisée de manière à ce que la goutte soit initialement plus légère que l'eau environnante, devienne plus lourde avec le temps et ne contienne que l'élément immiscible à l'équilibre thermodynamique. Les propriétés de l'interface, du fluide et la taille de la goutte ont été fixées de telle sorte que les nombres de Bond et de Morton associés correspondent au régime où la goutte reste circulaire durant toute la simulation.

La première partie de ce chapitre avait pour but d'investiguer et analyser les phénomènes couplés que simule le modèle $n > 2$ -aire de `Phase_field`. Le paysage thermodynamique le plus simple type "cercle" avec des matrices diagonales pour les coefficients de gradient et de mobilité a alors été utilisé. Plus particulièrement, nous avons réalisé une étude paramétrique avec différentes mobilités afin de montrer son rôle dans le modèle et son influence sur le mouvement de la goutte. Il a été montré que l'amplitude du mouvement et la vitesse de la goutte ainsi que la durée de son trajet dépendent de la mobilité. C'est un paramètre de contrôle qui donne une mesure des temps de transfert de masse diffusif et hydrodynamique. Les résultats du modèle `Phase_field` ont été comparés avec ceux d'un modèle réduit analytique pour montrer la complexité du problème et l'intérêt de considérer le modèle de `Phase_field` par rapport à ce modèle réduit pour le traitement de tels problèmes couplés. Enfin, nous avons discuté de l'effet de Gibbs–Thomson dû à l'interface courbée et de son impact notamment sur les compositions d'équilibre.

Dans la seconde partie de ce chapitre, nous nous sommes intéressés à l'expérience n°4 de Rao *et al.* [8] sur la dynamique d'une goutte composée d'acétonitrile et de chlorobenzène en vue d'aller vers la validation du modèle $n > 2$ -aire de `Phase_field`. Faute de base thermodynamique pour notre système d'intérêt, le choix du paysage thermodynamique n'est pas immédiat. Il doit satisfaire certains critères vis-à-vis des compositions initiales, de la région spinodale et de la trajectoire des compositions vers leurs valeurs d'équilibre. Le choix des paramètres permettant de respecter ces critères restent en partie arbitraire. Une fois le paysage thermodynamique choisi, nous avons fait varier la mobilité afin d'obtenir une valeur cohérente avec l'expérience. Les calculs sont effectués en 2D cartésien contrairement aux études en 2D axisymétrique de Rao *et al.* [8], ce qui empêche de réaliser une véritable validation. Toutefois, les résultats numériques obtenus sont en bon accord qualitatif et semi-quantitatif avec la dynamique dans l'étude de Rao *et al.* [8]. Ce travail constitue

un bon point de départ vers la validation quantitative de notre modèle et ultérieurement vers une application dans l'étude du transitoire de stratification du corium en cuve. Dans tous les cas, en l'état actuel, les simulations présentées dans ce chapitre démontrent la capacité du modèle `Phase_field` $n > 2$ -aire à traiter les phénomènes couplés de transfert de masse et d'hydrodynamique dans un système multicomposant. Le travail présenté dans ce chapitre est en cours de préparation pour publication dans une revue à comité de lecture.

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Dans le cadre de la stratégie de rétention du corium en cuve lors d'un d'accident grave nucléaire, le comportement du corium en transitoire de stratification fait intervenir le couplage entre les phénomènes thermo-chimiques au travers du transfert de masse interphases et des phénomènes hydrodynamiques. Cette thèse s'inscrit dans la démarche de sûreté des réacteurs nucléaires, en particulier la modélisation et simulation numérique de tels phénomènes couplés dans un système multicomposant en utilisant la méthode du champ de phase.

Dans la première partie, nous avons considéré uniquement le transfert de masse dans le système ternaire U-O-Zr en utilisant le paysage thermodynamique issu de l'outil de calcul d'équilibre `OpenCalphad` [129] sous l'hypothèse d'équilibre local. À partir d'un code maquette développé dans la plateforme logicielle `PROCOR` [59], nous avons résolu le problème stationnaire d'un système ternaire de Cahn–Hilliard afin d'apporter des réponses à certaines des questions restées en suspens dans la thèse de C. Cardon [57]. Il s'agit de la présence d'un écart entre les positions de l'interface des éléments du système et d'une non monotonie des profils de composition observée avec certaines formes de la matrice des coefficients de gradient $\bar{\kappa}$ pour les systèmes $n > 2$ -aire. Leurs présences peuvent être problématiques dans l'optique d'un couplage avec l'hydrodynamique car elles peuvent conduire à des profils de densité non monotones induisant des instabilités à l'interface et des comportements non physiques.

D'une part, nous avons montré que ces écarts sont associés aux effets d'adsorption des éléments à l'interface. Ceux-ci sont inévitables pour les modèles à interface diffuse mais peuvent être minimisés. D'autre part, la non monotonie des profils dépend fortement de la forme de $\bar{\kappa}$. Dans cette thèse, nous avons proposé une stratégie de recherche d'une forme

optimale de $\bar{\kappa}$ basée sur une paramétrisation de cette matrice afin de minimiser l'adsorption d'interface tout en gardant un profil monotone. Avec la procédure de minimisation proposée dans cette thèse, les résultats de calculs ont montré qu'il n'y a pas de forme optimale unique pour $\bar{\kappa}$. Celle-ci dépend du cas étudié et du paysage thermodynamique considéré. En outre, lorsqu'on considère un système fermé au sens des conditions aux limites, une dépendance linéaire des compositions loin de l'interface avec l'épaisseur d'interface était observée. Elle est fortement liée à l'effet d'adsorption et à l'énergie libre considérée dans le paysage thermodynamique. Pour notre application au corium en cuve, notre modèle est jugé robuste car les écarts obtenus restent très faibles avec la séparation d'échelle visée.

Dans la deuxième partie, nous nous sommes intéressés au couplage des équations de Cahn–Hilliard avec celles de Navier–Stokes (CHNS) pour prendre en compte les phénomènes couplés de transfert de masse et d'hydrodynamique en utilisant le modèle `Phase_field` du code `TrioCFD` [20]. Avant cette thèse, le modèle `Phase_field` ne pouvait résoudre qu'une seule équation de CH couplée avec NS. Cette thèse a permis d'étendre la capacité de ce modèle à résoudre plusieurs équations de CH.

D'abord, des calculs de comparaison des taux de croissance des instabilités de Rayleigh–Taylor en régime linéaire avec une étude numérique de R. Zanella [7] et la théorie ont été réalisés pour vérifier le bon fonctionnement du modèle `Phase_field` de `TrioCFD` utilisé dans cette thèse. Puis, nous avons effectué un calcul démonstratif (qualitatif) de la stratification du corium en pseudo-binaire comme preuve de principe à la manière du travail de R. Zanella [51] réalisé avec un code pseudo-spectral. Cependant, la résolution de plusieurs équations de CH est indispensable pour aller vers des simulations plus quantitatives. Cette thèse apporte une nouvelle contribution dans le modèle `Phase_field` de `TrioCFD` en l'étendant vers un modèle $n > 2$ -aire. Dans ce modèle, nous avons proposé une expression analytique de l'énergie libre sous forme de produit de deux paraboloides. Cette approche analytique permet de simplifier la prise en compte des quantités thermodynamiques dans `TrioCFD` sans passer par le branchement de l'outil de calcul d'équilibre thermodynamique `OpenCalphad`. Elle a montré son efficacité au sens des propriétés d'interface.

Dans la dernière partie, dans une configuration 2D cartésien, nous avons réalisé des simulations de la dynamique d'une goutte multicomposant soumise à un transfert de masse dans un domaine fluide avec la version $n > 2$ -aire de `Phase_field`. Il s'agit d'une première étape d'étude sur un système différent du corium issu de la littérature pour lequel il y a des résultats expérimentaux d'intérêt. En effet, les phénomènes physiques qui interviennent dans ce cas sont proches de ceux du mouvement d'une goutte d'acier dans un bain de

corium pendant le transitoire de stratification. Une étude paramétrique au travers de la mobilité a été effectuée en premier lieu afin de montrer son rôle dans le modèle et son influence sur le mouvement de la goutte. L'effet de Gibbs–Thomson associé à l'interface courbée a été mis en évidence dans cette étude. Pour finir, nous avons effectué une première comparaison des études numériques avec l'expérience. Les résultats numériques sont en bon accord avec la dynamique globale de l'étude expérimentale. C'est un bon point de départ pour aller vers la validation quantitative de notre modèle couplé pour une application dans l'étude du transitoire de stratification du corium en cuve.

Ce travail de thèse a permis de mieux comprendre le paramétrage du modèle de Cahn–Hilliard et les phénomènes physiques dans les systèmes multicomposants. En l'état actuel, le modèle `Phase_field` $n > 2$ -aire permet de traiter des phénomènes couplés de transfert de masse et d'hydrodynamique dans un système multicomposant.

Par delà les travaux menés dans cette thèse, différents axes de recherche pourront être explorés. Dans un premier temps, il faudrait entreprendre un travail de débogage et fiabilisation du code pour assurer son bon fonctionnement pour toutes les géométries associées au schéma spatial VDF utilisé (géométrie 2D et 3D cartésiennes, 2D axisymétrique). Notons que cette version $n > 2$ -aire fonctionne en parallèle mais des vérifications restent à effectuer.

Par ailleurs, tout en restant dans le cas isotherme, un axe de travail intéressant est l'amélioration de la résolution numérique des équations de CHNS. D'une part, la mobilité est toujours explicite dans la résolution des équations de CH dans le modèle `Phase_field`. Cela peut être problématique pour des mobilités dégénérées. Ainsi, il serait souhaitable d'impliciter le terme de mobilité. D'autre part, les équations couplées de CHNS sont résolues sur la même grille de pas de temps dans l'état actuel du modèle `Phase_field`. Cela est très pénalisant dans les phases du transitoire de stratification du corium où le rôle de la convection est très limité. Une amélioration du schéma en temps de couplage des équations de CHNS en considérant deux grilles de pas de temps différentes pour CH et NS serait alors nécessaire.

Nous nous sommes limités au cas ternaire dans cette thèse alors que le système représentatif visé est le quaternaire U-O-Zr-Fe. Le potentiel analytique sous forme de produit de deux paraboloides pour le cas quaternaire est déjà implémenté dans le modèle `Phase_field` $n > 2$ -aire. Une étude plus approfondie pour une meilleure compréhension de ce type de potentiel analytique pourra être effectuée. Pour les systèmes $n \geq 4$ -aire, les contraintes par rapport au paysage thermodynamique et le contrôle des propriétés de

l'interface vis-à-vis de la forme et de le paramétrage des coefficients de gradient deviennent plus complexe. Cela permettrait de déterminer dans quel cas ce type de paysage analytique est adapté et ainsi définir les limites associées.

L'objectif final dans cette démarche serait de fournir un modèle complet capable de prendre en compte les phénomènes thermohydraulique, thermochimique et hydrodynamique en transitoire de stratification. À terme, nous pouvons envisager de compléter les équations de Cahn–Hilliard et de Navier–Stokes avec l'équation de conservation de l'énergie. Pour cela, d'un côté, nous pourrions rester sur le potentiel analytique en considérant des paramètres dépendant de la température, ce qui nécessiterait une étude approfondie d'un tel paysage analytique. De l'autre côté, dans le cas où l'outil `OpenCalphad` serait utilisé, son branchement direct avec les outils CFD semble irréaliste pour des calculs 3D et multicomposant $n \geq 4$ -aire en terme de temps de calcul et robustesse. En revanche, d'autres approches sont possibles en particulier la tabulation/interpolation des quantités thermodynamique d'`OpenCalphad` ou au travers de l'utilisation de décomposition tensorielle pour la complétion des bases de données thermodynamiques [176].

Enfin, étant donné l'incertitude forte sur la description thermodynamique du système U-O-Zr-Fe, il pourrait être intéressant de comparer le modèle de Cahn–Hilliard de cette thèse à un modèle d'Allen–Cahn couplé à des équations de diffusion. Un tel modèle présenterait l'avantage de pouvoir utiliser des paysages thermodynamiques simplifiés.

Annexes

ANNEXE A

SOLUTION ANALYTIQUE D'UN MODÈLE DE CAHN–HILLIARD BINAIRE

Il existe un cas particulier d'un système binaire pour lequel une expression analytique du profil d'interface à l'équilibre peut être obtenue. Il s'agit du cas de l'énergie libre symétrique

$$F_H = \phi^2(1 - \phi)^2 \quad (\text{A.1})$$

tels que les deux minima sont à $\phi_\alpha = 0$ et $\phi_\beta = 1$.

Du point de vue thermodynamique, la fonctionnelle \mathbb{F} (resp. le grand potentiel Ω) doit décroître au cours du temps jusqu'à atteindre son minimum correspondant à l'équilibre thermodynamique pour les paramètres d'ordre non conservés (resp. paramètres d'ordre conservés). Le processus de minimisation se passe par ce qu'on appelle dérivée variationnelle, telle qu'à l'équilibre thermodynamique :

- pour les paramètres d'ordre conservés :

$$\frac{\delta\Omega}{\delta\phi} = 0 \quad (\text{A.2})$$

- pour les paramètres d'ordre non conservés :

$$\frac{\delta\mathbb{F}}{\delta\phi} = 0 \quad (\text{A.3})$$

En reprenant l'expression de la dérivée variationnelle de la fonctionnelle \mathbb{F} en Eq. 2.16, nous avons en 1D

$$\frac{\delta \mathbb{F}}{\delta \phi} = \lambda \frac{\partial F_H}{\partial \phi} - \kappa \frac{d^2 \phi}{dx^2} \quad (\text{A.4})$$

Dans cette analyse de la recherche d'une solution analytique, nous supposons que le paramètre d'ordre ϕ soit conservé avec un potentiel chimique à l'équilibre nul ($\tilde{\mu}^{eq} = 0$) [177] (la tangente commune aux deux puits a une pente nulle pour la fonction d'énergie libre donnée en Eq. A.1) ou qu'il soit non conservé de telle sorte qu'à l'équilibre thermodynamique :

$$\lambda \frac{\partial F_H}{\partial \phi} - \kappa \frac{d^2 \phi}{dx^2} = 0 \quad (\text{A.5})$$

En multipliant par $\frac{d\phi}{dx}$ des deux côtés puis en intégrant entre $-\infty$ et x , cette équation peut s'écrire sous la forme :

$$\int_{-\infty}^x \kappa \frac{d^2 \phi}{dx'^2} \frac{d\phi}{dx'} dx' = \int_{-\infty}^x \lambda \frac{\partial F_H}{\partial \phi} \frac{d\phi}{dx'} dx' \quad (\text{A.6})$$

Le terme de gauche donne :

$$\int_{-\infty}^x \kappa \frac{d^2 \phi}{dx'^2} \frac{d\phi}{dx'} dx' = \frac{\kappa}{2} \left(\frac{d\phi}{dx} \right)^2 \quad (\text{A.7})$$

car $\frac{d\phi}{dx'} = 0$ lorsque $x \rightarrow -\infty$.

Le terme de droite s'écrit :

$$\int_{-\infty}^x \lambda \frac{\partial F_H}{\partial \phi} \frac{d\phi}{dx'} dx' = \lambda [F_H(\phi(x)) - F_H(\phi(-\infty))] \quad (\text{A.8})$$

L'Eq. A.6 devient

$$\frac{\kappa}{2} \left(\frac{d\phi}{dx} \right)^2 = \lambda F_H(\phi) \quad (\text{A.9})$$

ce qui permet d'obtenir

$$\frac{d\phi}{dx} = \sqrt{\frac{2\lambda}{\kappa}} \sqrt{F_H(\phi)} \quad (\text{A.10})$$

En prenant en compte l'Eq. A.1, on obtient :

$$\frac{d\phi}{\phi(1-\phi)} = \sqrt{\frac{2\lambda}{\kappa}} dx \quad (\text{A.11})$$

En intégrant la décomposition¹ de l'Eq. A.11, on a

$$\frac{\phi}{1-\phi} = \exp\left(\sqrt{\frac{2\lambda}{\kappa}} x\right) \quad (\text{A.12})$$

Finalement, on obtient l'expression analytique du profil de ϕ à l'état d'équilibre :

$$\phi(x) = \frac{1}{1 + \exp\left(-\sqrt{\frac{2\lambda}{\kappa}} x\right)} = \frac{\exp\left(\sqrt{\frac{2\lambda}{\kappa}} x\right)}{1 + \exp\left(\sqrt{\frac{2\lambda}{\kappa}} x\right)} \quad (\text{A.13})$$

qui peut être écrite sous la forme²

$$\phi(x) = \frac{1}{2} \left(1 + \tanh\left(\sqrt{\frac{\lambda}{2\kappa}} x\right) \right) \quad (\text{A.14})$$

Cette écriture en *tanh* est caractéristique d'un modèle à interface diffuse. La tension de surface et l'épaisseur d'interface peuvent ainsi être définies à partir des Eqs. 2.30 et 2.36 comme

$$\sigma = \frac{1}{6} \sqrt{2\lambda\kappa} \quad (\text{A.15})$$

et

$$\varepsilon = 4\sqrt{\frac{\kappa}{2\lambda}} \quad (\text{A.16})$$

D'où l'écriture dans la littérature de la forme

$$\mathbb{F} = \int_V \left[12 \frac{\sigma}{\varepsilon} F_H(\phi, T) + \frac{3}{4} \sigma \varepsilon \|\nabla\phi\|^2 \right] dV \quad (\text{A.17})$$

Dans le cas général où l'énergie libre est donnée par

$$F_H = a(\phi - \phi_\alpha)^2(\phi_\beta - \phi)^2 \quad (\text{A.18})$$

1. Par décomposition $\frac{1}{\phi(1-\phi)} = \frac{1}{\phi} + \frac{1}{1-\phi}$

2. Par définition $\tanh(x) = \frac{1 - e^{-2x}}{1 + e^{-2x}}$

Le profil analytique à l'équilibre s'écrit comme

$$\phi(x) \simeq \frac{\phi_\beta + \phi_\alpha}{2} + \frac{\phi_\beta - \phi_\alpha}{2} \tanh \left(\sqrt{\frac{a\lambda}{2\kappa}} x \right) \quad (\text{A.19})$$

La tension de surface et l'épaisseur d'interface sont ainsi définies par

$$\sigma = \left| \frac{\phi_\beta^3 - \phi_\alpha^3}{6} + \frac{\phi_\beta \phi_\alpha^2 - \phi_\alpha \phi_\beta^2}{2} \right| \sqrt{2a\lambda\kappa} = A_\sigma^{eq} \sqrt{2a\lambda\kappa} \quad (\text{A.20})$$

et

$$\varepsilon = \sqrt{\frac{\kappa}{2a\lambda}} \left| \frac{\phi_\beta - \phi_\alpha}{\max \left(\frac{d\phi}{dx} \right)} \right| = A_\varepsilon^{eq} \sqrt{\frac{\kappa}{2a\lambda}} \quad (\text{A.21})$$

avec A_ε^{eq} et A_σ^{eq} sont des constantes dépendants de la composition ϕ à l'équilibre thermodynamique.

ANNEXE B

LINÉARITÉ DU POTENTIEL CHIMIQUE À L'ÉQUILIBRE THERMODYNAMIQUE

Dans cette section, nous démontrons qu'à l'équilibre thermodynamique, le potentiel chimique est constant dans tout le domaine afin de ne résoudre que l'équation sur le potentiel chimique lorsqu'on passe au calcul stationnaire dans le Chapitre 3. Nous nous limitons au cas binaire 1D mais la conclusion tirée est aussi valable pour le cas multicomposant. Pour cela, nous étudions les deux cas où la mobilité est constante et dégénérée :

- Si la mobilité est constante, l'équation de Cahn–Hilliard s'écrit

$$\begin{cases} \frac{\partial \phi}{\partial t} = M \Delta \tilde{\mu} \\ \tilde{\mu} = \lambda \left(\frac{\partial F_H}{\partial \phi} \right) - \kappa \nabla^2 \phi \end{cases} \quad (\text{B.1})$$

La première équation donne à l'équilibre thermodynamique (*i.e.* en régime permanent) $\frac{\partial \phi}{\partial t} = 0$, soit $\Delta \tilde{\mu} = 0$. La résolution de cette équation conduit à $\tilde{\mu}(z) = Az + B$. Sachant qu'à l'équilibre thermodynamique, une des conditions de coexistence des phases est $\tilde{\mu}^{\alpha,eq} = \tilde{\mu}^{\beta,eq} = \tilde{\mu}^{eq}$. En d'autres termes, $\tilde{\mu}(z=0) = \tilde{\mu}(z=L) = \tilde{\mu}^{eq}$, ce qui signifie que $A = 0$ et $B = \tilde{\mu}^{eq}$. Finalement, le potentiel chimique $\tilde{\mu}(z) = \tilde{\mu}^{eq}$ à l'équilibre thermodynamique et ne dépend pas de l'espace.

- Si la mobilité est dégénérée, l'équation de Cahn–Hilliard s'écrit

$$\begin{cases} \frac{\partial \phi}{\partial t} = \nabla \cdot (M(\phi) \nabla \tilde{\mu}) \\ \tilde{\mu} = \lambda \left(\frac{\partial F_H}{\partial \phi} \right) - \kappa \nabla^2 \phi \end{cases} \quad (\text{B.2})$$

À l'équilibre thermodynamique, nous avons $\frac{\partial \phi}{\partial t} = 0$, soit $M(\phi) \nabla \tilde{\mu} = A$ (A étant une constante). En 1D, on obtient $\frac{\partial \tilde{\mu}}{\partial z} = M^{-1}(\phi) A$. En l'intégrant sur le domaine et en mettant $P(\phi(z)) = \int M^{-1}(\phi) dz$, on obtient $\tilde{\mu} = AP(\phi(z)) + B$. Sachant que d'après la condition de coexistence des phases, à l'équilibre thermodynamique, on a $\tilde{\mu}^{\alpha,eq} = \tilde{\mu}^{\beta,eq} = \tilde{\mu}^{eq}$, ce qui nous donne $A = 0$ et $B = \tilde{\mu}^{eq}$. On en déduit qu'à l'équilibre thermodynamique, le potentiel chimique est indépendant de l'espace et vaut $\tilde{\mu}^{eq}$, quelque soit la mobilité (constante ou dégénérée).

Dans les deux cas, le problème à potentiel imposé se réduit à résoudre uniquement la deuxième équation en fixant une valeur $\tilde{\mu}^{eq}$ au potentiel chimique.

ANNEXE C

POTENTIEL ANALYTIQUE - PRODUIT DE DEUX PARABOLOÏDES

Cette annexe présente les développements des expressions du potentiel analytique, de leurs dérivées ainsi que les paramètres associées. Nous présentons d'abord dans le système ternaire puis le système quaternaire.

C.1 Système ternaire

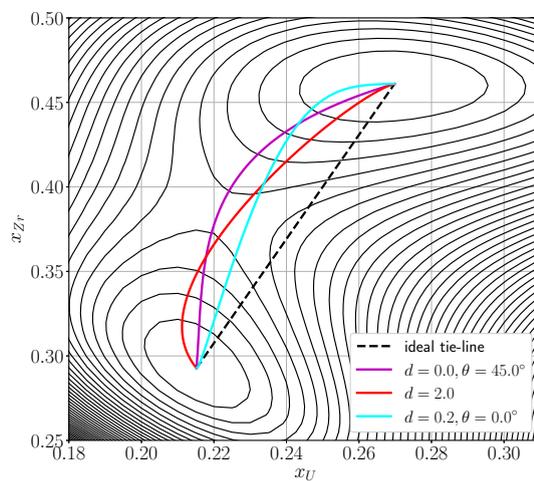


FIGURE C.1 : Paysage thermodynamique du cas n°3 dans [11])

Le paysage thermodynamique montré en Figure C.1 représente deux puits correspondant aux deux points d'équilibre thermodynamique dans la surface définie par le grand potentiel

$$\Omega = \frac{1}{V_m} \left(\bar{G}^{liq}(x_U, x_{Zr}) - \sum_{i \in \{U, Zr\}} (\mu_i^{eq} - \mu_O^{eq}) x_i \right) \quad (C.1)$$

La condition d'équilibre thermodynamique impose que les valeurs du grand potentiel Ω à ces points d'équilibre sont identiques dans les deux phases. Ainsi, nous définissons le grand potentiel modifié $\Omega^* = \Omega - \Omega^{eq}$ comme

$$\Omega^* = G - \sum_{i \in \{U, Zr\}} \tilde{\mu}_i^{eq} x_i - \left(G^{eq} - \sum_{i \in \{U, Zr\}} \tilde{\mu}_i^{eq} x_i^{eq} \right) \quad (C.2)$$

tel que G la densité d'énergie libre¹, G^{eq} la densité d'énergie libre à l'équilibre et $\Omega^* = 0$ aux deux points d'équilibre dans le plan (x_U, x_{Zr}) . Les lignes de contour autour de ces points d'équilibre ont la forme d'un paraboloides soumis à une rotation d'angle θ

Pour rappel, les coordonnées $(x_{M'}, y_{M'})$ d'un point M' image d'un point M de coordonnées (x_M, y_M) par la rotation d'angle θ autour de son centre I(x_I, y_I) sont données par :

$$\overrightarrow{IM'} = R_\theta \overrightarrow{IM} \quad (C.3)$$

avec

$$R_\theta = \begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta \\ -\sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix} \quad (C.4)$$

Autrement dit

$$\begin{pmatrix} X_U - x_U^{eq,k} \\ X_{Zr} - x_{Zr}^{eq,k} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \theta^k & \sin \theta^k \\ -\sin \theta^k & \cos \theta^k \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_U - x_U^{eq,k} \\ x_{Zr} - x_{Zr}^{eq,k} \end{pmatrix} \quad (C.5)$$

avec (X_U, X_{Zr}) les coordonnées de l'image par rotation d'angle θ^k autour des points d'équilibre.

Dans le cas des paraboloides, cela se traduit pour chacune des phases $k \in \{ox, met\}$ par

1. La densité d'énergie libre G^{liq} représente directement $\frac{\bar{G}^{liq}}{V_m}$ dans l'Eq. C.1.

$$P^k = \left(\frac{\cos \theta^k (x_U - x_U^{eq,k}) + \sin \theta^k (x_{Zr} - x_{Zr}^{eq,k})}{a_x^k} \right)^2 + \left(\frac{-\sin \theta^k (x_U - x_U^{eq,k}) + \cos \theta^k (x_{Zr} - x_{Zr}^{eq,k})}{a_y^k} \right)^2 \quad (C.6)$$

avec P^k l'expression d'un paraboloides autour de la phase $k \in \{ox, met\}$ soumis à une rotation d'angle θ^k , $x_i^{eq,k}$ les compositions d'équilibre de l'élément i et a_j^k la largeur du puits dans les deux directions $j \in \{x, y\}$.

Dans l'optique d'exprimer analytiquement les grandeurs thermodynamiques du système, nous proposons que ce grand potentiel modifié Ω^* soit égal au produit de ces deux paraboloides *i.e.*

$$\Omega^* = P^{ox} \times P^{met} \quad (C.7)$$

Faisant ainsi, nous pouvons exprimer le terme non linéaire dans les équations de Cahn–Hilliard comme

$$\frac{\partial G}{\partial x_i} = P^{ox} \frac{\partial P^{met}}{\partial x_i} + P^{met} \frac{\partial P^{ox}}{\partial x_i} + \tilde{\mu}_i^{eq} \quad (C.8)$$

avec $\tilde{\mu}_i^{eq}$ le potentiel à l'équilibre représentant le décalage énergétique pour les deux phases et est constant à l'équilibre thermodynamique en raison de la suppression du plan tangent.

Concrètement, pour $\frac{\partial G}{\partial x_U}$ et $\frac{\partial G}{\partial x_{Zr}}$, on a :

$$\frac{\partial G}{\partial x_U} = P^{ox} \frac{\partial P^{met}}{\partial x_U} + P^{met} \frac{\partial P^{ox}}{\partial x_U} + \tilde{\mu}_U^{eq} \quad (C.9)$$

$$\frac{\partial G}{\partial x_{Zr}} = P^{ox} \frac{\partial P^{met}}{\partial x_{Zr}} + P^{met} \frac{\partial P^{ox}}{\partial x_{Zr}} + \tilde{\mu}_{Zr}^{eq} \quad (C.10)$$

tel que $\forall k \in \{ox, met\}$

$$\frac{\partial P^k}{\partial x_U} = 2(x_U - x_U^{eq,k}) \left[\frac{\cos^2 \theta^k}{(a_x^k)^2} + \frac{\sin^2 \theta^k}{(a_y^k)^2} \right] + 2(x_{Zr} - x_{Zr}^{eq,k}) \left[\frac{\cos \theta^k \sin \theta^k}{(a_x^k)^2} - \frac{\sin \theta^k \cos \theta^k}{(a_y^k)^2} \right] \quad (C.11)$$

et

$$\frac{\partial P^k}{\partial x_{Zr}} = 2(x_U - x_U^{eq,k}) \left[\frac{\cos \theta^k \sin \theta^k}{(a_x^k)^2} - \frac{\sin \theta^k \cos \theta^k}{(a_y^k)^2} \right] + 2(x_{Zr} - x_{Zr}^{eq,k}) \left[\frac{\sin^2 \theta^k}{(a_x^k)^2} + \frac{\cos^2 \theta^k}{(a_y^k)^2} \right] \quad (C.12)$$

C.2 Système quaternaire

En partant du même principe que précédemment, nous nous intéressons dans cette section au système quaternaire (U-O-Zr-Fe) avec 3 variables indépendantes dont U-Zr-Fe, donc 3 axes avec une matrice de rotation sous la forme suivante :

$$R_{\theta,\phi}^k = \begin{pmatrix} \cos \theta^k & \sin \theta^k & 0 \\ -\sin \theta^k & \cos \theta^k & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \phi^k & \sin \phi^k \\ 0 & -\sin \phi^k & \cos \phi^k \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \theta^k & \sin \theta^k \cos \phi^k & \sin \theta^k \sin \phi^k \\ -\sin \theta^k & \cos \theta^k \cos \phi^k & \cos \theta^k \sin \phi^k \\ 0 & -\sin \phi^k & \cos \phi^k \end{pmatrix} \quad (C.13)$$

avec θ^k et ϕ^k les angles de rotation autour des points d'équilibre respectivement dans le plan (x_U, x_{Zr}) et (x_{Fe}, x_{Zr}) . Avec cette rotation, on peut donc écrire P^{ox} et P^{met} comme :

$$P^{ox} = \left(\frac{\cos \theta^{ox}(x_U - x_U^{eq,ox}) + \sin \theta^{ox} \cos \phi^{ox}(x_{Zr} - x_{Zr}^{eq,ox}) + \sin \theta^{ox} \sin \phi^{ox}(x_{Fe} - x_{Fe}^{eq,ox})}{a_U^{ox}} \right)^2 + \left(\frac{-\sin \theta^{ox}(x_U - x_U^{eq,ox}) + \cos \theta^{ox} \cos \phi^{ox}(x_{Zr} - x_{Zr}^{eq,ox}) + \cos \theta^{ox} \sin \phi^{ox}(x_{Fe} - x_{Fe}^{eq,ox})}{a_{Zr}^{ox}} \right)^2 + \left(\frac{-\sin \phi^{ox}(x_{Zr} - x_{Zr}^{eq,ox}) + \cos \phi^{ox}(x_{Fe} - x_{Fe}^{eq,ox})}{a_{Fe}^{ox}} \right)^2 \quad (C.14)$$

$$P^{met} = \left(\frac{\cos \theta^{met}(x_U - x_U^{eq,met}) + \sin \theta^{met} \cos \phi^{met}(x_{Zr} - x_{Zr}^{eq,met}) + \sin \theta^{met} \sin \phi^{met}(x_{Fe} - x_{Fe}^{eq,met})}{a_U^{met}} \right)^2 + \left(\frac{-\sin \theta^{met}(x_U - x_U^{eq,met}) + \cos \theta^{met} \cos \phi^{met}(x_{Zr} - x_{Zr}^{eq,met}) + \cos \theta^{met} \sin \phi^{met}(x_{Fe} - x_{Fe}^{eq,met})}{a_{Zr}^{met}} \right)^2 + \left(\frac{-\sin \phi^{met}(x_{Zr} - x_{Zr}^{eq,met}) + \cos \phi^{met}(x_{Fe} - x_{Fe}^{eq,met})}{a_{Fe}^{met}} \right)^2 \quad (C.15)$$

En utilisant les Eq. C.14 et C.15, nous pouvons obtenir $\frac{\partial G}{\partial x_j}$ ($j \in \{U, Zr, Fe\}$) :

$$\frac{\partial G}{\partial x_U} = P^{ox} \frac{\partial P^{met}}{\partial x_U} + P^{met} \frac{\partial P^{ox}}{\partial x_U} + \tilde{\mu}_U^{eq} \quad (C.16)$$

$$\frac{\partial G}{\partial x_{Zr}} = P^{ox} \frac{\partial P^{met}}{\partial x_{Zr}} + P^{met} \frac{\partial P^{ox}}{\partial x_{Zr}} + \tilde{\mu}_{Zr}^{eq} \quad (C.17)$$

$$\frac{\partial G}{\partial x_{Fe}} = P^{ox} \frac{\partial P^{met}}{\partial x_{Fe}} + P^{met} \frac{\partial P^{ox}}{\partial x_{Fe}} + \tilde{\mu}_{Fe}^{eq} \quad (C.18)$$

avec $\forall k \in \{ox, met\}$

$$\begin{aligned} \frac{\partial P^k}{\partial x_U} = & 2(x_U - x_U^{eq,k}) \left[\frac{\cos^2 \theta^k}{(a_U^k)^2} + \frac{\sin^2 \theta^k}{(a_{Zr}^k)^2} \right] + 2(x_{Zr} - x_{Zr}^{eq,k}) \left[\frac{\cos \theta^k \sin \theta^k \cos \phi^k}{(a_U^k)^2} - \frac{\cos \theta^k \sin \theta^k \cos \phi^k}{(a_{Zr}^k)^2} \right] \\ & + 2(x_{Fe} - x_{Fe}^{eq,k}) \left[\frac{\cos \theta^k \sin \theta^k \sin \phi^k}{(a_U^k)^2} - \frac{\cos \theta^k \sin \theta^k \sin \phi^k}{(a_{Zr}^k)^2} \right] \end{aligned} \quad (C.19)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial P^k}{\partial x_{Zr}} = & 2(x_U - x_U^{eq,k}) \left[\frac{\sin \theta^k \cos \phi^k \cos \phi^k}{(a_U^k)^2} - \frac{\sin \theta^k \cos \phi^k \cos \phi^k}{(a_{Zr}^k)^2} \right] \\ & + 2(x_{Zr} - x_{Zr}^{eq,k}) \left[\frac{\sin^2 \theta^k \cos^2 \phi^k}{(a_U^k)^2} + \frac{\cos^2 \theta^k \cos^2 \phi^k}{(a_{Zr}^k)^2} + \frac{\sin^2 \phi^k}{(a_{Fe}^k)^2} \right] \\ & + 2(x_{Fe} - x_{Fe}^{eq,k}) \left[\frac{\sin^2 \theta^k \cos \phi^k \sin \phi^k}{(a_U^k)^2} + \frac{\cos^2 \theta^k \cos \phi^k \sin \phi^k}{(a_{Zr}^k)^2} + \frac{\sin \phi \cos \phi^k}{(a_{Fe}^k)^2} \right] \end{aligned} \quad (C.20)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial P^k}{\partial x_{Fe}} = & 2(x_U - x_U^{eq,k}) \left[\frac{\sin \theta^k \sin \phi^k \cos \theta^k}{(a_U^k)^2} - \frac{\sin \theta^k \sin \phi^k \cos \theta^k}{(a_{Zr}^k)^2} \right] \\ & + 2(x_{Zr} - x_{Zr}^{eq,k}) \left[\frac{\sin^2 \theta^k \sin \phi^k \cos \phi^k}{(a_U^k)^2} + \frac{\cos^2 \theta^k \sin \phi^k \cos \phi^k}{(a_{Zr}^k)^2} - \frac{\sin \phi^k \cos \phi^k}{(a_{Fe}^k)^2} \right] \\ & + 2(x_{Fe} - x_{Fe}^{eq,k}) \left[\frac{\sin^2 \theta^k \sin^2 \phi^k}{(a_U^k)^2} + \frac{\cos^2 \theta^k \sin^2 \phi^k}{(a_{Zr}^k)^2} + \frac{\cos^2 \phi^k}{(a_{Fe}^k)^2} \right] \end{aligned} \quad (C.21)$$

C.3 Détermination des paramètres d'interface

La tension de surface est alors définie comme

$$\sigma = \int_V \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \kappa_{i,j} \nabla \phi_i \nabla \phi_j dV \quad (\text{C.22})$$

avec $\kappa_{i,j}$ les coefficients de gradient.

Nous construisons la matrice $\bar{\kappa}$ à partir de κ^{bin} du système binaire afin d'assurer la cohérence avec le système binaire. Pour cela, nous revenons au cas binaire pour une interface plane telle que la tension de surface est donnée par

$$\sigma = \int_0^L \kappa \left(\frac{d\phi}{dz} \right)^2 dz \quad (\text{C.23})$$

À l'équilibre thermodynamique, nous avons

$$\kappa \frac{d^2\phi}{dz^2} = \lambda \frac{dG}{d\phi} - \tilde{\mu}^{eq} \quad (\text{C.24})$$

En multipliant l'Eq. C.24 par $\frac{d\phi}{dz}$ et en intégrant entre 0 et z , on obtient :

$$\frac{d\phi}{dz} = \sqrt{\frac{2\lambda}{\kappa} \sqrt{G - \tilde{\mu}^{eq}\phi - (G^{eq,ox} - \tilde{\mu}^{eq}\phi^{eq,ox})}} \quad (\text{C.25})$$

La tension de surface en Eq. C.23 devient

$$\sigma = \sqrt{2\lambda\kappa} \int_{\phi^{eq,ox}}^{\phi^{eq,met}} \sqrt{G - \tilde{\mu}^{eq}\phi - (G^{eq,ox} - \tilde{\mu}^{eq}\phi^{eq,ox})} d\phi \quad (\text{C.26})$$

Le terme sous la racine carrée correspond au grand potentiel modifié Ω^* en Eq. C.2 pour un seul paramètre d'ordre. En injectant l'Eq. C.6 dans l'Eq. C.2, on peut écrire Ω^* pour le paramètre d'ordre de référence ϕ :

$$\Omega^* = \left[\left(\frac{\cos \theta^{ox}}{a_1^{ox}} \right)^2 + \left(\frac{\sin \theta^{ox}}{a_2^{ox}} \right)^2 \right] \left[\left(\frac{\cos \theta^{met}}{a_1^{met}} \right)^2 + \left(\frac{\sin \theta^{met}}{a_2^{met}} \right)^2 \right] (\phi - \phi^{eq,ox})^2 (\phi - \phi^{eq,met})^2 \quad (\text{C.27})$$

Pour simplifier les notations, nous imposons

$$\Gamma = \left[\left(\frac{\cos \theta^{ox}}{a_1^{ox}} \right)^2 + \left(\frac{\sin \theta^{ox}}{a_2^{ox}} \right)^2 \right] \left[\left(\frac{\cos \theta^{met}}{a_1^{met}} \right)^2 + \left(\frac{\sin \theta^{met}}{a_2^{met}} \right)^2 \right] \quad (\text{C.28})$$

En combinant les Eqs. C.26 et C.27, pour un seul paramètre d'ordre, nous obtenons l'expression générale de la tension de surface σ associée au paysage thermodynamique sous forme de produit de deux paraboloïdes.

$$\sigma = \sqrt{2\lambda\Gamma\kappa} \left| \frac{(\phi^{eq,ox})^3 - (\phi^{eq,met})^3}{6} + \frac{\phi^{eq,ox}(\phi^{eq,met})^2 - (\phi^{eq,ox})^2\phi^{eq,met}}{2} \right| \quad (\text{C.29})$$

Par ailleurs, l'épaisseur d'interface est définie comme

$$\varepsilon_i = \left| \frac{\phi_i^{eq,met} - \phi_i^{eq,ox}}{\max\left(\frac{d\phi_i}{dz}\right)} \right| \quad (\text{C.30})$$

En considérant les Eqs. C.2 et C.25, pour un seul paramètre d'ordre, nous obtenons

$$\varepsilon = \sqrt{\frac{\kappa}{2\lambda}} \left| \frac{(\phi^{eq,met} - \phi^{eq,ox})}{\max(\sqrt{\Omega^*})} \right| \quad (\text{C.31})$$

Les Eqs. C.29 et C.31 deviennent

$$\sigma = \xi_1 \sqrt{2\lambda\kappa} \quad (\text{C.32})$$

$$\varepsilon = \xi_2 \sqrt{\frac{\kappa}{2\lambda}} \quad (\text{C.33})$$

avec ξ_1 et ξ_2

$$\xi_1 = \sqrt{\Gamma} \left(\frac{(\phi^{eq,ox})^3 - (\phi^{eq,met})^3}{6} + \frac{\phi^{eq,ox}(\phi^{eq,met})^2 - (\phi^{eq,ox})^2\phi^{eq,met}}{2} \right) \quad (\text{C.34})$$

$$\xi_2 = \left| \frac{\phi^{eq,met} - \phi^{eq,ox}}{\max\left(\sqrt{\Gamma}(\phi - \phi^{eq,ox})(\phi - \phi^{eq,met})\right)} \right| \quad (\text{C.35})$$

Finalement, les paramètres κ et λ sont obtenus par

$$\kappa = \frac{\sigma\varepsilon}{\xi_1\xi_2} \quad (\text{C.36})$$

$$\lambda = \frac{\xi_2\sigma}{2\varepsilon\xi_1} \quad (\text{C.37})$$

ANNEXE D

RÉSOLUTION NUMÉRIQUE DES ÉQUATIONS DE CAHN–HILLIARD/NAVIER–STOKES DANS PHASE_FIELD

Dans le modèle `Phase_field`, la résolution du système couplé de Cahn–Hilliard et Navier–Stokes (CHNS) est effectuée en deux étapes : une première étape de résolution de l'équation de Cahn–Hilliard pour évaluer ϕ^{n+1} et $\tilde{\mu}^{n+1}$ à l'instant $t_{n+1} = t + \Delta t$ suivie d'une deuxième étape dans laquelle on résout l'équation du bilan de quantité de mouvement afin d'évaluer la vitesse \mathbf{u}^{n+1} et la pression P^{n+1} à partir de ϕ^{n+1} et $\tilde{\mu}^{n+1}$ obtenus dans la première étape.

D.1 Étape 1 : Résolution de l'équation de Cahn–Hilliard

Dans cette première étape, la résolution de l'équation de CH s'effectue en deux sous-étapes : une première sous-étape où l'on ne considère que le terme diffusif (*i.e.* sans le terme d'advection) et une deuxième sous-étape où cette fois le terme advectif est pris en compte. Nous utilisons les notations ϕ^{n*} et $\tilde{\mu}^{n*}$ (resp. ϕ^{n+1} et $\tilde{\mu}^{n+1}$) pour désigner les valeurs de ϕ et $\tilde{\mu}$ à l'instant t^{n+1} lorsqu'on ne considère que le terme diffusif (resp. lorsque le terme advectif est calculé dans la deuxième étape).

D.1.1 Résolution uniquement du terme source CH

Considéré comme étape intermédiaire, elle permet de résoudre l'équation de *Cahn–Hilliard purement diffusive* pour pouvoir déterminer la valeur ϕ^{n*} avant d'évaluer ϕ^{n+1} . Cette première sous-étape peut être résolue de manière explicite ou implicite au travers d'un θ -schéma.

- Résolution explicite

La résolution explicite pour déterminer ϕ^{n*} se fait comme suit :

$$\frac{\phi^{n*} - \phi^n}{\Delta t} = \nabla \cdot (\mathcal{M}(\phi^n) \nabla \tilde{\mu}^n) \quad (\text{D.1})$$

avec

$$\tilde{\mu}^n = \lambda \frac{dF_H}{d\phi}(\phi^n) - \kappa \nabla^2 \phi^n \quad (\text{D.2})$$

Avec la résolution explicite, la valeur de ϕ^{n*} s'obtient facilement à partir de la connaissance de ϕ^n . Néanmoins, ce choix explicite exige des sévères restrictions sur le pas de temps, rendant ainsi obligatoire le passage vers une résolution implicite. De manière générale, la résolution implicite est préférée à l'explicite par sa stabilité inconditionnelle et l'avantage de pouvoir prendre un pas de temps plus grand que celui d'une résolution explicite.

- Résolution implicite via un θ -schéma

La résolution implicite *via* θ -schéma du système d'équation de Cahn–Hilliard sans le terme d'advection dans `TrioCFD` s'écrit comme

$$\frac{\phi^{n*} - \phi^n}{\Delta t} = \nabla \cdot (\mathcal{M}(\phi^n) \nabla \tilde{\mu}^{n**}) \quad (\text{D.3})$$

avec

$$\tilde{\mu}^{n**} = \lambda \left(\frac{dF_H}{d\phi}(\phi^{n**}) \right) - \kappa \nabla^2 \phi^{n**} \quad (\text{D.4})$$

Les valeurs ϕ^{n**} et $\tilde{\mu}^{n**}$ sont obtenus à partir d'une discrétisation temporelle type θ -schéma telle que

$$\phi^{n**} = \theta \phi^{n*} + (1 - \theta) \phi^n \quad (\text{D.5})$$

$$\tilde{\mu}^{n**} = \theta \tilde{\mu}^{n*} + (1 - \theta) \tilde{\mu}^n \quad (\text{D.6})$$

où θ est fixé à 0.6 dans le code `Phase_field` de `TrioCFD` pour des raisons de stabilité. À titre informatif, dans le θ -schéma, θ peut être pris entre $[0, 1]$ où l'on obtient le schéma d'Euler explicite si $\theta = 0$, Euler implicite si $\theta = 1$ et Crank-Nicholson si $\theta = 0.5$.

En injectant les Eqs. D.5 et D.6 dans Eq. D.3, on peut écrire le système d'équations

$$\begin{cases} \frac{\phi^{n^{**}} - \phi^n}{\theta \Delta t} = \nabla \cdot (\mathcal{M}(\phi^n) \nabla \tilde{\mu}^{n^{**}}) \\ \tilde{\mu}^{n^{**}} = \lambda \left(\frac{dF_H}{d\phi}(\phi^{n^{**}}) \right) - \kappa \nabla^2 \phi^{n^{**}} \end{cases} \quad (\text{D.7})$$

Pour des raisons de simplification du système non linéaire, la mobilité dégénérée dans le modèle `Phase_field` de `TrioCFD` est toujours évaluée au temps t_n .

Afin d'obtenir $\phi^{n^{**}}$ et $\tilde{\mu}^{n^{**}}$, deux méthodes sont proposées dans le modèle `Phase_field` pour résoudre l'Eq. D.7 : la méthode du point fixe et la méthode JFNK [149]. Cette dernière méthode est recommandée pour les simulations effectuées avec le modèle `Phase_field` car elle a l'avantage de pouvoir résoudre le problème non linéaire sans calculer directement la jacobienne, tout en gardant la précision. En effet, la méthode JFNK utilise une approximation par différences finies de la jacobienne avec une résolution inexacte du système linéaire à chaque itérations par une méthode GMRES (Generalized Minimal RESidual) [150].

Une fois $\phi^{n^{**}}$ et $\tilde{\mu}^{n^{**}}$ obtenus, on revient aux Eqs. D.5 et D.6 pour déterminer ϕ^{n^*} et $\tilde{\mu}^{n^*}$.

D.1.2 Calcul du terme advectif de CH

Cette deuxième sous-étape prend en compte le terme de *advection CH* dans l'équation de Cahn–Hilliard afin de déterminer ϕ^{n+1} . Le terme de diffusion calculé dans l'étape précédente est traité comme terme source dans cette deuxième sous-étape et nous sert à calculer la valeur de ϕ^{n+1} à l'instant t_{n+1} . À titre illustratif, un schéma temporel d'Euler explicite est pris dans l'Eq. D.8 mais des schémas comme Euler implicite, Euler explicite, Runge-Kutta d'ordre 2, d'ordre 3 [161] sont disponibles dans la base `TRUST`.

$$\frac{\phi^{n+1} - \phi^n}{\Delta t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \phi^n = S(\phi^{n^*}) \quad (\text{D.8})$$

avec $S(\phi^{n^*})$ un terme source qui vient de l'étape précédente.

Par ailleurs, il faut discrétiser l'opérateur d'advection dans l'équation de Cahn–Hilliard. Pour la méthode VDF, la base TRUST propose les trois schémas suivants : le schéma Upwind [161], le schéma centré d'ordre 2 et le schéma QUICK (Quadratic Upwind Interpolation for Convective Kinematics) [178] pour le traitement du terme advectif. Dans la pratique, le schéma QUICK [178] est recommandé pour sa stabilité et sa précision vis-à-vis de son ordre élevé.

D.2 Étape 2 : Résolution des équations de Navier–Stokes

Les équations de Navier–Stokes en Eq. 4.3 sont résolues par une méthode de projection dans la partie monofluide de TRUST afin de déterminer \mathbf{u}^{n+1} et P^{n+1} . Dans cette section, nous présentons la méthode de projection dans le cas plus simple de l'approximation de Boussinesq de telle sorte que les équations de Navier–Stokes s'écrivent

$$\rho^* \left(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \right) = -\nabla P + \tilde{\mu} \nabla \phi + (\rho - \rho^*) \mathbf{g} + \eta \Delta \mathbf{u} \quad (\text{D.9})$$

avec ρ^* la densité de référence.

La méthode de projection comprend deux étapes successives :

1. étape de prédiction : on ne résout que le problème d'advection-diffusion (sans le terme de pression) afin de déterminer la vitesse prédite notée \mathbf{u}^* . L'équation de NS sans le terme de pression peut être écrite comme

$$\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} = \mathbf{F} \quad (\text{D.10})$$

avec \mathbf{F} toutes les forces autres que la force de pression. À titre illustratif, nous présentons ici le schéma d'Euler explicite mais d'autres schémas sont disponibles dans TRUST. En pratique, on privilégie l'utilisation du schéma Runge Kutta 3 pour son ordre élevé. L'Eq. D.10 est donc discrétisée de manière suivante

$$\mathbf{u}^* = \mathbf{u}^n + \Delta t \mathbf{F} \quad (\text{D.11})$$

La vitesse obtenue \mathbf{u}^* est appelée vitesse prédite. Le temps auquel est évalué \mathbf{F} n'est pas précisé car cela peut dépendre des problèmes traités. Cependant, les dépendances

en \mathbf{u} doivent être explicites. La discrétisation du terme de convection est cachée dans \mathbf{F} peut s'effectuer avec un des schémas Upwind [161] ou centré ou QUICK [178] comme dans la section précédente.

2. étape de correction : le terme de pression est pris en compte dans l'équation afin d'obtenir la pression P^{n+1} par l'équation de Poisson puis la vitesse corrigée \mathbf{u}^{n+1} à partir de la vitesse prédite \mathbf{u}^* et de la pression P . Autrement dit, nous considérons l'équation de NS écrite avec le terme de pression, soit en discrétisée

$$\mathbf{u}^{n+1} = -\Delta t \frac{\nabla P^{n+1}}{\rho^*} + \underbrace{\mathbf{u}^n + \Delta t \mathbf{F}}_{\mathbf{u}^*} \quad (\text{D.12})$$

En prenant en compte l'Eq. D.11, on obtient

$$\mathbf{u}^{n+1} = \mathbf{u}^* - \Delta t \frac{\nabla P^{n+1}}{\rho^*} \quad (\text{D.13})$$

où \mathbf{u}^{n+1} est la vitesse corrigée soumise à la condition incompressibilité

$$\nabla \cdot \mathbf{u}^{n+1} = 0 \quad (\text{D.14})$$

En appliquant l'opérateur divergence à l'Eq. D.13, cela donne

$$\Delta P^{n+1} = \frac{\rho^*}{\Delta t} \nabla \cdot \mathbf{u}^* \quad (\text{D.15})$$

C'est l'équation de Poisson. Sa résolution dans TRUST passe par un solveur de pression en utilisant la méthode de Cholesky [161] ou certaines méthodes qu'on peut trouver dans la librairie PETSC [179] ou de la méthode du gradient conjugué préconditionné [180].

À partir de la connaissance de P et la vitesse prédite \mathbf{u}^* , nous pouvons obtenir la vitesse \mathbf{u}^{n+1} en résolvant l'Eq. D.13.

Discutons brièvement du terme source de tension de surface et de la pression dans Navier–Stokes. Différentes formes pour traiter ces termes existent dans la littérature dont quatre sont disponibles dans le modèle `Phase_field` :

- la forme 1

$$-\nabla P + \tilde{\mu} \nabla \phi = -\nabla(P - \tilde{\mu} \phi) - \phi \nabla \tilde{\mu} \quad (\text{D.16})$$

- la forme 2

$$-\nabla P + \tilde{\mu}\nabla\phi = -\nabla(P - F_H + \phi\nabla \cdot (\kappa^*\nabla\phi)) + \phi\nabla[\nabla \cdot (\kappa^*\nabla\phi)] \quad (\text{D.17})$$

- la forme 3

$$-\nabla P + \tilde{\mu}\nabla\phi = -\nabla\left(P + F_H - \kappa^*\frac{(\nabla\phi)^2}{2} + \phi\nabla \cdot (\kappa^*\nabla\phi)\right) + \phi\nabla[\nabla \cdot (\kappa^*\nabla\phi)] - \nabla\left(\kappa^*\frac{(\nabla\phi)^2}{2}\right) \quad (\text{D.18})$$

- la forme 4

$$-\nabla P + \tilde{\mu}\nabla\phi = -\nabla(P + F_H) - \nabla \cdot (\kappa^*\nabla\phi)\nabla\phi \quad (\text{D.19})$$

Elles sont équivalentes au niveau continu mais peuvent donner des résultats différents au niveau discret du fait de la discrétisation spatiale et de la résolution numérique. En effet, elles modifient la définition de la pression utilisée pour la résolution de l'équation de Poisson dans la résolution du bilan de quantité de mouvement. La forme 1 en Eq. D.16 est la plus utilisée dans la littérature [7, 91] car elle présente l'avantage numérique d'avoir un terme source nul à l'équilibre.

ANNEXE E

CONSTRUCTION DU SYSTÈME MATRICIEL ET LA MÉTHODE JFNK

Dans un système multicomposant, la résolution implicite pour déterminer ϕ^* s'écrit comme suit :

$$\frac{\phi_i^{n^*} - \phi_i^n}{\Delta t} = \nabla \cdot \left[\sum_{j=1}^{N_c} \mathcal{M}_{i,j}^*(\phi^n) \nabla (\tilde{\mu}_j^{n^{**}}) \right] \quad (\text{E.1})$$

avec

$$\tilde{\mu}_j^{n^{**}} = \lambda \left(\frac{\partial F_H}{\partial \phi_j} \right) (\phi_i^{n^{**}}) - \sum_{l=1}^{N_c} \kappa_{j,l}^* \nabla^2 \phi_l^{n^{**}} \quad (\text{E.2})$$

En considérant le θ -schéma dans ces équations, on obtient au temps $t^{n^{**}}$ le système d'équations :

$$\left\{ \begin{array}{l} \phi_i^{n^{**}} - \Delta t \theta \nabla \cdot \left[\sum_{j=1}^{N_c} \mathcal{M}_{i,j}^*(\phi^n) \nabla (\tilde{\mu}_j^{n^{**}}) \right] = \phi_i^n \\ \sum_{j=1}^{N_c} \kappa_{i,j}^* \nabla^2 \phi_i^{n^{**}} + \tilde{\mu}_i^{n^{**}} = F'(\phi_i^{n^{**}}) \end{array} \right. \quad (\text{E.3})$$

avec $F' = \lambda \frac{\partial F_H}{\partial \phi_i}$ le terme non linéaire. Ce système d'équations peut être encore écrit sous forme matricielle comme :

$$\underbrace{\begin{bmatrix} [A_1] & [A_2] \\ [A_3] & [A_4] \end{bmatrix}}_{\bar{A}} \underbrace{\begin{bmatrix} [\phi_i^{n**}] \\ [\tilde{\mu}^{n**}] \end{bmatrix}}_{\bar{X}} = \underbrace{\begin{bmatrix} [\phi^n] \\ [F'(\phi^{n**})] \end{bmatrix}}_{b[\bar{X}]} \quad (\text{E.4})$$

dont le remplissage de la matrice \bar{A} se fait par Compressed Sparse Row (CSR, CRS ou Yale) [161] qui est un format de stockage d'une matrice creuse dans lequel on définit le vecteur \overline{coeff} pour stocker les coefficients non-nuls, le vecteur \overline{col} qui stocke le numéro de colonnes dans la matrice de ces coefficients ainsi que vecteur \overline{rang} pour stocker le rang de l'élément de \overline{col} pour lequel on change de ligne.

- $[A_1]$ et $[A_4]$ désignent la matrice de taille $[M \times (N - 1)] \times [M \times (N - 1)]$ avec M le nombre d'éléments dans le domaine discrétisé avec la méthode VDF et $(N-1)$ le nombre d'équations de CH à résoudre (système N-aire). Ces matrices sont définies par blocs avec

$$[A_1] = [A_4] = \begin{pmatrix} \overline{Id} & \bar{0} & \dots & \bar{0} \\ \bar{0} & \overline{Id} & \dots & \bar{0} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \bar{0} & \bar{0} & \dots & \overline{Id} \end{pmatrix}$$

avec \overline{Id} est la matrice identité :

$$\overline{Id} = \begin{pmatrix} 1 & & 0 \\ & \ddots & \\ 0 & & 1 \end{pmatrix}$$

et $\bar{0}$ désigne la matrice nulle ;

- $[A_2]$ désigne la matrice de taille $[M \times (N - 1)] \times [M \times (N - 1)]$ avec M le nombre d'éléments dans le domaine discrétisé avec la méthode VDF et $(N-1)$ le nombre

d'équations de CH à résoudre (système N-aire). Ces matrices sont définies par blocs avec

$$[A_2] = -\Delta t \theta \begin{pmatrix} \overline{\overline{\nabla \cdot (M_{1,1} \nabla)}} & \overline{\overline{\nabla \cdot (M_{1,2} \nabla)}} & \cdots & \overline{\overline{\nabla \cdot (M_{1,N-1} \nabla)}} \\ \overline{\overline{\nabla \cdot (M_{2,1} \nabla)}} & \overline{\overline{\nabla \cdot (M_{2,2} \nabla)}} & \cdots & \overline{\overline{\nabla \cdot (M_{2,N-1} \nabla)}} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \overline{\overline{\nabla \cdot (M_{N-1,1} \nabla)}} & \overline{\overline{\nabla \cdot (M_{N-1,2} \nabla)}} & \cdots & \overline{\overline{\nabla \cdot (M_{N-1,N-1} \nabla)}} \end{pmatrix}$$

où $\overline{\overline{\nabla \cdot (M_{i,j} \nabla)}}$ est une matrice de taille $(2 \times \dim + 1) \times M - nb_bords$ telle que \dim la dimension (en 2D, $\dim=2$), M le nombre total d'éléments dans le domaine et nb_bords le nombre d'éléments sur les bords. Pour un schéma VDF en 2D, chaque ligne de cette matrice compte au plus 5 valeurs non nulles (la maille principale et ses 4 voisines).

- $[A_2]$ désigne la matrice de taille $[M \times (N - 1)] \times [M \times (N - 1)]$ avec M le nombre d'éléments dans le domaine discrétisé avec la méthode VDF et $(N-1)$ le nombre d'équations de CH à résoudre (système N-aire). Ces matrices sont définies par blocs avec

$$[A_3] = \begin{pmatrix} \overline{\overline{\nabla \cdot (\kappa_{1,1} \nabla)}} & \overline{\overline{\nabla \cdot (\kappa_{1,2} \nabla)}} & \cdots & \overline{\overline{\nabla \cdot (\kappa_{1,N-1} \nabla)}} \\ \overline{\overline{\nabla \cdot (\kappa_{2,1} \nabla)}} & \overline{\overline{\nabla \cdot (\kappa_{2,2} \nabla)}} & \cdots & \overline{\overline{\nabla \cdot (\kappa_{2,N-1} \nabla)}} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \overline{\overline{\nabla \cdot (\kappa_{N-1,1} \nabla)}} & \overline{\overline{\nabla \cdot (\kappa_{N-1,2} \nabla)}} & \cdots & \overline{\overline{\nabla \cdot (\kappa_{N-1,N-1} \nabla)}} \end{pmatrix}$$

où $\overline{\overline{\nabla \cdot (\kappa_{i,j} \nabla)}}$ est une matrice de taille $(2 \times \dim + 1) \times M - nb_bords$ comme la matrice précédente telle que \dim la dimension (en 2D, $\dim=2$), M le nombre total d'éléments dans le domaine et nb_bords le nombre d'éléments sur les bords. Pour un schéma VDF en 2D, chaque ligne de cette matrice compte au plus 5 valeurs non nulles (la maille principale et ses 4 voisines).

- les vecteurs $[\phi^{n**}]$, $[\tilde{\mu}^{n**}]$, $[\phi^n]$ et $[NL^{n**}]$ sont définis comme

$$[\xi] = \begin{bmatrix} \overline{\xi_1} \\ \overline{\xi_2} \\ \vdots \\ \overline{\xi_{N-1}} \end{bmatrix} \quad (E.5)$$

avec $\forall i \in [1, N - 1]$, on a

$$\bar{\xi}_i = \begin{bmatrix} \xi_1 \\ \xi_2 \\ \vdots \\ \xi_M \end{bmatrix} \quad (\text{E.6})$$

À ce stade, toutes les matrices constituant le système $\bar{A} \bar{X} = \bar{b}[\bar{X}]$ sont définies. Ce système peut être écrit sous la forme d'une fonction nulle $\bar{H}[\bar{X}] = 0$ telle que

$$\bar{H}[\bar{X}] = \bar{b}[\bar{X}] - \bar{A} \bar{X} = 0 \quad (\text{E.7})$$

En considérant le développement limité d'ordre 1 autour de \bar{X}^0 , on a

$$\bar{H}[\bar{X}] \simeq \bar{H}[\bar{X}^0] + \bar{J}[\bar{X}] (\bar{X} - \bar{X}^0) = 0 \quad (\text{E.8})$$

avec $\bar{J}[\bar{X}]$ la matrice jacobienne associée à $\bar{H}[\bar{X}]$.

Par itérations successives d'une méthode de Newton, en considérant que \bar{X}^0 est l'estimation initiale, on obtient

$$X^{\bar{k}+1} = \bar{X}^{\bar{k}} - \bar{J}^{-1}[\bar{X}^{\bar{k}}] \bar{H}[\bar{X}^{\bar{k}}] \quad (\text{E.9})$$

qu'on peut également écrire

$$\bar{J}[\bar{X}^{\bar{k}}] \bar{\delta X} = -\bar{H}[\bar{X}^{\bar{k}}] \quad (\text{E.10})$$

avec $\bar{\delta X} = X^{\bar{k}+1} - \bar{X}^{\bar{k}}$.

Le principe de la méthode JFNK est d'approximer le produit matrice-vecteur $\bar{J}\bar{V}$ en utilisant l'approximation par différences finies de telle sorte que

$$\bar{J}[\bar{X}]\bar{V} \simeq \frac{\bar{H}[\bar{X} + \epsilon\bar{V}] - \bar{H}[\bar{X}]}{\epsilon} \quad (\text{E.11})$$

où \bar{V} désigne un vecteur quelconque de même taille que \bar{X} utilisée pour résoudre le système linéaire donnée par l'Eq. E.10 et ϵ fixé à 10^{-5} dans `Phase_field` est un paramètre scalaire associé au pas de la différence finie.

Dans cette approche par différences finies, le calcul du produit entre la matrice jacobienne et un vecteur ne nécessite pas la construction explicite de cette matrice (l'erreur

commise est en $O(\epsilon)$). Ainsi, dans une méthode `JFNK`, la solution de l'Eq. E.10 à chaque itération est obtenue de manière avantageuse par une méthode itérative de Krylov qui ne nécessite pas la construction explicite de la matrice à inverser. Cette famille de méthodes consiste à chercher la solution du problème linéaire dans l'espace de Krylov associé à la matrice à inverser. Dans `Phase_field`, c'est la méthode `GMRES` minimisant le résidu $r = \| -\bar{H}[\bar{X}] - \bar{J} \delta \bar{X} \|_2$ qui est utilisée. Plus précisément, à chaque itération k , \bar{X}^{k+1} est obtenu à partir de la solution inexacte de l'Eq. E.10 après m itérations de `GMRES`. Le détail de la méthode `GMRES` n'est pas donné ici mais on peut se référer à [150] pour plus de détails.

Cette section contient toutes les communications scientifiques effectuées dans le cadre de cette thèse.

F.1 Présentations orales

1. **M.A. Rasolofomanana**, R. Le Tellier and H. Henry “Diffuse-interface modelling of multicomponent diffusion and phase separation of U-O-Zr ternary system”, Groupement De Recherche - Transferts et Interfaces (GDR-TransInter), Aussois, France, June 2022
2. **M.A. Rasolofomanana**, R. Le Tellier and H. Henry, “Two-dimensional Numerical Simulation of Rayleigh-Taylor Instabilities in Immiscible Fluids Using the Phase-Field Model of `TriocFD` code”, International Conference NUTHOS-13 (Nuclear Reactor Thermal-Hydraulics, Operation and Safety), Hsinchu, Taiwan (virtual), September 2022
3. **M.A. Rasolofomanana**, R. Le Tellier, H. Henry, “Numerical Simulation of the Dynamics of a Multicomponent Droplet in Water using the Phase-Field Model of `TriocFD` code”, International Conference on Multiphase Flow (ICMF-11), Kobe, Japan, April 2023

F.2 Conference Proceedings

1. **M.A. Rasolofomanana**, R. Le Tellier and H. Henry, “Two-dimensional Numerical Simulation of Rayleigh-Taylor Instabilities in Immiscible Fluids Using the Phase-Field Model of TrioCFD code”, International Conference NUTHOS-13 (Nuclear Reactor Thermal-Hydraulics, Operation and Safety), Taiwan, September 2022 (Full paper) [[168](#)]
2. **M.A. Rasolofomanana**, R. Le Tellier and H. Henry, “Numerical Simulation of the Dynamics of a Multicomponent Droplet in Water using the Phase-Field Model of TrioCFD code”, International Conference on Multiphase Flow (ICMF-11), Kobe Japan, April 2023 (Extended Abstract)

F.3 Publications dans un journal à comité de lecture

1. **M.A. Rasolofomanana**, C. Cardon, M. Plapp, T. Philippe, H. Henry and R. Le Tellier, “Diffuse-interface modelling of multicomponent diffusion and phase separation in the U-O-Zr ternary system”, *Computational Materials Science*, 214, November 2022, ISSN 09270256. doi :10.1016/j.commatsci.2022.111650. [[11](#)]

BIBLIOGRAPHIE

- [1] CEA. Le fonctionnement d'un réacteur nucléaire électrogène. <https://www.cea.fr/comprendre/Pages/energies/nucleaire/essentiel-sur-fonctionnement-reacteur-nucleaire-electrogene.aspx>, January 2015.
- [2] Bal Raj Sehgal. In-Vessel Core Degradation. In *Nuclear Safety in Light Water Reactors*, pages 89–183. Elsevier, 2012. ISBN 978-0-12-388446-6. doi : 10.1016/B978-0-12-388446-6.00002-2.
- [3] C. Villiermaux. *Modélisation Physique et Numérique de La Convection Naturelle Dans Une Couche de Fluide de Faible Rapport d'Aspect Dans Le Cadre Des Etudes d'Accidents Graves de Réacteurs à Eau Sous Pression*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Grenoble, 1999.
- [4] D. F. Tsurikov, V. F. Strizhov, S. V. Bechta, V. N. Zagriazkin, and N. P. Kiselev. Main Results of MASCA1 and 2 Projects. Technical report, RRC Kurchatov Institute, 2007.
- [5] S Mirjalili, S S Jain, and M S Dodd. Interface-capturing methods for two-phase flows : An overview and recent developments. *Center for Turbulence Research Annual Research Briefs*, pages 117–135, 2017.
- [6] Pierre-Yves Chevalier, Evelyne Fischer, and Bertrand Cheynet. Progress in the thermodynamic modelling of the O-U-Zr ternary system. *Calphad*, 28(1) :15–40, 2004.

- [7] R. Zanella, G. Tegze, R. Le Tellier, and H. Henry. Two- and three-dimensional simulations of Rayleigh–Taylor instabilities using a coupled Cahn–Hilliard/Navier–Stokes model. *Physics of Fluids*, 32(124115), 2020. ISSN 1070-6631, 1089-7666. doi : 10.1063/5.0031179.
- [8] Abhijit Rao, Rupesh K. Reddy, Kalliat T. Valsaraj, Krishnaswamy Nandakumar, Shashank Pandey, and Chunliang Wu. Influence of unsteady mass transfer on dynamics of rising and sinking droplet in water : Experimental and CFD study. *AIChE Journal*, 61(1) :342–354, January 2015. ISSN 00011541. doi : 10.1002/aic.14612.
- [9] R. Clift, Grace, J.R., and Weber, M. Bubbles, Drops and Particles. *Academic Press*, 1978.
- [10] Clément Plumecocq. Vers la validation d’un modèle CFD multiphasique couplant transfert de masse interphase et hydrodynamique. Rapport de stage de fin d’études, CEA Cadarache, August 2023.
- [11] M.A. Rasolofomanana, C. Cardon, M. Plapp, T. Philippe, H. Henry, and R. Le Tellier. Diffuse-interface modelling of multicomponent diffusion and phase separation in the U-O-Zr ternary system. *Computational Materials Science*, 214, November 2022. ISSN 09270256. doi : 10.1016/j.commatsci.2022.111650.
- [12] T.G. Theofanous, C. Liu, S. Additon, S. Angelini, O. Kymäläinen, and T. Salmassi. In-vessel coolability and retention of a core melt. *Nuclear Engineering and Design*, 169(1-3) :1–48, June 1997. ISSN 00295493. doi : 10.1016/S0029-5493(97)00009-5.
- [13] B. Cheynet, P. Chevalier, and E. Fischer. Thermosuite. *Calphad*, 26(2) :167–174, 2002.
- [14] IAEA. Types de réacteurs nucléaires. <https://www.iaea.org/fr/themes/energie-nucleaire>, July 2021.
- [15] RTE. Bilan électrique 2020. *RTE- Direction innovation et données*, January 2021.
- [16] Bernard Bigot. ITER : A unique international collaboration to harness the power of the stars. *Comptes Rendus Physique*, 18(7-8) :367–371, September 2017. ISSN 16310705. doi : 10.1016/j.crhy.2017.09.002.

-
- [17] B.R. Sehgal, P. Piluso, K. Trambauer, B. Adroguer, F Fichot, C. Müller, L. Meyer, and C. Journeau. Nuclear Reactor Severe Accident Phenomenology, 2008.
- [18] Yang-Hyun Koo, Yong-Sik Yang, and Kun-Woo Song. Radioactivity release from the Fukushima accident and its consequences : A review. *Progress in Nuclear Energy*, 74 :61–70, July 2014. ISSN 01491970. doi : 10.1016/j.pnucene.2014.02.013.
- [19] CEA. TrioCFD. <https://github.com/cea-trust-platform/TrioCFD-code>.
- [20] Pierre-Emmanuel Angeli, Ulrich Bieder, and Gauthier Fauchet. Overview of the TRIOCFD Code. In *NURETH-16*, Chicago, USA, 2015.
- [21] IAEA. Safety of Nuclear Power Plants : Commissioning and Operation. IAEA SAFETY STANDARDS SERIES No. SSR-2/2 (Rev. 1), International Atomic Energy Agency, Vienne, 2016.
- [22] Enzo De Sanctis, Stefano Monti, and Marco Ripani. *Energy from Nuclear Fission : An Introduction*. Undergraduate Lecture Notes in Physics. Springer International Publishing, Cham, 2016. ISBN 978-3-319-30649-0 978-3-319-30651-3. doi : 10.1007/978-3-319-30651-3.
- [23] S. Prêtre. L'accident de Tchernobyl : un aperçu de ses causes et l'évaluation de ses effets en Suisse. *Radioprotection*, 23(2) :175–191, April 1988. ISSN 0033-8451, 1769-700X. doi : 10.1051/radiopro/19882302175.
- [24] Georg Steinhauser, Alexander Brandl, and Thomas E. Johnson. Comparison of the Chernobyl and Fukushima nuclear accidents : A review of the environmental impacts. *Science of The Total Environment*, 470–471 :800–817, February 2014. ISSN 00489697. doi : 10.1016/j.scitotenv.2013.10.029.
- [25] Didier Jacquemain, Bernard Clément, Ahmed Bentaïb, Hervé Bonneville, and Gérard Cénérimo. *Les accidents de fusion du coeur des réacteurs nucléaires de puissance : Etat des connaissances*. EDP Sciences, 2013. ISBN 978-2-7598-1846-4. doi : 10.1051/978-2-7598-1846-4.
- [26] IAEA. In-vessel Melt Retention and Ex-vessel Corium Cooling. Summary of a Technical Meeting IAEA-TECDOC-1906, International Atomic Energy Agency, Vienne, 2020.

- [27] Georges Berthoud. Vapor Explosions. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 32(1) : 573–611, 2000.
- [28] Young Su Na, Seong-Ho Hong, Jin Ho Song, and Seong-Wan Hong. Fuel–Coolant Interaction Visualization Test for In-Vessel Corium Retention External Reactor Vessel Cooling (IVR-ERVC) Condition. *Nuclear Engineering and Technology*, 48(6) : 1330–1337, December 2016. ISSN 17385733. doi : 10.1016/j.net.2016.06.010.
- [29] Takehiko Saito, Junichi Yamashita, Yoshiaki Oka, and Yuki Ishiwatari, editors. *Advances in Light Water Reactor Technologies*. Springer New York, New York, NY, 2011. ISBN 978-1-4419-7100-5 978-1-4419-7101-2. doi : 10.1007/978-1-4419-7101-2.
- [30] Vladimir Benzianovich Khabensky, Vladimir Semenovitch Granovsky, Sevostian Victorovich Bechta, and Victor Vladimirovich Gusarov. Severe accident management concept of the VVER-1000 and the Justification of Corium Retention in a Crucible-type Core Catcher. *Nuclear Engineering and Technology*, 41(5) :561–574, June 2009. doi : 10.5516/NET.2009.41.5.561.
- [31] Ji-Hun Kim, Sejin Kwon, Jinyoung Choi, and Yong Jin Cho. Concrete ablation analysis for molten corium-concrete interaction mitigation strategy. *Annals of Nuclear Energy*, 132 :615–627, October 2019. ISSN 03064549. doi : 10.1016/j.anucene.2019.06.057.
- [32] Ahmed Bentaib, Nicolas Meynet, and Alexandre Bleyer. Overview on hydrogen risk research and development activities : Methodology and open issues. *Nuclear Engineering and Technology*, 47(1) :26–32, February 2015. ISSN 17385733. doi : 10.1016/j.net.2014.12.001.
- [33] O. Kymäläinen, H. Tuomisto, and T.G. Theofanous. In-vessel retention of corium at the Loviisa plant. *Nuclear Engineering and Design*, 169(1-3) :109–130, June 1997. ISSN 00295493. doi : 10.1016/S0029-5493(96)01280-0.
- [34] IRSN. Eléments de réflexion sur la stratégie de rétention d’un corium en cuve de réacteur, July 2015.
- [35] Weimin Ma, Yidan Yuan, and Bal Raj Sehgal. In-Vessel Melt Retention of Pressurized Water Reactors : Historical Review and Future Research Needs. *Engineering*, 2(1) : 103–111, March 2016. ISSN 20958099. doi : 10.1016/J.ENG.2016.01.019.

-
- [36] L. Carénini, F. Fichot, N. Bakouta, A. Filippov, R. Le Tellier, L. Viot, I. Melnikov, and P. Pandazis. Main outcomes from the IVR code benchmark performed in the European IVMR project. *Annals of Nuclear Energy*, 146 :107612, October 2020. ISSN 03064549. doi : 10.1016/j.anucene.2020.107612.
- [37] F. Fichot and L. Carénini. Some consequences of material interactions for in-vessel melt retention. In *Proc of International Congress on Advances in Nuclear Power Plants. ICAPP 2015*, Nice, France, 2015.
- [38] F. Fichot, L. Carénini, N. Bakouta, H. Esmaili, L. Humphries, T. Laato, R. Le Tellier, L. Saas, I. Melnikov, P. Pandazis, S. Weber, R.J. Park, A. Filippov, and V. Strizhov. Elaboration of a Phenomena Identification Ranking Table (PIRT) for the modelling of In-Vessel Retention. *Annals of Nuclear Energy*, 146 :107617, 2020. ISSN 03064549. doi : 10.1016/j.anucene.2020.107617.
- [39] Frédéric Gauthier. *Convection Turbulente Dans Une Cellule de Rayleigh-Bénard Cryogénique : De Nouveaux Éléments En Faveur Du Régime Ultime de Kraichnan*. PhD thesis, Université Joseph Fourier Grenoble I, 2008.
- [40] Krishna Podila, Qi Chen, Yanfei Rao, Justin Spencer, John Buell, Andrew Morreale, Robert David, and Peter Pfeiffer. CFD simulation of corium flow through an end fitting of a pressurised heavy water reactor. *Nuclear Engineering and Design*, 369 : 110850, December 2020. ISSN 00295493. doi : 10.1016/j.nucengdes.2020.110850.
- [41] Chunhui Dang, Mathieu Peybernes, Romain Le Tellier, and Laurent Saas. Numerical simulations of the Rayleigh-Bénard-Marangoni convections in a thin metallic layer. *Annals of Nuclear Energy*, 150 :107848, January 2021. ISSN 03064549. doi : 10.1016/j.anucene.2020.107848.
- [42] Luteng Zhang, Yukun Zhou, Yapei Zhang, Wenxi Tian, Suizheng Qiu, and Guanghui Su. Natural convection heat transfer in corium pools : A review work of experimental studies. *Progress in Nuclear Energy*, 79 :167–181, 2015. ISSN 0149-1970.
- [43] O. Kymäläinen, H. Tuomisto, O. Hongisto, and T.G. Theofanous. Heat flux distribution from a volumetrically heated pool with high Rayleigh number. *Nuclear Engineering and Design*, 149(1-3) :401–408, September 1994. ISSN 00295493. doi : 10.1016/0029-5493(94)90305-0.

- [44] Jaehoon Jung, Sang Mo An, Kwang Soon Ha, and Hwan Yeol Kim. Evaluation of heat-flux distribution at the inner and outer reactor vessel walls under the in-vessel retention through external reactor vessel cooling condition. *Nuclear Engineering and Technology*, 47(1) :66–73, February 2015. ISSN 17385733. doi : 10.1016/j.net.2014.11.005.
- [45] M. Peybernes, L. Saas, R. Le Tellier, and C. Dang. Thermallyhydraulic DNS of a thin metallic layer : Application to the evaluation of nuclear reactor severe accident mitigation strategy. In *Proc. of the 9th European Review Meeting on Severe Accident Research ERMSAR2019*, Prague, Czech Republic, 2019.
- [46] Yue Jin, Wei Xu, Xiaojing Liu, and Xu Cheng. In- and ex-vessel coupled analysis of IVR-ERVC phenomenon for large scale PWR. *Annals of Nuclear Energy*, 80 : 322–337, June 2015. ISSN 03064549. doi : 10.1016/j.anucene.2015.01.041.
- [47] Bal Raj Sehgal, editor. *Nuclear Safety in Light Water Reactors : Severe Accident Phenomenology*. Elsevier/Academic Press, Amsterdam ; Boston, 1st ed edition, 2012. ISBN 978-0-12-388446-6.
- [48] R. Park, K. Kang, S. Hong, S. Kim, and J. Song. Corium Behavior in the Lower Plenum of the reactor Vessel under IVR-ERVC Condition : Technical Issues. *Nuclear Engineering and Design*, 44 :237–248, 2012.
- [49] C. Cardon, R. Le Tellier, and M. Plapp. Modelling of liquid phase segregation in the Uranium–Oxygen binary system. *Calphad*, 52 :47–56, 2016. ISSN 03645916. doi : 10.1016/j.calphad.2015.10.005.
- [50] M Salay and F Fichot. Modelling of corium stratification in the lower plenum of a reactor vessel. In *OECD/CSNI Workshop MASCA Seminar*, Aix en Provence, 2004.
- [51] R. Zanella, R. Le Tellier, M. Plapp, G. Tegze, and H. Henry. Three-dimensional numerical simulation of droplet formation by Rayleigh–Taylor instability in multiphase corium. *Nuclear Engineering and Design*, 379 :111177, August 2021. ISSN 00295493. doi : 10.1016/j.nucengdes.2021.111177.
- [52] G. Ratel, F. Deffort, K. Froment, B. Tourniaire, and J. M. Seiler. Considerations on mass transfer kinetics for layer inversion and layer oxidation : From MASCA program to the reactor situation. In *Proc. of MASCA-2 Seminar*, Cadarache, France, 2007.

-
- [53] L. Carénini, F. Fichot, and N. Seignour. Modelling issues related to molten pool behaviour in case of In-Vessel Retention strategy. *Annals of Nuclear Energy*, 118 : 363–374, 2018. ISSN 0306-4549.
- [54] R. Le Tellier, L. Saas, and S. Bajard. Transient stratification modelling of a corium pool in a LWR vessel lower head. *Nuclear Engineering and Design*, 287 :68–77, June 2015. ISSN 00295493. doi : 10.1016/j.nucengdes.2015.02.009.
- [55] D. Tisseur, M. Cavaro, F. Rey, K. Paumel, N. Chikhi, J. Delacroix, P. Fouquart, R. Le Tellier, and V. Bouyer. Study of online measurements techniques of metallic phases spatial distribution into a corium pool. In *Proc. of Int. Conf. on Advancements in Nuclear Instrumentation Measurement Methods and Their Applications. ANIMMA 2019*, Portoróż, Slovenia, 2019.
- [56] R. Le Tellier. A lumped parameter model of continuous/dispersed phases mass transfer for simulating in-vessel corium stratification transients. *Annals of Nuclear Energy*, 181 :109539, February 2023. ISSN 03064549. doi : 10.1016/j.anucene.2022.109539.
- [57] Clément Cardon. *Modélisation de la diffusion multi-composants dans un bain de corium diphasique oxyde-métal par une méthode d’interface diffuse*. Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique - Université Paris Saclay, November 2016.
- [58] John W Cahn and John E Hilliard. Free Energy of a Nonuniform System. I. Interfacial Free Energy. *The Journal of Chemical Physics*, 28(2) :258–267, February 1958. doi : 10.1063/1.1744102.
- [59] R. Le Tellier, L. Saas, and F. Payot. Phenomenological analyses of corium propagation in LWRs : The PROCOR software platform. In *Proc. of the 7th European Review Meeting on Severe Accident Research ERMSAR-2015*, Marseille, France, 2015.
- [60] Inanc Senocak and Wei Shyy. Interfacial dynamics-based modelling of turbulent cavitating flows, Part-1 : Model development and steady-state computations. *International Journal for Numerical Methods in Fluids*, 44(9) :975–995, March 2004. ISSN 0271-2091, 1097-0363. doi : 10.1002/fld.692.
- [61] Salih Ozen Unverdi and Grétar Tryggvason. A Front-Tracking Method for Viscous, Incompressible, Multi-fluid Flows. *Journal of Computational Physics*, 100 :25–37, 1992.

- [62] Hiroshi Terashima and Grétar Tryggvason. A front-tracking/ghost-fluid method for fluid interfaces in compressible flows. *Journal of Computational Physics*, 228(11) : 4012–4037, June 2009. ISSN 00219991. doi : 10.1016/j.jcp.2009.02.023.
- [63] C.W Hirt and B.D Nichols. Volume of fluid (VOF) method for the dynamics of free boundaries. *Journal of Computational Physics*, 39(1) :201–225, January 1981. ISSN 00219991. doi : 10.1016/0021-9991(81)90145-5.
- [64] Stanley Osher and James A Sethian. Fronts propagating with curvature-dependent speed : Algorithms based on Hamilton-Jacobi formulations. *Journal of Computational Physics*, 79(1) :12–49, November 1988. ISSN 00219991. doi : 10.1016/0021-9991(88)90002-2.
- [65] W. F. Noh and Paul Woodward. SLIC (simple line interface calculation). In Adriaan I. van de Vooren and Pieter J. Zandbergen, editors, *Proceedings of the Fifth International Conference on Numerical Methods in Fluid Dynamics June 28 – July 2, 1976 Twente University, Enschede*, pages 330–340, Berlin, Heidelberg, 1976. Springer Berlin Heidelberg. ISBN 978-3-540-37548-7.
- [66] David L. Youngs. Time-dependent multi-material flow with large fluid distortion. *Numerical Methods for Fluid Dynamics*, 1982.
- [67] Jean Nahed and Joseph Dgheim. Estimation curvature in PLIC-VOF method for interface advection. *Heat and Mass Transfer*, 56(3) :773–787, March 2020. ISSN 0947-7411, 1432-1181. doi : 10.1007/s00231-019-02737-4.
- [68] Vinay R. Gopala and Berend G.M. van Wachem. Volume of fluid methods for immiscible-fluid and free-surface flows. *Chemical Engineering Journal*, 141(1-3) : 204–221, July 2008. ISSN 13858947. doi : 10.1016/j.cej.2007.12.035.
- [69] Mark Sussman, Peter Smereka, and Stanley Osher. A level set approach for computing solutions to incompressible two-phase flow. *Journal of Computational Physics*, 114 : 146–159, 1994.
- [70] M. Herrmann. A balanced force refined level set grid method for two-phase flows on unstructured flow solver grids. *Journal of Computational Physics*, 227(4) :2674–2706, February 2008. ISSN 00219991. doi : 10.1016/j.jcp.2007.11.002.

-
- [71] Jianfeng Wang, Ping Lu, Zhihui Wang, Chao Yang, and Zai-Sha Mao. Numerical simulation of unsteady mass transfer by the level set method. *Chemical Engineering Science*, 63(12) :3141–3151, June 2008. ISSN 00092509. doi : 10.1016/j.ces.2008.03.018.
- [72] L. Landau. On the theory of phase transitions. *Zh. Eksp. Teor. Fiz*, 7 :19–32, 1937.
- [73] Gilles Demange, Helena Zapolsky, Renaud Patte, and Marc Brunel. A phase field model for snow crystal growth in three dimensions. *npj Computational Materials*, 3 (1) :15, April 2017. ISSN 2057-3960. doi : 10.1038/s41524-017-0015-1.
- [74] B Kaoui, M Nouredine, R Nassif, and Y Boughaleb. Phase-field modelling of dendritic growth behaviour towards. *M.J Condensed Matter*, 6(1) :109–112, 2005.
- [75] Guillermo Lorenzo, Michael A. Scott, Kevin Tew, Thomas J. R. Hughes, Yongjie Jessica Zhang, Lei Liu, Guillermo Vilanova, and Hector Gomez. Tissue-scale, personalized modeling and simulation of prostate cancer growth. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 113(48), November 2016. ISSN 0027-8424, 1091-6490. doi : 10.1073/pnas.1615791113.
- [76] Yibao Li, Qing Xia, Chaeyoung Lee, Sangkwon Kim, and Junseok Kim. A robust and efficient fingerprint image restoration method based on a phase-field model. *Pattern Recognition*, 123 :108405, March 2022. ISSN 00313203. doi : 10.1016/j.patcog.2021.108405.
- [77] D M Anderson. Diffuse-interface methods in fluid mechanics. *NISTIR 6018*, May 1997.
- [78] Alain Cartalade, Amina Younsi, Élise Régnier, and Sophie Schuller. Simulations of Phase-field Models for Crystal Growth and Phase Separation. *Procedia Materials Science*, 7 :72–78, 2014. ISSN 22118128. doi : 10.1016/j.mspro.2014.10.010.
- [79] Franck Pigeonneau and Pierre Saramito. Discontinuous Galerkin finite element method applied to the coupled Navier-Stokes/Cahn-Hilliard equations. 2016.
- [80] Jiwon Yeom, Tiberiu Stan, Seungbum Hong, and Peter W. Voorhees. Segmentation of experimental datasets via convolutional neural networks trained on phase field simulations. *Acta Materialia*, 214 :116990, August 2021. ISSN 13596454. doi : 10.1016/j.actamat.2021.116990.

- [81] D. M. Anderson, G. B. McFadden, and A. A. Wheeler. A Phase-Field Model of Solidification with Convection. *Physica D*, 135 :175–194, 2000.
- [82] R. Folch and M. Plapp. Quantitative phase-field modeling of two-phase growth. *Physical Review E*, 72(1) :011602, July 2005. ISSN 1539-3755, 1550-2376. doi : 10.1103/PhysRevE.72.011602.
- [83] Gyula I. Tóth, Mojdeh Zarifi, and Bjørn Kvamme. Phase-field theory of multi-component incompressible Cahn-Hilliard liquids. *Physical Review E*, 93(1) :013126, January 2016. ISSN 2470-0045, 2470-0053. doi : 10.1103/PhysRevE.93.013126.
- [84] J S Rowlinson. Translation of J. D. van der Waals' "The Thermodynamic Theory of Capillarity Under the Hypothesis of a Continuous Variation of Density". *Journal of Statistical Physics*, 20(2) :197–200, 1979.
- [85] D. Schwen, C. Jiang, and L.K. Aagesen. A sublattice phase-field model for direct CALPHAD database coupling. *Computational Materials Science*, 195 :110466, July 2021. ISSN 09270256. doi : 10.1016/j.commatsci.2021.110466.
- [86] Jacob Hirschhorn, Michael Tonks, Assel Aitkaliyeva, and Cynthia Adkins. Development and verification of a phase-field model for the equilibrium thermodynamics of U-Pu-Zr. *Annals of Nuclear Energy*, 124 :490–502, February 2019. ISSN 03064549. doi : 10.1016/j.anucene.2018.10.029.
- [87] Knut Erik Teigen, Xiangrong Li, John Lowengrub, Fan Wang, and Axel Voigt. A diffuse interface approach for modeling transport, diffusion and adsorption/desorption of material quantities on a deformable interface. page 43, 2011.
- [88] Nikolas Provatas and Ken Elder. *Phase-Field Methods in Materials Science and Engineering*. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim, Germany, 2010. ISBN 978-3-527-63152-0 978-3-527-40747-7. doi : 10.1002/9783527631520.
- [89] Werner Verdier. *Phase-field modelling and simulations of phase separation in the two-phase nuclear glass na2o-sio2-moo3*. PhD thesis, Ecole Polytechnique - IPP, December 2022.
- [90] Naoki Takada, Junichi Matsumoto, and Sohei Matsumoto. A Diffuse-Interface Tracking Method for the Numerical Simulation of Motions of a Two-Phase Fluid

-
- on a Solid Surface. *The Journal of Computational Multiphase Flows*, 6(3) :283–298, September 2014. ISSN 1757-482X, 1757-4838. doi : 10.1260/1757-482X.6.3.283.
- [91] David Jacqmin. Calculation of Two-Phase Navier–Stokes Flows Using Phase-Field Modeling. *Journal of Computational Physics*, 155(1) :96–127, October 1999. ISSN 00219991. doi : 10.1006/jcph.1999.6332.
- [92] F. Boyer, C. Lapuerta, S. Minjeaud, B. Piar, and M. Quintard. Cahn–Hilliard/Navier–Stokes Model for the Simulation of Three-Phase Flows. *Transport in Porous Media*, 82(3) :463–483, April 2010. ISSN 0169-3913, 1573-1634. doi : 10.1007/s11242-009-9408-z.
- [93] Ben Tian, Bing Zhang, Junkai Deng, Dong Wang, Houjun Gong, Yang Li, Kerong Guo, Sen Yang, and Xiaoqin Ke. Morphological evolution during liquid-liquid phase separation governed by composition change pathways. *Journal of Applied Physics*, 132(6) :064702, August 2022. ISSN 0021-8979, 1089-7550. doi : 10.1063/5.0089516.
- [94] A.F. Devonshire. Theory of barium titanate. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 40(309) :1040–1063, 1949. doi : 10.1080/14786444908561372.
- [95] Dongsun Lee, Joo-Youl Huh, Darae Jeong, Jaemin Shin, Ana Yun, and Junseok Kim. Physical, mathematical, and numerical derivations of the Cahn–Hilliard equation. *Computational Materials Science*, 81 :216–225, January 2014. ISSN 09270256. doi : 10.1016/j.commatsci.2013.08.027.
- [96] P. C. Hohenberg and B. I. Halperin. Theory of dynamic critical phenomena. *Reviews of Modern Physics*, 49(3) :435–479, July 1977. ISSN 0034-6861. doi : 10.1103/RevModPhys.49.435.
- [97] Samuel M. Allen and John W. Cahn. A microscopic theory for antiphase boundary motion and its application to antiphase domain coarsening. *Acta Metallurgica*, 27 (6) :1085–1095, June 1979. ISSN 00016160. doi : 10.1016/0001-6160(79)90196-2.
- [98] Yukitaka Fukao, Yoshihisa Morita, and Hirokazu Ninomiya. Some entire solutions of the Allen-Cahn equation. *Taiwanese Journal of Mathematics*, 8(1), March 2004. ISSN 1027-5487. doi : 10.11650/twjrm/1500558454.

- [99] Long-Qing Chen. Phase-Field Models for Microstructure Evolution. *Annual Review of Materials Research*, 32(1) :113–140, August 2002. ISSN 1531-7331, 1545-4118. doi : 10.1146/annurev.matsci.32.112001.132041.
- [100] C. Lapuerta. *Echanges de Masse et de Chaleur Entre Les Deux Phases Liquides Stratifiées Dans Un Écoulement à Bulles*. PhD thesis, Université Aix-Marseille I - Provence, 2006.
- [101] J. Kim. Phase-Field Models for Multi-Component Fluid Flows. *Communications in Computational Physics*, 12(3), 2012.
- [102] Jacob Rubinstein and Peter Sternberg. Nonlocal reaction—diffusion equations and nucleation. *IMA Journal of Applied Mathematics*, 48(3) :249–264, 1992. ISSN 0272-4960, 1464-3634. doi : 10.1093/imamat/48.3.249.
- [103] Junseok Kim, Seunggyu Lee, and Yongho Choi. A conservative Allen–Cahn equation with a space–time dependent Lagrange multiplier. *International Journal of Engineering Science*, 84 :11–17, November 2014. ISSN 00207225. doi : 10.1016/j.ijengsci.2014.06.004.
- [104] Pao-Hsiung Chiu and Yan-Ting Lin. A conservative phase field method for solving incompressible two-phase flows. *Journal of Computational Physics*, 230(1) :185–204, January 2011. ISSN 00219991. doi : 10.1016/j.jcp.2010.09.021.
- [105] R. Folch, J. Casademunt, A. Hernández-Machado, and L. Ramírez-Piscina. Phase-field model for Hele-Shaw flows with arbitrary viscosity contrast. II. Numerical study. *Physical Review E*, 60(2) :1734–1740, August 1999. ISSN 1063-651X, 1095-3787. doi : 10.1103/PhysRevE.60.1734.
- [106] Y. Sun and C. Beckermann. Sharp interface tracking using the phase-field equation. *Journal of Computational Physics*, 220(2) :626–653, January 2007. ISSN 00219991. doi : 10.1016/j.jcp.2006.05.025.
- [107] Vaishnvi Tiwari. *A Consistent Approach for Coupling Lumped-Parameter and Phase-Field Models for in-Vessel Corium to Thermodynamic Databases*. PhD thesis, Ecole Polytechnique - Université Paris Saclay, November 2019.

-
- [108] Roberto Mauri and International Centre for Mechanical Sciences, editors. *Multiphase Microfluidics : The Diffuse Interface Model*. Number no. 538 in CISM Courses and Lectures. Springer Verlag, Wien ; New York, 2012. ISBN 978-3-7091-1226-7.
- [109] Eric A. Lass, William C. Johnson, and Gary J. Shiflet. Correlation between CALPHAD data and the Cahn-Hilliard gradient energy coefficient and exploration into its composition dependence. *Calphad*, 30(1) :42–52, 2006. ISSN 03645916.
- [110] Hao Wu. A Review on the Cahn-Hilliard Equation : Classical Results and Recent Advances in Dynamic Boundary Conditions. *Electronic Research Archive*, 30(8) : 2788–2832, 2022. ISSN 2688-1594. doi : 10.3934/era.2022143.
- [111] Nick. O. Jaensson, Christos Mitrias, Martien A. Hulsen, and Patrick D. Anderson. Shear-Induced Migration of Rigid Particles near an Interface between a Newtonian and a Viscoelastic Fluid. *Langmuir*, 34(4) :1795–1806, January 2018. ISSN 0743-7463, 1520-5827. doi : 10.1021/acs.langmuir.7b03482.
- [112] Charles M. Elliott and Harald Garcke. On the Cahn-Hilliard equation with degenerate mobility. *SIAM Journal on Mathematical Analysis*, 27(2) :404–423, 1996.
- [113] Shibin Dai and Qiang Du. Weak Solutions for the Cahn–Hilliard Equation with Degenerate Mobility. *Archive for Rational Mechanics and Analysis*, 219(3) :1161–1184, March 2016. ISSN 0003-9527, 1432-0673. doi : 10.1007/s00205-015-0918-2.
- [114] X.Q. Ke, J.E. Morral, and Y. Wang. Type n boundaries in n-component diffusion couples. *Acta Materialia*, 61(7) :2339–2347, April 2013. ISSN 13596454. doi : 10.1016/j.actamat.2013.01.005.
- [115] Qing Chen, Ning Ma, Kaisheng Wu, and Yunzhi Wang. Quantitative phase field modeling of diffusion-controlled precipitate growth and dissolution in Ti–Al–V. *Scripta Materialia*, 50(4) :471–476, February 2004. ISSN 13596462. doi : 10.1016/j.scriptamat.2003.10.032.
- [116] G. Tegze, T. Pusztai, and L. Gránásy. Phase field simulation of liquid phase separation with fluid flow. *Materials Science and Engineering : A*, 413–414 :418–422, December 2005. ISSN 09215093. doi : 10.1016/j.msea.2005.09.045.
- [117] Nele Moelans, Bart Blanpain, and Patrick Wollants. An introduction to phase-field modeling of microstructure evolution. *Computer Coupling of Phase Diagrams and*

- Thermochemistry*, 32 :268–294, 2008. ISSN 03645916. doi : doi:10.1016/j.calphad.2007.11.003.
- [118] R.R. Mohanty and Y. Sohn. Phase-Field Investigation of Multicomponent Diffusion in Single-Phase and Two-Phase Diffusion Couples. *Journal of Phase Equilibria & Diffusion*, 27(6) :676–683, December 2006. ISSN 15477037, 00000000. doi : 10.1361/154770306X153738.
- [119] H. Abels, H. Garcke, and G. Grün. Thermodynamically Consistent, Frame Indifferent Diffuse Interface Models for Incompressible Two-Phase Flows with Different Densities, April 2011. URL <http://arxiv.org/abs/1104.1336>. arXiv :1104.1336 [physics].
- [120] J. Lowengrub and L. Truskinovsky. Quasi-incompressible Cahn–Hilliard fluids and topological transitions. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 454(1978) :2617–2654, October 1998. ISSN 1364-5021, 1471-2946. doi : 10.1098/rspa.1998.0273. URL <https://royalsocietypublishing.org/doi/10.1098/rspa.1998.0273>.
- [121] Hang Ding, Peter D.M. Spelt, and Chang Shu. Diffuse interface model for incompressible two-phase flows with large density ratios. *Journal of Computational Physics*, 226(2) :2078–2095, October 2007. ISSN 00219991. doi : 10.1016/j.jcp.2007.06.028.
- [122] Franck Boyer. A theoretical and numerical model for the study of incompressible mixture flows. *Computers & Fluids*, 31(1) :41–68, January 2002. ISSN 00457930. doi : 10.1016/S0045-7930(00)00031-1.
- [123] H. Lukas, S. G. Fries, and B. Sundman. *Computational Thermodynamics : The Calphad Method*. Cambridge University Press, 2007.
- [124] R.H Fowler and E.A. Guggenheim. *Statistical Thermodynamics*. Cambridge University Press. Cambridge, UK, 1949.
- [125] Arthur D. Pelton and Patrice Chartrand. The modified quasi-chemical model : Part II. Multicomponent solutions. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 32(6) : 1355–1360, June 2001. ISSN 1073-5623, 1543-1940. doi : 10.1007/s11661-001-0226-3.
- [126] Mats Hillert. The compound energy formalism. *Journal of Alloys and Compounds*, 320(2) :161–176, May 2001. ISSN 0925-8388. doi : 10.1016/S0925-8388(00)01481-X.

-
- [127] S. Bakardjieva, M. Barrachin, S. Bechta, D. Bottomley, L. Brissoneau, B. Cheynet, E. Fischer, C. Journeau, M. Kiselova, L. Mezentseva, P. Piluso, and T. Wiss. Improvement of the European thermodynamic database NUCLEA. *Progress in Nuclear Energy*, 52(1) :84–96, 2010. ISSN 01491970.
- [128] C. Guéneau, S. Gossé, A. Quaini, N. Dupin, B. Sundman, D. Manara, R. Konings, M. Kurata, T. Besmann, P. Turchi, J. C. Dumas, E. C. Corcoran, M. Piro, T. Ogata, R. Hania, B. O. Lee, R. Kennedy, and S. Massara. FUELBASE, TAF-ID Databases and OC Software : Advanced Computational Tools to Perform Thermodynamic Calculations on Nuclear Fuel Materials. In *Proc. of the 7th European Review Meeting on Severe Accident Research ERMSAR-2015*, Marseille, France, 2015.
- [129] Bo Sundman, Ursula R Kattner, Mauro Palumbo, and Suzana G Fries. OpenCalphad - a free thermodynamic software. *Integrating Materials and Manufacturing Innovation*, 4(1), 2015. ISSN 2193-9772.
- [130] A. A. Sulatsky, S. A. Smirnov, V. S. Granovsky, V. B. Khabensky, E. V. Krushinov, S. A. Vitol, S. Yu. Kotova, M. Fischer, S. Hellmann, W. Tromm, A. Miassoedov, D. Bottomley, P. Piluso, and M. Barrachin. Oxidation kinetics of corium pool. *Nuclear Engineering and Design*, 262 :168–179, 2013. ISSN 0029-5493.
- [131] V. I. Almyashev, V. S. Granovsky, V. B. Khabensky, E. V. Krushinov, A. A. Sulatsky, S. A. Vitol, V. V. Gusarov, S. Bechta, M. Barrachin, F. Fichot, P. D. Bottomley, M. Fischer, and P. Piluso. Oxidation effects during corium melt in-vessel retention. *Nuclear Engineering and Design*, 305 :389–399, 2016. ISSN 0029-5493.
- [132] Karl R. Gegenfurtner. PRAXIS : Brent’s algorithm for function minimization. *Behavior Research Methods, Instruments, & Computers*, 24(4) :560–564, December 1992. ISSN 0743-3808, 1532-5970. doi : 10.3758/BF03203605.
- [133] A. Ya. Kupryazhkin, A. N. Zhiganov, D. V. Risovany, K. A. Nekrassov, V. D. Risovany, and V. N. Golovanov. Simulation of diffusion of oxygen and uranium in uranium dioxide nanocrystals. *Journal of Nuclear Materials*, 372 :233–238, January 2008. ISSN 0022-3115.
- [134] L. A. Girifalco and R. J. Good. A theory for the estimation of surface and interfacial energies. I. Derivation and application to interfacial tension. *The Journal of Physical Chemistry*, 61(7) :904–909, 1957.

- [135] IAEA, editor. *Thermophysical Properties of Materials for Nuclear Engineering : A Tutorial and Collection of Data*. IAEA, 2008.
- [136] Steven Wise, Junseok Kim, and John Lowengrub. Solving the regularized, strongly anisotropic Cahn–Hilliard equation by an adaptive nonlinear multigrid method. *Journal of Computational Physics*, 226(1) :414–446, September 2007. ISSN 00219991. doi : 10.1016/j.jcp.2007.04.020.
- [137] Yuki Nishida, Yuhki Tsukada, Toshiyuki Koyama, and Masaki Kurata. Phase-field simulation of the stability of reaction phases at $\text{UO}_2/\beta\text{-Zr}$ interface. *Journal of Nuclear Materials*, 466 :551–559, 2015. ISSN 00223115.
- [138] Andrew R. Conn, Nicholas I.M. Gould, and Philippe L. Toint. *Trust Region Methods*. Society for industrial and applied mathematics edition, 2000.
- [139] Kasi Gajavalli and Romain Le Tellier. Butler-based thermodynamic modeling of interfacial energies for in-vessel corium systems. *Journal of Nuclear Materials*, 569 : 153935, October 2022. ISSN 00223115. doi : 10.1016/j.jnucmat.2022.153935.
- [140] Arthur Tourneix. *Amélioration de La Modélisation Thermodynamique de Liquides Multicomposants à Haute Température Par Assimilation de Données de Tensions de Surface*. PhD thesis, Université Grenoble Alpes, 2022-2025 (thèse en cours).
- [141] Adrien Drouillet, Guillaume Bois, Romain Le Tellier, Raphaël Loubère, and Mathieu Peybernes. Mathematical Modeling and Associated Numerical Simulation of Fusion/Solidification Front Evolution in the Context of Severe Accident of Nuclear Power Engineering. *Mathematics*, 10(1) :116, December 2021. ISSN 2227-7390. doi : 10.3390/math10010116.
- [142] D.J. Korteweg. Sur la forme que prennent les équations du mouvement des fluides si l'on tient compte des forces capillaires causées par des variations de densité considérables mais continues et sur la théorie de la capillarité dans l'hypothèse d'une variation continue de la densité. pages 1–24. *Archives Néerlandaises de Sciences Exactes et Naturelles*, 1901.
- [143] Héctor Gómez, Victor M. Calo, Yuri Bazilevs, and Thomas J.R. Hughes. Isogeometric analysis of the Cahn–Hilliard phase-field model. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 197(49-50) :4333–4352, September 2008. ISSN 00457825. doi : 10.1016/j.cma.2008.05.003.

-
- [144] Dong Li. Why large time-stepping methods for the Cahn-Hilliard equation is stable. *Mathematics of Computation*, July 2022. ISSN 0025-5718, 1088-6842. doi : 10.1090/mcom/3768.
- [145] Charles M. Elliott and Donald A. French. Numerical Studies of the Cahn-Hilliard Equation for Phase Separation. *IMA Journal of Applied Mathematics*, 38(2) :97–128, 1987. ISSN 0272-4960, 1464-3634. doi : 10.1093/imamat/38.2.97.
- [146] Ping Lin, Chun Liu, and Hui Zhang. An energy law preserving C0 finite element scheme for simulating the kinematic effects in liquid crystal dynamics. *Journal of Computational Physics*, 227(2) :1411–1427, December 2007. ISSN 00219991. doi : 10.1016/j.jcp.2007.09.005.
- [147] Yue Yan, Wenbin Chen, Cheng Wang, and Steven M. Wise. A Second-Order Energy Stable BDF Numerical Scheme for the Cahn-Hilliard Equation. *Communications in Computational Physics*, 23(2), 2018. ISSN 18152406. doi : 10.4208/cicp.OA-2016-0197.
- [148] Francisco Guillén-González and Giordano Tierra. Second order schemes and time-step adaptivity for Allen–Cahn and Cahn–Hilliard models. *Computers & Mathematics with Applications*, 68(8) :821–846, October 2014. ISSN 08981221. doi : 10.1016/j.camwa.2014.07.014.
- [149] D.A. Knoll and D.E. Keyes. Jacobian-free Newton–Krylov methods : A survey of approaches and applications. *Journal of Computational Physics*, 193(2) :357–397, January 2004. ISSN 00219991. doi : 10.1016/j.jcp.2003.08.010.
- [150] Youcef Saad and Martin H. Schultz. GMRES : A Generalized Minimal Residual Algorithm for Solving Nonsymmetric Linear Systems. *SIAM Journal on Scientific and Statistical Computing*, 7(3) :856–869, July 1986. ISSN 0196-5204, 2168-3417. doi : 10.1137/0907058.
- [151] Liangzhe Zhang, Michael R. Tonks, Derek Gaston, John W. Peterson, David Andrs, Paul C. Millett, and Bulent S. Biner. A quantitative comparison between and elements for solving the Cahn–Hilliard equation. *Journal of Computational Physics*, 236 :74–80, March 2013. ISSN 00219991. doi : 10.1016/j.jcp.2012.12.001.
- [152] David Eyre. An unconditionnaly Stable One-Step Scheme for Gradient Systems. *IEEE Transactions on Image Processing*, 1997.

- [153] Hector Gomez and Thomas J.R. Hughes. Provably unconditionally stable, second-order time-accurate, mixed variational methods for phase-field models. *Journal of Computational Physics*, 230(13) :5310–5327, June 2011. ISSN 00219991. doi : 10.1016/j.jcp.2011.03.033.
- [154] F. Guillén-González and G. Tierra. On linear schemes for a Cahn–Hilliard diffuse interface model. *Journal of Computational Physics*, 234 :140–171, February 2013. ISSN 00219991. doi : 10.1016/j.jcp.2012.09.020.
- [155] X. Wu, G. J. Van Zwieten, and K. G. Van Der Zee. Stabilized second-order convex splitting schemes for Cahn-Hilliard models with application to diffuse-interface tumor-growth models. *International Journal for Numerical Methods in Biomedical Engineering*, 30(2) :180–203, February 2014. ISSN 20407939. doi : 10.1002/cnm.2597.
- [156] G. Tierra and F. Guillén-González. Numerical Methods for Solving the Cahn–Hilliard Equation and Its Applicability to Related Energy-Based Models. *Archives of Computational Methods in Engineering*, 22(2) :269–289, April 2015. ISSN 1134-3060, 1886-1784. doi : 10.1007/s11831-014-9112-1.
- [157] Vidar Thomée and A. S. Vasudeva Murthy. An Explicit-Implicit Splitting Method for a Convection-Diffusion Problem. *Computational Methods in Applied Mathematics*, 19 (2) :283–293, April 2019. ISSN 1609-9389, 1609-4840. doi : 10.1515/cmam-2018-0018.
- [158] Gilbert Strang. On the Construction and Comparison of Difference Schemes. *SIAM Journal on Numerical Analysis*, 5(3) :506–517, 1968.
- [159] K.Hvistendahl Karlsen, K.-A Lie, J.R Natvig, H.F Nordhaug, and H.K Dahle. Operator Splitting Methods for Systems of Convection–Diffusion Equations : Nonlinear Error Mechanisms and Correction Strategies. *Journal of Computational Physics*, 173 (2) :636–663, November 2001. ISSN 00219991. doi : 10.1006/jcph.2001.6901.
- [160] D. Estep, V. Ginting, D. Ropp, J. N. Shadid, and S. Tavener. An A Posteriori–A Priori Analysis of Multiscale Operator Splitting. *SIAM Journal on Numerical Analysis*, 46 (3) :1116–1146, January 2008. ISSN 0036-1429, 1095-7170. doi : 10.1137/07068237X.
- [161] Youcef Saad. *Iterative Methods for Sparse Linear Systems*. Society for Industrial and Applied Mathematic. Society for industrial and applied mathematic edition, 2000.

-
- [162] Michael R. Tonks, Derek Gaston, Paul C. Millett, David Andrs, and Paul Talbot. An object-oriented finite element framework for multiphysics phase field simulations. *Computational Materials Science*, 51(1) :20–29, January 2012. ISSN 09270256. doi : 10.1016/j.commatsci.2011.07.028.
- [163] Derek Gaston, Chris Newman, Glen Hansen, and Damien Lebrun-Grandié. MOOSE : A parallel computational framework for coupled systems of nonlinear equations. *Nuclear Engineering and Design*, 239(10) :1768–1778, October 2009. ISSN 00295493. doi : 10.1016/j.nucengdes.2009.05.021.
- [164] D. H. Sharp. An Overview of Rayleigh-Taylor Instability. *Physica D*, 12 :3–18, 1984.
- [165] J.L. Guermond, P. Mineev, and Jie Shen. An overview of projection methods for incompressible flows. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 195 (44-47) :6011–6045, September 2006. ISSN 00457825. doi : 10.1016/j.cma.2005.10.010.
- [166] Clément Introini. *Interaction entre un fluide à haute température et un béton : contribution à la modélisation des échanges de masse et de chaleur*. PhD thesis, INP Toulouse, November 2010.
- [167] Junseok Kim. A continuous surface tension force formulation for diffuse-interface models. *Journal of Computational Physics*, 204(2) :784–804, 2005. ISSN 0021-9991.
- [168] M. A. Rasolofomanana, R. Le Tellier, and H. Henry. Two-dimensional Numerical Simulation of Rayleigh-Taylor Instabilities in Immiscible Fluids using the Phase-Field Model of TrioCFD Code. In *NUTHOS-13*, Taiwan, 2022.
- [169] R. Le Tellier. Mass transfer between a continuous oxide phase (U-O-Zr) and a steel droplet at liquid state : Potential impact on corium pool behaviour during in-vessel melt retention. *Nuclear Engineering and Design*, 385 :111525, December 2021. ISSN 00295493. doi : 10.1016/j.nucengdes.2021.111525.
- [170] Kamalnath Kadirvel, Shalini Roy Koneru, and Yunzhi Wang. Exploration of spinodal decomposition in multi-principal element alloys (MPEAs) using CALPHAD modeling. *Scripta Materialia*, 214 :114657, June 2022. ISSN 13596462. doi : 10.1016/j.scriptamat.2022.114657.
- [171] Peder Aursand, Magnus Aa. Gjennestad, Eskil Aursand, Morten Hammer, and Øivind Wilhelmsen. The spinodal of single- and multi-component fluids and its

- role in the development of modern equations of state. *Fluid Phase Equilibria*, 436 : 98–112, March 2017. ISSN 03783812. doi : 10.1016/j.fluid.2016.12.018.
- [172] Marco Belloli, Stefano Giappino, Fabio Robustelli, and Claudio Somaschini. Drafting Effect in Cycling : Investigation by Wind Tunnel Tests. *Procedia Engineering*, 147 : 38–43, 2016. ISSN 18777058. doi : 10.1016/j.proeng.2016.06.186.
- [173] Massimo Marro, Jack Leckert, Ethan Rollier, Pietro Salizzoni, and Christophe Bailly. Wind tunnel evaluation of novel drafting formations for an elite marathon runner. *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 479(2276) :20220836, August 2023. ISSN 1364-5021, 1471-2946. doi : 10.1098/rspa.2022.0836.
- [174] Pablo M. Dupuy, Maria Fernandino, Hugo A. Jakobsen, and Hallvard F. Svendsen. Using Cahn–Hilliard mobility to simulate coalescence dynamics. *Computers & Mathematics with Applications*, 59(7) :2246–2259, April 2010. ISSN 08981221. doi : 10.1016/j.camwa.2009.08.050.
- [175] Shibin Dai and Qiang Du. Computational studies of coarsening rates for the Cahn–Hilliard equation with phase-dependent diffusion mobility. *Journal of Computational Physics*, 310 :85–108, April 2016. ISSN 00219991. doi : 10.1016/j.jcp.2016.01.018.
- [176] Yuri Amorim Coutinho, Nico Vervliet, Lieven De Lathauwer, and Nele Moelans. Combining thermodynamics with tensor completion techniques to enable multicomponent microstructure prediction. *npj Computational Materials*, 6(1) :2, January 2020. ISSN 2057-3960. doi : 10.1038/s41524-019-0268-y.
- [177] Alpha Albert Lee, Andreas Münch, and Endre Süli. Sharp-Interface Limits of the Cahn–Hilliard Equation with Degenerate Mobility. *SIAM Journal on Applied Mathematics*, 76(2) :433–456, January 2016. ISSN 0036-1399, 1095-712X. doi : 10.1137/140960189.
- [178] B.P. Leonard. A stable and accurate convective modelling procedure based on quadratic upstream interpolation. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 19(1) :59–98, June 1979. ISSN 00457825. doi : 10.1016/0045-7825(79)90034-3.

- [179] PETSC. <https://petsc.org/release/>, 2023.
- [180] P. Concus, G.H Golub, and D.P. O’Leary. A generalized conjugate gradient method for the numerical solution of elliptic partial differential equations, Symp. Sparse Matrix Computations. In *Proc. Symposium on Sparse Matrix Computations*, Argonne National Lab., September 1975.

Titre : Modélisation à interface diffuse et simulation numérique de l'hydrodynamique d'un bain liquide diphasique avec transfert de masse interfacial

Mots clés : Thermodynamique hors équilibre, écoulement polyphasique, modélisation numérique, Champ de phase/Cahn–Hilliard, système multicomposant, CFD

Résumé : La fusion du cœur d'un réacteur nucléaire lors d'un accident grave conduit à la formation du corium (un bain liquide multiphasique multicomposant issu du combustible et des structures internes de la cuve) dont les phases liquides immiscibles en présence ont tendance à se stratifier sous l'effet de la gravité. Le comportement transitoire d'un tel mélange est complexe car il résulte du couplage entre les phénomènes thermochimiques au travers du transfert de masse interphase qui peut induire des inversions de densité et les phénomènes hydrodynamiques, en particulier l'instabilité de Rayleigh–Taylor (RT).

Dans cette thèse de doctorat, on s'intéresse plus particulièrement à l'étude de ce mécanisme par le biais de la modélisation et la simulation numérique à l'échelle de la CFD (Computational Fluid Dynamics). La méthode du champ de phase de type Cahn-Hilliard couplée aux équations de Navier-Stokes incompressible est utilisée pour caractériser et capturer ces phénomènes.

Dans ce cadre, la définition de certains paramètres du modèle de Cahn-Hilliard pour un tel système multicomposant (à partir du ternaire) n'est pas triviale. Des phénomènes qu'on ne retrouve pas dans le cas binaire comme l'adsorption d'interface ou la non monotonie des profils de composition peuvent

être observés ; à l'échelle à laquelle on se place pour le couplage avec l'hydrodynamique, ils sont indésirables. Ainsi, ces problématiques ont d'abord été étudiées dans le système ternaire U-O-Zr pour lequel des études d'optimisation vis-à-vis des paramètres d'interface sont présentées dans ce travail pour mieux comprendre le paramétrage du modèle de Cahn-Hilliard multicomposant.

Ensuite, l'outil `TrioCFD` est utilisé dans l'optique du couplage avec l'hydrodynamique. Des simulations sont menées vis-à-vis des instabilités de RT monomodes en régime linéaire pour vérifier le bon fonctionnement du code. Des calculs démonstratifs de la stratification du corium pseudo-binaire montrent également de manière qualitative la capacité de cet outil à traiter la problématique d'intérêt de cette thèse. Pour aller vers des simulations quantitatives, tout en restant dans le cas isotherme, le modèle binaire est étendu à un modèle multicomposant en proposant une expression analytique de l'énergie libre pour simplifier le couplage avec `TrioCFD`.

Enfin, dans la dernière partie, des simulations de la dynamique d'une goutte multicomposant dans un domaine fluide couplant les deux phénomènes sont effectuées, permettant ainsi de montrer les bonnes capacités de `TrioCFD` à traiter de tels phénomènes couplés.

Title : Diffuse interface modelling and numerical simulation of two-phase liquid pool hydrodynamic with interfacial mass transfer

Keywords : Out of equilibrium thermodynamics, multiphase flow, numerical modelling, phase field/Cahn–Hilliard, multicomponent system, CFD

Abstract : The core meltdown of a nuclear reactor during a severe accident leads to the formation of corium (a multiphase multicomponent liquid pool from the fuel and the internal structures of the vessel), where the immiscible liquid phases tend to stratify under the effect of gravity. The transient behaviour of such a mixture is complex due to the coupling between thermochemical phenomena through interfacial mass transfer, which can induce density inversions, and hydrodynamic phenomena, in particular the Rayleigh-Taylor (RT) instability. This PhD thesis focuses on the study of this mechanism through modelling and numerical simulation using CFD (Computational Fluid Dynamics). The Cahn-Hilliard phase field method coupled to the incompressible Navier-Stokes equations is used to characterise and capture these phenomena.

In this context, the definition of certain parameters of the Cahn-Hilliard model for such a multicomponent system (from the ternary one) is not straightforward. Phenomena that are not found in the binary case, such as interface adsorption or the non-monotonicity of composition profiles, can be observed ; at the scale at which the coupling with hydrodynamics is

considered, they are undesirable. We therefore first studied these problems by considering the U-O-Zr ternary system, for which optimisation studies of the model's interface parameters are presented in this work, in order to gain a better understanding of the parameterisation of the multicomponent Cahn-Hilliard model.

Then, with a view to coupling with hydrodynamics, the `TrioCFD` code is used in this work. Simulations are carried out on single mode RT instabilities in the linear regime to verify the code. Demonstrative calculations of the stratification of pseudo-binary corium also show qualitatively the capability of this tool to deal with the problem of interest in this thesis. For the purposes of quantitative simulations, while assuming the isothermal case, the binary model is extended to a multicomponent one by proposing an analytical expression of the free energy to simplify the coupling with `TrioCFD`.

Finally, in the last part, simulations of the dynamics of a multicomponent droplet in a fluid domain are carried out, allowing us to show the capability of the multicomponent version of the code to simulate such coupled phenomena.